

ANTONIO MANUEL DE ALMEIDA REBELO

**PROCESSOS SUPERGÊNICOS NA DISTRIBUIÇÃO
DE RADÔNIO EM PAISAGENS TROPICAIS ÚMIDAS**

Tese apresentada como requisito parcial
à obtenção do grau de Doutor, Curso de
Pós-Graduação em Geologia, Setor de
Ciências da Terra, Universidade Federal
do Paraná.

Orientador:

Prof. Dr. André Virmond Lima Bittencourt

Co-orientadores:

Prof. Dr. Luiz Eduardo Mantovani

Prof. Dr. João Jachic

CURITIBA

2000



Ministério da Educação e do Desporto
UNIVERSIDADE FEDERAL DO PARANÁ
Setor Ciências da Terra
Coordenação do Curso de Pós-Graduação em Geologia

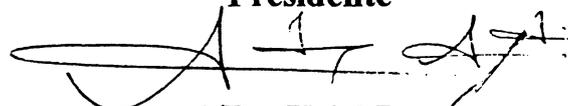
TERMO DE APROVAÇÃO

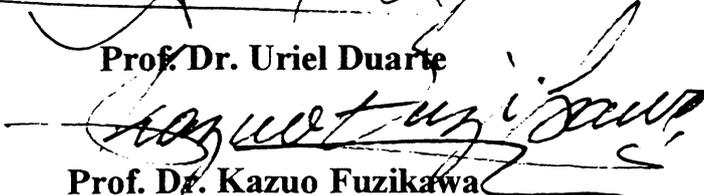
ANTÔNIO MANUEL ALMEIDA REBELO

PROCESSOS SUPERGENICOS NA DISTRIBUIÇÃO DE RADONIO EM PAISAGENS TROPICAIS UMIDAS

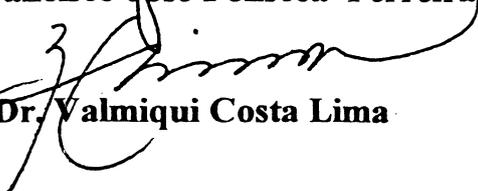
**Tese em Doutorado aprovada como requisito parcial para
obtenção do grau de Doutor no Curso de Curso de Pós-Graduação
em Geologia, com área de concentração em Geologia Ambiental,
da Universidade Federal do Paraná, pela Comissão formada pelos
Professores:**


Prof. Dr. André Virmond Lima Bittencourt
Presidente


Prof. Dr. Uriel Duarte


Prof. Dr. Kazuo Fuzikawa


Prof. Dr. Francisco José Fonseca Ferreira


Prof. Dr. Valmiqui Costa Lima

Curitiba, outubro de 2.000.

**Dedico aos meus pais Américo e Patrocínia,
meus irmãos Nelson e Carlos Alberto (*in
memorian*) e meus filhos Diogo Antonio e
Ana Júlia.**

AGRADECIMENTOS

À Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN, na pessoa do Dr. Ayrton José Caubit da Silva, Diretor de Radioproteção e Segurança Nuclear, pelo estímulo em frequentar o curso de Pós-Graduação no Setor de Ciências da Terra da Universidade Federal do Paraná – UFPR. Da mesma forma, aos colegas lotados nos vários institutos da referida Comissão, os meus agradecimentos. Ainda, aos responsáveis pelo Curso de Pós-Graduação por esta oportunidade.

À Comissão de Orientação, Prof. Dr. André Virmond Lima Bittencourt, Prof. Dr. Luiz Eduardo Mantovani, do Setor de Ciências da Terra da UFPR, e Prof. João Jachic, Ph. D., Pesquisador Titular do Instituto de Engenharia Nuclear - IEN e Professor da Universidade Tuiuti do Paraná, pelas orientações, discussões e estímulo à criatividade. À Comissão de Qualificação, Prof. Dr. André Virmond Lima Bittencourt, Prof. Dr. Augustinho Rigoti, Setor de Ciências da Terra, e Prof. Dr. Luiz Cláudio de Paula Souza, do Setor de Ciências Agrárias, pelos erros apontados e sugestões, tornando-se, assim, indutores do aprimoramento dos conceitos emitidos.

Aos laboratórios do Setor de Ciências da Terra da UFPR, Laboratório de Pesquisas em Geofísica Aplicada - LPGA, Laboratório de Pesquisas Hidrogeológicas – LPH, e Laboratório de Informática, nas pessoas do Prof. Dr. Francisco José Fonseca Ferreira, Msc. Rodoilton Stevanato, Prof. Dr. Ernani Francisco da Rosa Filho, Msc. Eduardo Chemas Hindi, Msc. Francisco Valdyr da Silva, geólogo Maximilian Forlin, geógrafo Juarez Ballão Tonetti e do técnico em informática Oto Laurentino Rosa, pelo estímulo, suporte e apoio nas respectivas especialidades. À bibliotecária Angela P. Farias Mengatto, da biblioteca do Setor de Ciência e Tecnologia, pelo suporte na utilização das normas bibliográficas e de formatação da Tese.

A todo o corpo docente do Departamento de Geologia, em especial do Curso de Pós-Graduação, pelos ensinamentos. Aos professores Dr. Naldy Emerson Canally e Dr. Leonardo José Cordeiro Santos, do Departamento de Geografia, pelo suporte bibliográfico e discussões sobre sistemas morfogenéticos e sistemas pedológicos de transformação. Aos professores do Departamento de Química, Msc. Nereu J. Mello de Souza e Dr. Arley Paiva Martins, pelas discussões sobre conceitos gerais da química e sobre radioquímica. Ao corpo de funcionários do Setor de Ciências da Terra e do Departamento de Geologia, em especial aos técnicos Édson da Silva Lima Jr., Rosalda de Barros e Neimar de Souza, pelo suporte administrativo.

Aos colegas do Curso de Pós-Graduação pela partilha de vários anos de momentos bons e difíceis, e pela troca de experiências durante o curso, que muito contribuíram para fortalecer o ser humano e o “pesquisador”.

Finalmente, à minha família pela paciência e apoio.

SUMÁRIO

DEDICATÓRIA	ii
AGRADECIMENTOS	iii
LISTA DE FIGURAS	vii
LISTA DE TABELAS	ix
LISTA DE QUADROS	ix
LISTA DE SIGLAS	x
LISTA DE SÍMBOLOS	xi
RESUMO	xiii
ABSTRACT	xv
1 INTRODUÇÃO	1
1.1 CARACTERIZAÇÃO DO PROBLEMA.....	7
1.1.1 Revisão Bibliográfica.....	7
1.1.2 Hipótese.....	14
1.1.3 Questões a Investigar.....	15
1.2 OBJETIVOS.....	17
1.3 MEIOS E MÉTODOS.....	18
1.3.1 Estruturação dos Capítulos.....	28
2 O MACROAMBIENTE TROPICAL ÚMIDO	30
2.1 REGIME TÉRMICO, HÍDRICO E COBERTURA VEGETAL.....	31
2.1.1 Regime Térmico e Hídrico.....	31
2.1.2 Cobertura Vegetal.....	32
2.1.3 Aspectos Climáticos e Florísticos das Regiões Brasileiras.....	33
2.2 INTEMPERISMO QUÍMICO E PEDOGÊNESE.....	35
2.2.1 Intemperismo Químico.....	36
2.2.1.1 Fatores e mecanismos de intemperismo químico.....	36
2.2.2 Pedogênese.....	40
2.2.2.1 Processos básicos e específicos de formação de solos.....	42
2.2.2.2 Solos dos trópicos úmidos e processos de formação.....	43
2.2.2.3 O sistema de transformação Latossolo-Solo Podzólico.....	51
2.3. EVOLUÇÃO DO AQUÍFERO FREÁTICO POR POROSIDADE SECUNDÁRIA.....	59
2.3.1 Bacia Hidrográfica e Vertentes.....	59
2.3.2 Aspectos Físicos e Geométricos do Aquífero.....	60
2.3.3 Síntese Evolutiva.....	62
3 DISTRIBUIÇÃO DE U E Th EM PAISAGENS TROPICAIS ÚMIDAS	65
3.1 GEOQUÍMICA, ROCHAS E FASES PORTADORAS DE U E Th.....	67
3.1.1 Fases Portadoras de U e Th.....	68
3.1.1.1 Redistribuição de U e Th em rochas graníticas sob intemperismo incipiente.....	71
3.2 COMPORTAMENTO DO U E DO Th EM PAISAGENS GEOQUÍMICAS TROPICAIS ÚMIDAS.....	74
3.3 ANOMALIAS DE U E Th, TIPOS DE SOLOS E PAISAGENS GEOQUÍMICAS.....	89
3.3.1 Conceituação das Anomalias.....	90
3.3.2 Caracterização das Anomalias.....	93
4 DISTRIBUIÇÃO E EXALAÇÃO DE RADÔNIO (²²²Rn E ²²⁰Rn) EM PAISAGENS TROPICAIS ÚMIDAS	103
4.1 HIDRODINÂMICA DO AQUÍFERO FREÁTICO POR POROSIDADE SECUNDÁRIA.....	105
4.1.1 Dinâmica da Água no Solo.....	106
4.1.2 Regime Hídrico.....	111
4.2 CONCEITOS BÁSICOS DE FÍSICA E GEOLOGIA NUCLEAR NO ESTUDO DE RADÔNIO.....	116
4.2.1 Propriedades das Radiações.....	117

4.2.2	Decaimento e Atividade.....	118
4.2.3	Famílias Radioativas Naturais.....	119
4.2.4	Equilíbrio Radioativo.....	123
4.2.4.1	Mecanismos geoquímicos e desequilíbrio radioativo na série do ^{238}U no ambiente superficial	125
4.3	RADÔNIO.....	129
4.3.1	Conceitos de Geração, Recuo Alfa, Emissão, Migração e Exalação de Radônio... 130	
4.3.1.1	Conceituação matemática da emissão.....	140
4.4	RADÔNIO NAS PAISAGENS.....	144
4.4.1	Geração e Emissão de Rn nas Paisagens.....	145
4.4.2	Intervalos de Umidade, Migração e Exalação de Radônio nas Paisagens.....	148
4.4.3	Síntese Conclusiva.....	152
5	RESULTADOS E DISCUSSÃO	157
5.1	RESULTADOS.....	157
5.2	DISCUSSÃO.....	168
6	CONCLUSÕES	182
	GLOSSÁRIO	189
	REFERÊNCIAS	195
	ANEXOS	203

LISTA DE FIGURAS

FIGURA 1 – FONTES DE RADIAÇÃO QUE AFETAM O AMBIENTE ANTRÓPICO.....	2
FIGURA 2 – TAXAS MÉDIAS ANUAIS DE INCIDÊNCIA DE CÂNCER DE PULMÃO EM HOMENS, POR FAIXA DE IDADE, RELACIONADAS COM O CONSUMO DE ÁGUA DOMÉSTICA EM IOWA, USA. AS COLUNAS MENORES REFEREM-SE AOS SEGMENTOS DA POPULAÇÃO QUE CONSUMIRAM ÁGUA COM TEORES MÉDIOS DE ^{226}Ra ABAIXO DE 111 mBq.l^{-1} E AS MAIORES ACIMA.....	4
FIGURA 3 – PADRÕES DE FLUXO DAS ÁGUAS NAS QUATRO PAISAGENS ELEMENTARES DE UMA VERTENTE; (I) PAISAGEM ELUVIAL, (II) PAISAGEM TRANSELUVIAL, (III) PAISAGEM SUPRAQUAL, E (IV) PAISAGEM AQUAL	23
FIGURA 4 – REGIÃO NORTE DO BRASIL; DIFERENCIAÇÕES CLIMÁTICAS E DURAÇÃO DOS PERÍODOS SECOS	34
FIGURA 5 – VELOCIDADES RELATIVAS DE FORMAÇÃO DOS DIFERENTES HORIZONTES DE UM PERFIL DE SOLOS DURANTE INTEMPERISMO QUÍMICO E PEDOGÊNESE DE ROCHAS CRISTALINAS.....	36
FIGURA 6 – PERFIL ESQUEMÁTICO DO PROCESSO DE LATOLIZAÇÃO	48
FIGURA 7 – PERFIL ESQUEMÁTICO DO PROCESSO DE PODZOLIZAÇÃO	49
FIGURA 8 – PERFIL ESQUEMÁTICO DO PROCESSO DE GLEIZAÇÃO	50
FIGURA 9 – RELAÇÕES ENTRE UNIDADE DE DRENAGEM E O SISTEMA DE TRANSFORMAÇÃO LATOSSOLO – SOLO PODZÓLICO, SOBRE ROCHA GRANÍTICA EM AMBIENTE TROPICAL ÚMIDO.....	54
FIGURA 10 – REPRESENTAÇÃO DA ORGANIZAÇÃO DA COBERTURA PEDOLÓGICA DE UMA UNIDADE DE DRENAGEM. AS CURVAS DE ISODIFERENCIAÇÃO REPRESENTAM DIFERENTES CARACTERÍSTICAS DA COBERTURA.....	56
FIGURA 11 – PROCESSOS DE ALTERAÇÃO SUPERFICIAL E COMPORTAMENTO GEOQUÍMICO DO CHUMBO, ZINCO, COBRE E URÂNIO.....	75
FIGURA 12 – CONCENTRAÇÕES METALÍFERAS SUBSUPERFICIAIS EM FORMAÇÕES PEDOLÓGICAS: (A) INFLUÊNCIA DA ESPESSURA DE ALTERAÇÃO, E (B) INFLUÊNCIA DA INTENSIDADE DE LIXIVIAÇÃO	91
FIGURA 13 – VARIAÇÃO DO TEOR EM METAL NOS HORIZONTES DE UM PERFIL DE LATOSSOLO NA ZÂMBIA.....	94
FIGURA 14 – VARIAÇÕES NAS PRINCIPAIS PROPRIEDADES FÍSICAS E QUÍMICAS EM UM PERFIL DE SOLO PODZÓLICO, NA TOPOSSEQUÊNCIA HORTO B, BAURU (SP)..	96
FIGURA 15 – DISTRIBUIÇÃO DE K, U E Th EM SOLO SOBRE ADAMELITO, INFLUENCIADA PELOS PROCESSOS DE ELUVIAÇÃO – ILUVIAÇÃO DE ARGILAS E ÓXIDOS DE Fe	97
FIGURA 16 – PERFIL DE INTEMPERISMO SOBRE GRANITO CONSTITUÍDO POR AREIAS RESIDUAIS ALTAMENTE LIXIVIADAS E POBRES EM K, eTh E eU.....	98
FIGURA 17 – ANOMALIA DE U EM SOLOS HIDROMÓRFICOS DE UMA ÁREA DE SURGÊNCIA NA PARTE INFERIOR DE UMA ENCOSTA MINERALIZADA NA ESCÓCIA	100
FIGURA 18 – RELAÇÕES ENTRE SISTEMA PEDOGENÉTICO DE TRANSFORMAÇÃO, PAISAGENS GEOQUÍMICAS E PADRÕES DE ANOMALIAS DE U E Th (Ra), SOBRE ROCHA GRANÍTICA EM AMBIENTE TROPICAL ÚMIDO.....	102
FIGURA 19 – EVAPOTRANSPIRAÇÃO DE ÁGUA FREÁTICA ATRAVÉS DO SOLO EM FUNÇÃO DA EVAPORAÇÃO ANUAL PARA DIFERENTES PROFUNDIDADES.....	110
FIGURA 20 – SÉRIE NATURAL DE DECAIMENTO RADIOATIVO DO ^{238}U	121
FIGURA 21 – SÉRIE NATURAL DE DECAIMENTO RADIOATIVO DO ^{232}Th	122
FIGURA 22 – COEFICIENTE DE EMANAÇÃO DE Rn, COM RELAÇÃO AO DIÂMETRO, PARA GRÃOS COM Ra HOMOGENEAMENTE DISTRIBUÍDO E PARA Ra EM PELÍCULAS SUPERFICIAIS DE ESPESSURA IGUAL AO ALCANCE DE RECUO DO Rn.....	133
FIGURA 23 – TRAJETÓRIAS POSSÍVEIS DEVIDAS AO RECUO ALFA DO Rn EM GRÃOS DE SOLO E PARA OS POROS (A-A'; B-B'; C-C', D-D'), ONDE: R = ALCANCE DE RECUO DO Rn; • = ÁTOMOS DE ^{226}Ra ; ° = ÁTOMOS DE ^{222}Rn	134
FIGURA 24 – EFEITOS DA UMIDADE DO SOLO NO COEFICIENTE DE EMANAÇÃO DO ^{222}Rn PARA UMA AMOSTRA CONTENDO U	135

FIGURA 25 – EFEITOS DA UMIDADE DO SOLO NA DIFUSIBILIDADE DO Rn	137
FIGURA 26 – PERMEABILIDADE RELATIVA DE UMA AREIA ARGILO - CALCÍFERA AO AR (K_{ra}) E À ÁGUA (K_{rw}) COMO FUNÇÃO DO SEU GRAU DE SATURAÇÃO EM ÁGUA	138
FIGURA 27 – INFLUÊNCIA DO CONTEÚDO DE UMIDADE NA EXALAÇÃO DE Rn PARA AMOSTRAS DE FOLHELHO, SOLO E CONCRETO.....	139
FIGURA 28 – PROBABILIDADE DE ESCAPE DE Rn DE UMA PARTÍCULA PARA UM PORO, DEVIDO AO SEU RECUO APÓS A DESINTEGRAÇÃO DO Ra, ONDE: Rm = ALCANCE MÉDIO DE RECUO DO Rn; X = DISTÂNCIA DO NÚCLEO DE Ra ATÉ O PORO, E h = ALTURA DA CALOTA.....	141
FIGURA 29 – RELAÇÕES ENTRE SISTEMA DE TRANSFORMAÇÃO LATOSSOLO – SOLO PODZÓLICO, PAISAGENS GEOQUÍMICAS, PADRÕES DE RADIOANOMALIAS E INTENSIDADES RELATIVAS DE EXALAÇÃO DE Rn, SOBRE ROCHA GRANÍTICA EM AMBIENTE TROPICAL ÚMIDO.....	155
FIGURA 30 – VARIAÇÕES SAZONAIS DOS NÍVEIS DE Rn EM TERRITÓRIOS ÚMIDOS E ÁRIDOS DE ISRAEL.....	166
FIGURA 31 – ABUNDÂNCIA DE RADIOELEMENTOS E TAXAS DE EMANAÇÃO DE Rn EM AMOSTRAS DE SOLO DE GRANITO, CALIFÓRNIA, USA	176
FIGURA 32 – VARIAÇÃO DOS COEFICIENTES DE EMANAÇÃO DO ^{220}Rn COM A PROFUNDIDADE, EM VÁRIOS PERFIS DE SOLOS DO NORDESTE DOS ESTADOS UNIDOS DA AMÉRICA.....	177

LISTA DE TABELAS

TABELA 1 – RISCO COMPARATIVO DE CÂNCER DE PULMÃO PARA DIFERENTES NÍVEIS DE CONCENTRAÇÃO DE RADÔNIO EM INTERIORES.....	5
TABELA 2 – PROCESSOS PEDOGENÉTICOS BÁSICOS E ESPECÍFICOS.....	43
TABELA 3 – PRINCIPAIS UNIDADES DE SOLO DA FAO REPRESENTADAS NO BRASIL.....	44
TABELA 4 – CLASSES DE RELEVO SEGUNDO A COMISSÃO DE SOLOS (1960).....	46
TABELA 5 – TEORES FUNDAMENTAIS DE ALGUNS RADIONUCLÍDEOS NA CROSTA CONTINENTAL, ALGUMAS ROCHAS COMUNS E ÁGUA DO MAR.....	67
TABELA 6 – TEORES DE U, Th E RAZÕES Th/U EM MINERAIS DE ROCHAS ÍGNEAS.....	69
TABELA 7 – ATIVIDADES ALFA MÉDIAS DE VÁRIOS MINERAIS NO " ENCHANTED ROCK BATHOLITH ", TEXAS, USA.....	70
TABELA 8 – VALORES MÉDIOS PARA Th, U E Th/U EM BAUXITAS E RESPECTIVAS ROCHAS - FONTE	86
TABELA 9 – MOBILIDADE DE ELEMENTOS EM AMBIENTES GEOQUÍMICOS SUPERFICIAIS...87	
TABELA 10 – EXEMPLO DE DIFERENCIAÇÃO DO TEOR DE METAL DE ANOMALIAS SITUADAS EM DIFERENTES HORIZONTES DE UM LATOSSOLO, ÁFRICA CENTRAL.....	94
TABELA 11 – ALGUNS ATRIBUTOS DAS PRINCIPAIS CONCENTRAÇÕES DE U E Th(Ra) EM SOLOS RESIDUAIS TROPICAIS ÚMIDOS NAS DIFERENTES PAISAGENS GEOQUÍMICAS DE UMA VERTENTE EM GRANITO.....	99
TABELA 12 – ABUNDÂNCIA ISOTÓPICA NATURAL, MEIA - VIDA E MODO DE DECAIMENTO DOS RADIONUCLÍDEOS ^{238}U , ^{235}U , ^{234}U , ^{232}Th E ^{40}K	120
TABELA 13 – ESTIMATIVA DOS NÍVEIS RELATIVOS DE GERAÇÃO E EMANAÇÃO DE Rn EM SOLOS RESIDUAIS TROPICAIS ÚMIDOS EM DIFERENTES PAISAGENS DE UMA VERTENTE SOBRE ROCHA GRANÍTICA COM U E Th (Ra), CONSIDERANDO-SE O INTERVALO DE UMIDADE DOS SOLOS PRÓXIMO À CAPACIDADE DE CAMPO.....	148
TABELA 14 – INFLUÊNCIA DO REGIME HÍDRICO DO AQUÍFERO FREÁTICO POR POROSIDADE SECUNDÁRIA NOS PROCESSOS DE EMANAÇÃO, MIGRAÇÃO E EXALAÇÃO DE Rn. APLICAÇÃO A PAISAGENS TROPICAIS ÚMIDAS SOBRE ROCHA GRANÍTICA, CARACTERIZADAS PELA ASSOCIAÇÃO LATOSSOLO – SOLO PODZÓLICO.....	151
TABELA 15 – COEFICIENTES DE EMANAÇÃO DE Rn EM DIFERENTES HORIZONTES DE UM ULTISSOLO RESIDUAL SOBRE UM GRANITO DA CAROLINA DO NORTE, USA, E TEORES EM ARGILA, CARBONO ORGÂNICO, ÓXIDO DE Fe, U, Th E Ra.....	178
TABELA 16 – MATRIZ "ÍNDICE DE RADÔNIO", SEGUNDO GUNDERSEN et al. (1992).....	180
TABELA 17 – MATRIZ "ÍNDICE DE CONFIANÇA", SEGUNDO GUNDERSEN et al. (1992)	181

LISTA DE QUADROS

QUADRO 1 – ELEMENTOS MORFOLÓGICOS E DINÂMICOS DAS PAISAGENS TROPICAIS ÚMIDAS QUE AFETAM OS PROCESSOS DE GERAÇÃO, EMANAÇÃO, MIGRAÇÃO E EXALAÇÃO DE RADÔNIO.....	162
--	-----

LISTAS DE SIGLAS

CDTN	- Centro de Desenvolvimento de Tecnologia Nuclear
CNEN	- Comissão Nacional de Energia Nuclear
CNPq	- Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico
CPRM	- Companhia de Pesquisa de Recursos Minerais
ENAN	- Encontro Nacional de Aplicações Nucleares
EPA	- Environmental Protection Agency
EUA	- Estados Unidos da América do Norte
FAO	- Food and Agriculture Organization of the United Nations
FAPESP	- Fundação de Amparo à Pesquisa no Estado de São Paulo
GIS	- Geographic Information System
IAEA	- International Atomic Energy Agency
IBGE	- Fundação Instituto Brasileiro de Geografia e Estatística
IEN	- Instituto de Engenharia Nuclear
IPEN	- Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares
IRD	- Instituto de Radioproteção e Dosimetria
LPGA	- Laboratório de Pesquisas em Geofísica Aplicada
LPH	- Laboratório de Pesquisas hidrogeológicas
NUCLEBRAS	- Empresas Nucleares Brasileiras S. A.
ORSTOM	- Office de la Recherche Scientifique et Technique Outre-Mer
SABESP	- Companhia de Saneamento Básico do Estado de São Paulo
UFPA	- Universidade Federal do Pará
UFPE	- Universidade Federal de Pernambuco
UFPR	- Universidade Federal do Paraná
UFRGS	- Universidade Federal do Rio Grande do Sul
UNESP	- Universidade do Estado de São Paulo
UNISINOS	- Universidade do Vale do Rio dos Sinos
UNSCEAR	- United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation
USA	- United States of America
USEPA	- United States Environmental Protection Agency
USGS	- United States Geological Survey
WHO	- World Health Organization

LISTA DE SÍMBOLOS

A, A0, A1, A2	- Horizontes de solo
B, B1, B2, Bg, Bl, Bt	- Horizontes de solo
²¹² Bi	- Bismuto, radioisótopo de massa 212
²¹⁴ Bi	- Bismuto, radioisótopo de massa 214
Bq	- BECQUEREL. Unidade de atividade no SI
Bq/Kg.s	- Unidade de taxa de emissão de Rn
Bq/l (Bq.l ⁻¹ ,)	- Unidade de concentração de Rn em água
Bq/m ² .s	- Unidade de taxa de exalação, ou fluxo, de Rn
Bq/m ³ (Bq.m ⁻³)	- Unidade de concentração de Rn no ar
C, Cg	- Horizontes de solo
Ci	- CURIE. Unidade histórica de atividade
Ci/g.s	- Unidade de taxa de emissão de Rn
CTC	- Capacidade de Troca de Cátions
dps	- Desintegração por segundo
E	- Horizonte de solo (A2)
eU	- Equivalente urânio
eV	- Elétron Volt
g	- Índice para hidromorfia intermitente nos solos
G	- Índice para hidromorfia permanente nos solos
g/cm ³	- Unidade de densidade no sistema CGS
⁴⁰ K	- Potássio, radioisótopo de massa 40
Ki	- Relação SiO ₂ /Al ₂ O ₃
KeV	- Quilo Elétron Volt
LR	- Latossolo Roxo
LVA	- Latossolo Vermelho Amarelo
LVE	- Latossolo Vermelho Escuro
Ma	- Milhões de anos
mBq.l ⁻¹	- 10 ⁻³ .Bq.l ⁻¹
MeV	- Mega Elétron Volt
mE/100g	- Unidade de CTC
MO	- Matéria orgânica
M(OH) ₃	- Fórmula generalizada para hidróxido metálico
mSv	- 10 ⁻³ Sv
Ms/Mt	- Metal solúvel/Metal total
My	- Millions of years
nm	- Nanometro (10 ⁻⁹ m; 10 Ângstroms)
O1, O2	- Horizontes de solo
PCi	- 10 ⁻¹² Ci
PI	- Potencial iônico
²¹² Po	- Polônio, radioisótopo de massa 212
²¹⁴ Po	- Polônio, radioisótopo de massa 214
²¹⁸ Po	- Polônio, radioisótopo de massa 218
ppb	- Partes por bilhão
ppm	- Partes por milhão
PVA	- Podzólico Vermelho Amarelo
Ra	- Rádio
²²⁴ Ra	- Rádio, radioisótopo de massa 224
²²⁶ Ra	- Rádio, radioisótopo de massa 226
²²⁸ Ra	- Rádio, radioisótopo de massa 228
Rn	- Radônio

^{220}Rn	- Radônio, radioisótopo de massa 220
^{222}Rn	- Radônio, radioisótopo de massa 222
Sv	- Sievert. Unidade de dose equivalente no SI
Th	- Tório
Th^{+4}	- Tório, número de valência +4
^{228}Th	- Tório, radioisótopo de massa 228
^{230}Th	- Tório, radioisótopo de massa 230
^{232}Th	- Tório, radioisótopo de massa 232
ThO_2	- Mineral torianita
Th/U	- Razão Th/U
$^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$	- Razão Th-230/U-234
TRE	- Terra Roxa Estruturada
U	- Urânio
^{234}U	- Urânio, radioisótopo de massa 234
^{235}U	- Urânio, radioisótopo de massa 235
^{238}U	- Urânio, radioisótopo de massa 238
U^{+4}	- Urânio, número de valência +4
U^{+6}	- Urânio, número de valência +6
Uf	- Urânio fixo
U e Th(Ra)	- Urânio e tório como indicadores do Ra
UO_2	- Mineral uraninita
UO_2^{2+}	- Íon uranila
Us	- Urânio solúvel, ou facilmente extraível
Ut	- Urânio total
Us/Ut	- Razão urânio solúvel/urânio total
$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	- Razão urânio-234/urânio-238
Wfc	- Intervalo de umidade, capacidade de campo dos solos
Wmc	- Capacidade mínima ou capacidade de campo dos solos
Wpwc	- Intervalo de umidade, ponto de murchamento do solo
Wtc	- Intervalo de umidade, capacidade máxima ou total dos solos

RESUMO

A principal contribuição desta pesquisa é a apresentação do conhecimento que possibilita a seleção de áreas com diferentes intensidades de fluxos de radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn) em paisagens tropicais úmidas com espessas coberturas residuais. Objetivando determinar os controles dos processos radioativos de geração, emanação, migração e exalação de Rn, e estabelecer uma metodologia de estudo que permita elaborar modelos previsionais de Rn adaptados ao contexto enfocado, são demonstradas e analisadas as principais relações entre os processos radioativos mencionados e os elementos morfológicos e dinâmicos das paisagens, verificando-se como tais inter-relações afetam a exalação de Rn. Para tanto avaliou-se o papel dos processos supergênicos, atuantes sobre rochas graníticas com teores normais e homoganeamente distribuídos de U e Th (Ra), durante os tempos geológico e pedológico, na evolução das vertentes de uma unidade de drenagem e conseqüente redistribuição dos radionuclídeos, numa visão multidisciplinar, tridimensional e sistêmica. Foram utilizados inúmeros dados, informações e conceitos, com destaque para os conceitos de sistema pedológico de transformação e de geoquímica de paisagens, consubstanciados por outros da física e geologia nucleares, e pela aplicação das razões Th/U e Us/Ut, além de elementos hidrogeológicos e climatológicos do macroambiente. Os processos supergênicos configuram as vertentes nas paisagens **eluvial, transeluvial, supraqual e aqual**, caracterizadas por diferentes geoformas, tipos e espessuras de solos residuais e permoporosidades. A cada paisagem se associam diferentes concentrações e fases hospedeiras dos radionuclídeos U e Th (Ra), bem como regimes hídricos específicos do aquífero freático por porosidade secundária. No contexto investigado, o sistema de transformação Latossolo-Solo Podzólico encerra uma segunda geração pedogenética de radioanomalias, decorrente da podzolização dos Latossolos, mais intensas e com maior proporção de U adsorvido, além de alterar a distribuição das permoporosidades dos solos existentes, conformando um subsistema aquífero freático suspenso na paisagem transeluvial. Na paisagem eluvial, as principais anomalias de U e Th (Ra) estão situadas no topo do horizonte B latossólico, e são devidas à acumulação relativa de minerais resistatos, U e compostos insolúveis de Th fixados por oxihidróxidos de Fe e Al e argilas. Na paisagem transeluvial, no topo do horizonte B textural dos Solos Podzólicos, as radioanomalias são em parte relativas e em parte absolutas. Na paisagem supraqual são essencialmente absolutas e uraníferas, com U adsorvido às fases argilo-orgânicas dos horizontes A0 e A1 dos Solos Hidromórficos em duas etapas principais. A primeira, de maior duração e mais antiga que 1 Ma, ocorreu durante a latolização. A segunda, mais jovem e afetando espaços geográficos mais limitados, durante a podzolização dos Latossolos, entre 100.000 e 500.000 anos. Assim, com base nas intensidades das radioanomalias e forma de hospedagem do U e Th (Ra), nas permoporosidades dos solos, e suas relações espaciais com o sistema freático e respectivos regimes de umidade, as possibilidades de maiores taxas de exalação de Rn, principalmente ^{222}Rn , são nas paisagens supraqual e transeluvial. Exceções podem ocorrer em áreas adjacentes à atual rede de drenagem, na paisagem supraqual, onde o ^{238}U mais jovem que 1 Ma condiciona desequilíbrio radioativo significativo, com impacto negativo na geração de Rn. Na paisagem eluvial, a despeito da existência de intensas anomalias gama, devido ao acúmulo de resistatos com U e Th e compostos de Th, os fluxos de Rn são menos significativos, caracterizados pelo ^{220}Rn . Finalmente, a abordagem utilizada possibilitou uma avaliação das condicionantes da exalação de Rn nas paisagens. Com base no estudo da distribuição espacial da cobertura residual, enfatizando os sistemas pedológicos de transformação e a cronologia relativa dos diferentes processos que atuaram nas vertentes, a geoquímica de paisagens e outros conceitos importantes, foi possível estabelecer modelos previsionais de Rn em escalas compatíveis com as dimensões de pequenos núcleos habitacionais ou mesmo de residências unitárias. Isto é particularmente válido para paisagens sobre granitos com relevo moderado, em regiões quentes e úmidas

com florestas, em que se verifica a associação entre Latossolos, Solos Podzólicos e Solos Hidromórficos. Por isso, sugere-se estudos em contextos climáticos de transição e embasados por diferentes litologias. Também, sugere-se testes comparativos com modelos baseados em dados gamaespectrométricos, em que não seja considerada a redistribuição dos radionuclídeos gama-emissores durante a alteração supergênica.

Palavras-chave: Distribuição de Radônio; Paisagens; Processos Supergênicos; Sistema de Transformação Latossolo – Solo Podzólico

ABSTRACT

The main contribution of this research is the knowledge acquired which allows for the selection of areas with different intensities of Rn fluxes in humid tropical landscapes covered by thick residual soil profiles. Studies were carried out to determine the controls of the radioactive processes of Rn generation, emanation, migration and exhalation and to come out with an approach that permits the elaboration of predictable models of Rn adapted to the context in focus. The main relationships concerning the radioactive processes and the morpho-dynamic landscape elements and their effect on the exhalation of Rn were analyzed. The weathering processes have a major role on granitic rocks with U and Th (Ra) normal concentration and distribution during geological and pedological times, on a drainage unit slope evolution and consequent redistribution of radionuclides. This role was examined considering a multidisciplinary, tridimensional and systemic viewpoint. Several data and concepts were used, mainly the pedological systems of transformation and landscape geochemistry, supported by others pertaining to nuclear physics, Th/U and Us/Ut ratios, besides hydrogeological and climatic elements of the macroambient. The weathering processes on slopes promote differentiation into the eluvial, transeluvial and supraequal and aqual landscapes, characterized by different geoforms, residual soil types and thicknesses, permeabilities and water regimes of phreatic aquifer, and by different U and Th (Ra) concentrations and host phases. In the focused context, the Latosol-Podzolic transformation system includes a secondary pedogenetic generation of radioanomalies, more intensens and with a higher proportion of adsorbed U, due to the Latosol podzolization, and with the characteristic of altering the water regime of phreatic aquifer by changing the permeability of soils and increasing versant slope, resulting in a perched phreatic aquifer subsystem in the transeluvial landscape. In the eluvial landscape, the main anomalies of U and Th (Ra) are located on the top of latosolic B horizon, and are caused by the relative accumulation of resistate minerals, U and Th insoluble compounds, fixed by Fe and Al oxyhydroxides and clays. In the transeluvial landscape, on the top of the textural B horizon of Podzolic Soils, the radioanomalies are partially relative and partially absolute. In the supraequal landscape, the anomalies are mainly absolute and uraniferous, with U fixed by the adsorption on argillaceous and organic phases of A0 and A1 horizons of Hydromorphic Soils, during two principal stages. The first one, longer and older than 1 My happened during the latolization. The second, younger and acting over more limited geographic areas, happened during the Latosol podzolization, approximately between 100,000 and 500,000 years. Consequently, the possibilities of encountering the highest rates of Rn exhalation, mainly ^{222}Rn , are in supraequal and transeluvial landscapes. This conclusion was reached by considering the intensity of radioanomalies and the type of host phases of U and Th (Ra), the soil permeability and its spatial relationships with the phreatic system and water regimes. Exceptions may occur in areas adjacent to the present drainage system, in the supraequal landscape, where the ^{238}U younger than 1 My presents a significant radioactive disequilibrium, with a negative impact on Rn generation. In the eluvial landscape, despite the existence of intense gamma anomalies, caused by the accumulation of resistates with U and Th and Th compounds, the fluxes of Rn are less significant, characterized by ^{220}Rn . Finally, the approach chosen allowed to evaluate the circumstances in which Rn exhalation takes place in the landscapes. Based on the studies about the spatial distribution of residual cover, with emphasis on pedologic transformation systems and the relative chronology of different processes that acted on slopes, the geochemistry of landscapes and other important concepts, it was possible to establish Rn previsional models in scales compatible with small dwelling centers or even single houses. This is specially valid about landscapes over granitic rocks with moderate relief, in hot and humid regions covered by forests, where the association between Latosol - Podzolic and Hydromorphic soils takes place. For this reason, studies in transitory climatic contexts with different rocks are suggested. Moreover,

comparative tests with models based on gammaspectrometric data, disregarding the redistribution of gammaemitters radionuclides during supergenic alterations are suggested.

Key-words: Radon Distribution; Landscapes; Supergenic Processes; Latosol – Podzolic Transformation System

1 INTRODUÇÃO

A mais importante contribuição desta pesquisa é a apresentação do conhecimento capaz de permitir a construção de modelos previsionais adaptados à seleção das áreas com taxas elevadas de **geração, emanação, migração e exalação** do gás radioativo radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn) em paisagens tropicais úmidas. Tendo como referência rochas graníticas inalteradas com teores normais e homoganeamente distribuídos em U e Th, os modelos visualizados baseiam-se nas inter-relações dos principais produtos da alteração supergênica que ocorrem nas vertentes, onde se incluem materiais pedogenéticos radioanômalos com permoporosidades elevadas, com elementos do clima atual. Através de tais modelos, é possível delimitar os locais com os fluxos mais intensos de Rn, permitindo determinar as residências com risco potencial de contaminação das atmosferas internas por este radionuclídeo natural.

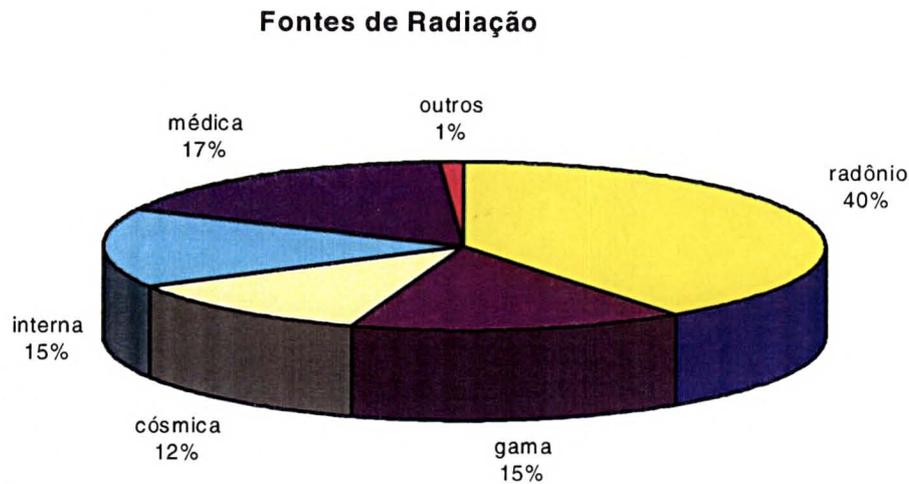
Exposição¹ à radiação representa um risco potencial para os seres humanos. Sabe-se que **efeitos somáticos e genéticos** podem ser induzidos pelas radiações. Efeitos somáticos são os que se manifestarão durante o tempo de vida do indivíduo, entre os quais o mais importante é a indução de várias formas de câncer. Efeitos genéticos tomam a forma de aberrações cromossômicas, que podem transmitir-se para as gerações seguintes. Uma componente significativa à exposição provém das radiações cósmicas secundárias produzidas pela interação de raios cósmicos com a atmosfera terrestre. No entanto, a maior parte corresponde à radioatividade do U e do Th, e seus descendentes, e ao potássio (^{40}K), presentes nos materiais da superfície terrestre (Figura 1). A exposição pode ser na forma de radiação gama externa e pela inalação do gás radioativo radônio, gerado nas **cadeias de decaimento²** do ^{238}U e do ^{232}Th . A variabilidade na dose de exposição deve-se às diferenças locais da radioatividade das rochas e solos, além da altitude e latitude geomagnética no caso das radiações cósmicas.

Historicamente a radiação ambiental tem sido considerada como justificativa para que se apliquem doses médicas de radiações artificiais nos seres humanos. No entanto, nas últimas duas décadas, uma das principais preocupações dos cientistas e das autoridades

¹ Exposição mede a ionização provocada pela radiação em determinada quantidade de matéria. No Sistema Internacional de medidas (SI), a unidade é o COULOMB / Kg (C / Kg). A unidade histórica é o ROENTGEN (R), igual a $2,58 \times 10^{-4}$ C / Kg.

² Cadeias de decaimento ou famílias radioativas são seqüências de radionuclídeos gerados a partir de um "elemento pai", por desintegrações sucessivas, até alcançar um elemento final estável. O ^{238}U e o ^{232}Th são os primeiros membros, ou "pais", de 2 famílias ou cadeias radioativas naturais, geradoras dos isótopos de radônio ^{222}Rn e ^{220}Rn , respectivamente.

FIGURA 1 – FONTES DE RADIAÇÃO QUE AFETAM O AMBIENTE ANTRÓPICO



FONTE: Extraída de SINNAEVE et al. (1984)

sanitárias e ambientais mundiais tem sido com os níveis de radiação no interior de habitações. Tal preocupação tem origem na constatação de que doses de radiação até então consideradas fracas podem induzir o aparecimento de tumores cancerígenos até 20 ou 30 anos após uma irradiação (SOLIANI; POUPEAU, 1993). Lê-se no jornal Folha de São Paulo de 09/10/97: *“Pequenas doses de radiação podem ser muito mais danosas à saúde do que se imaginava, segundo artigo publicado hoje, 9/10/97, na revista britânica ‘New Scientist’. Os autores afirmam que mesmo as doses abaixo do nível internacionalmente aceito podem danificar o material genético humano”*.

Assim, a mudança de perspectiva sob a qual se encaravam as radiações nucleares naturais refletiu-se nos relatórios da *United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation* - UNSCEAR, que durante muito tempo dedicou apenas algumas notas à radiação natural. Em 1982 a radiação natural passou a ocupar cerca de 100 páginas do relatório, posteriormente chegando a mais de 800. Nesse clima, cálculos foram refeitos e a média da dose estimada de radiação³ passou de cerca de 1 mSv para 2 mSv ao ano, com a introdução do conceito de *dose equivalente* ou *dose efetiva*. Desta maneira, as inúmeras

³ Dose Equivalente ou Dose Efetiva (ou ainda “Dose Biológica”) no Sistema Internacional (SI) tem como unidade o SIEVERT (Sv). Além da energia absorvida por unidade de massa (*Dose Absorvida*), o conceito de Dose Equivalente considera os efeitos biológicos causados, através, principalmente, de coeficientes representativos da qualidade das radiações e da sua distribuição nos organismos.

anomalias radioativas existentes em todo o mundo transformaram-se em grandes preocupações (SINNAEVE et al., 1984).

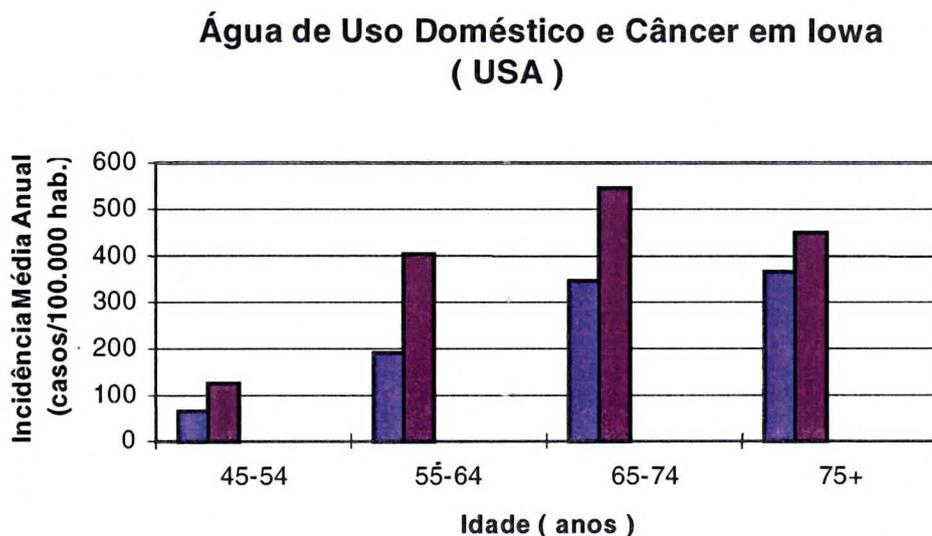
O radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn) e seus descendentes ^{218}Po , ^{214}Po , ^{212}Bi e ^{212}Po , os mais significativos, são responsáveis por mais de 40% da dose radioativa natural recebida pelos seres humanos no interior de habitações. Deve, necessariamente, ser lembrado em toda e qualquer consideração ambiental e sanitária, seja envolvendo trabalhadores específicos ou a população em geral. A possibilidade de inalação do radônio e seus descendentes, e a subsequente deposição dos seus produtos de decaimento é particularmente nociva para o sistema respiratório, uma vez que são emissores de **partículas alfa** de alta energia e se desintegram com novas emissões de partículas. Igualmente preocupante é a ingestão de radônio e seu precursor nas cadeias de decaimento radioativo, Ra, através da água proveniente de mananciais subterrâneos.

Levantamentos efetuados na Europa e nos Estados Unidos, têm encontrado com frequência residências onde os níveis⁴ interiores de radônio situam-se entre 2.000 e 50.000 Bq.m⁻³, quando os níveis aceitáveis, recomendados pela **United States Environmental Protection Agency** – USEPA, são da ordem de 150 Bq.m⁻³ (NERO, 1988). Em paralelo aos estudos de caráter regional, executados principalmente em países desenvolvidos, pesquisas específicas têm obtido sucesso em relacionar níveis de radônio no solo e no interior das habitações, conduzido pelo ar ou pela água, com taxas de mortalidade e morbidade elevadas relacionadas com câncer de pulmão e bexiga. No estado do Maine (USA), HESS et al. (1979), citado por BEAN et al. (1982a), associaram as altas taxas de mortalidade por câncer de pulmão, em vários condados daquele estado, com residências contaminadas por elevados níveis de radônio proveniente de substratos graníticos. No estado de Iowa (USA), dados coletados no período de 1969 a 1978, em 28 cidades deste estado americano, comprovaram um aumento muito significativo de casos de câncer de pulmão naqueles segmentos das populações que consumiram águas com teores de ^{226}Ra superiores a 111 mBq.l⁻¹, conforme mostrado na Figura 2 (BEAN et al., 1982b). Da mesma forma, na comunidade de Umhausen, Tirol (Austria), pesquisas obtiveram sucesso em relacionar as altas taxas de mortalidade por câncer de pulmão com níveis extremamente elevados de radônio no solo e no interior das residências locais (ENNEMOSER et al., 1993a , citado por PURTSCHELLER et al., 1995). No Brasil, LIMA e BONOTTO (1994) obtiveram dados alarmantes relativos a teores de ^{222}Rn , com até 790 Bq.l⁻¹, ao analisar

4 BECQUEREL (Bq) é a unidade de Atividade no Sistema Internacional (SI). Um Bq é igual a uma desintegração por segundo (1 Bq = 1 dps). A unidade histórica de Atividade é o CURIE (Ci), igual a $3,7 \times 10^{10}$ dps (1Ci = $3,7 \times 10^{10}$ Bq).

águas de fontes situadas no município de Águas da Prata – SP, resultados estes da mesma ordem de grandeza que aqueles encontrados em águas provenientes das áreas graníticas do Maine (NERO, 1988).

FIGURA 2 – TAXAS MÉDIAS ANUAIS DE INCIDÊNCIA DE CÂNCER DE PULMÃO EM HOMENS, POR FAIXA DE IDADE, RELACIONADAS COM O CONSUMO DE ÁGUA DOMÉSTICA EM IOWA, USA. AS COLUNAS MENORES REFEREM-SE AOS SEGMENTOS DA POPULAÇÃO QUE CONSUMIRAM ÁGUA COM TEORES MÉDIOS DE ^{226}Ra ABAIXO DE 111mBq.l^{-1} E AS MAIORES ACIMA



FONTE: Extraída de BEAN et al. (1982b)

Estes motivos, nos últimos 20 anos, levaram grande número de países a desenvolverem amplas e sistemáticas campanhas de detecção e pesquisa do radônio no ambiente natural e em interiores. Instituições de renome como o *United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation – UNSCEAR*, *United States Environmental Protection Agency – USEPA*, *International Atomic Energy Agency – IAEA* e *United States Geological Survey – USGS*, entre outras, estão diretamente envolvidas com o tema em pauta. Assim, tendo em vista os riscos descritos, vários países estabeleceram limites para os níveis interiores de Rn, acima dos quais são recomendadas ações remediadoras (Tabela 1).

No Brasil, nos anos 70 e 80, como consequência dos trabalhos de exploração mineral visando a detecção de minérios radioativos, efetuados pela Comissão Nacional de Energia Nuclear - CNEN, Companhia de Pesquisa de Recursos Minerais – CPRM e Empresas Nucleares Brasileiras S/A – NUCLEBRÁS, vários depósitos e inúmeras áreas radioanômalas foram comprovadas. Além das jazidas e depósitos delimitados nos estados

do Paraná, Minas Gerais, Goiás, Bahia, Ceará e Paraíba, inúmeras áreas com elevada radioatividade também foram detectadas em todo o País. Apesar de tal quadro, são ainda incipientes as pesquisas sobre os riscos de contaminação radioativa, pelo radônio e seus descendentes, das populações que habitam essas áreas. As instituições que já desenvolveram ou vem desenvolvendo algum tipo de pesquisa sobre o radônio são a Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN, através do Instituto de Engenharia Nuclear - IEN, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN, Instituto de Radioproteção e Dosimetria - IRD e Centro de Desenvolvimento de Tecnologia Nuclear - CDTN, a Universidade Federal do Pará - UFPA, através do Centro de Geociências e do Departamento de Geofísica, a Universidade Federal de Pernambuco - UFPE, através do Departamento de Energia Nuclear, a Universidade Federal do Paraná – UFPR, através do Departamento de Geologia, a Universidade Federal do Rio Grande do Sul – UFRGS, através do Departamento de Engenharia Nuclear, a Universidade do Estado de São Paulo – UNESP, através do Departamento de Petrologia e Metalogenia e a Universidade do Vale do Rio dos Sinos – UNISINOS.

TABELA 1 – RISCO COMPARATIVO DE CÂNCER DE PULMÃO PARA DIFERENTES NÍVEIS DE CONCENTRAÇÃO DE RADÔNIO EM INTERIORES

Concentração Interna de Radônio pCi/l	Estimativa de Câncer Fatal de Pulmão/1000	Níveis de Exposição Comparativos	Risco Comparativo Estimado
200 (ou 7.400 Bq.m ⁻³)	440-770	1.000 vezes a média dos níveis externos	mais de 60 vezes o risco de não fumantes
100	270-630	100 vezes a média dos níveis internos	4 maços/dia de cigarros ou 20.000 raios X de tórax por ano
40	120-380	100 vezes a média dos níveis externos	2 maços de cigarros ao dia
20	60-210		
10	30-120	10 vezes a média dos níveis internos	1 maço de cigarros ao dia
4 (ou 148 Bq.m ⁻³)	13-50	10 vezes a média dos níveis externos	5 vezes o risco de não fumantes
2	7-30		
1	3-13	média dos níveis internos	o risco de câncer fatal de pulmão de não fumantes
0,2	1-3	média dos níveis externos	20 raios X de tórax por ano

FONTE: Extraída de NUHFER et al. (1993)

NOTAS: 1) *Tabela elaborada pela EPA (Environmental Protection Agency), baseada em estimativas indiretas.*
 2) *A EPA recomenda ações remediadoras para níveis interiores de radônio acima de 4 pCi/l, 10 vezes a média dos níveis externos. O nível de ação em países europeus é 10 pCi/l.*
 3) *Valores entre 54,05 e 1.351 pCi/l (2.000 e 50.000 Bq/m³ no SI) têm sido comumente registrados em levantamentos de campo na Europa e Estados Unidos.*

Sabe-se que o Rn é originado nas rochas e solos contendo U e Th, como parte do processo de decaimento radioativo desses elementos. No entanto, ao se consultar a literatura especializada, constata-se que a maioria dos levantamentos mundiais tem sido conduzidos por **critérios estatísticos** e **político-administrativos**, através de varreduras sistemáticas de todas as habitações de uma região, o que tem implicado no investimento de grandes somas (NERO, 1988). Quando se usaram critérios geológicos, para direcionar os levantamentos, estes apoiaram-se em **modelos litoestruturais**, sem levar em conta o papel dos processos supergênicos na redistribuição do U e do Th, precursores do Rn, a exemplo dos levantamentos relatados por AKERBLOM et al. (1984), GUNDERSEN et al. (1992), PURTSCHELLER et al. (1995), SILVA e MENDES (1996), OLIVEIRA et al. (1997) e APTE et al. (1999), entre outros.

Para que substratos geológicos sejam potencialmente favoráveis à liberação de radônio, devem ser enriquecidos em U e Th (Ra) e fraturados (**modelo litoestrutural**). Estas não são, porém, condições suficientes, principalmente em zonas de clima quente e úmido, onde importantes **coberturas pedogenéticas** são desenvolvidas e recobrem as rochas. Em tal contexto, outras propriedades do terreno são fundamentais, como tipo e espessura de solos, porosidade e permeabilidade secundárias, e distribuição da umidade, esta influenciada pelas relações espaciais entre o nível freático do aquífero e a atual superfície do terreno. Tais fatores afetam a redistribuição do U e do Th, e podem intensificar a geração e emanação do radônio, além de proporcionar caminhos para a sua difusão / convecção e transporte pela água, podendo resultar em altas taxas de exalação. Desta maneira, quantidades significativas de radônio podem ser geradas e se mover por distâncias consideráveis, através dos solos até a superfície. Sob tais condições, mesmo rochas com teores normais em U e Th podem se transformar em potenciais fornecedoras de quantidades apreciáveis de radônio, tornando o problema mais complexo. A partir da interface solo/ar, a entrada e acumulação do radônio em interiores irá depender, principalmente, de fatores meteorológicos e da arquitetura das habitações.

O significado de tal conhecimento é por si só evidente. Ao se adotarem critérios geológicos / pedológicos, ao invés de somente litoestruturais e estatísticos, grande rapidez e economia de recursos seriam alcançadas pela priorização de áreas a pesquisar, sem que isso signifique a perda de consistência dos dados coletados. A contribuição pretendida envolve a apresentação e utilização de uma metodologia de estudo capaz de relacionar parâmetros climáticos, intempéricos, pedogenéticos, morfogenéticos, hidrogeológicos e geoquímicos, entre si e com os processos radioativos de geração, emanação, migração e exalação de radônio. Tal metodologia é necessária em contextos onde os fatores climáticos

promovem o desenvolvimento de grandes espessuras de solos sobre as rochas pré-existentes, o que torna as medições do radônio e seu monitoramento um problema complexo. Este estudo enfoca o macroambiente tropical úmido com cobertura de florestas, excluindo as demais áreas. A possível aplicação dos modelos aqui discutidos em áreas de transição para savanas e cerrados e para o subtropical, não constitui o alvo central desta pesquisa.

1.1 CARACTERIZAÇÃO DO PROBLEMA

1.1.1 Revisão Bibliográfica

Até a década de 80, dentre os trabalhos de pesquisa sobre radônio efetuados em vários países, sejam de caráter regional ou no interior de residências, apenas uma pequena parte foi efetuada utilizando-se critérios geológicos e, neste caso, com base em modelos litoestruturais. Somente no decorrer da atual década, algumas pesquisas passaram a considerar as coberturas pedogenéticas e a conseqüente redistribuição superficial dos radionuclídeos U e Th, iniciadores das cadeias de decaimento radioativo geradoras dos isótopos de radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn), como fator importante no controle do radônio do solo. No entanto, tais estudos foram baseados numa visão verticalista das diferenciações pedogenéticas, carecendo de uma análise tridimensional de tais diferenciações para efetivamente determinar as condicionantes da distribuição do Rn nas paisagens.

Redistribuição de U e Th no Ambiente Superficial

Trabalhos importantes envolvendo o estudo da redistribuição dos radionuclídeos U e Th na parte superior das rochas expostas à atmosfera, embora desenvolvidos sob motivação econômico-exploracionista, mas importantes para este estudo por enfocarem a atuação de processos intempéricos e pedogenéticos, são devidos a ADAMS e RICHARDSON (1960), com os estudos sobre as concentrações de Th, U e Zr em bauxitas; SAMAMA (1971), relacionando depósitos de minérios, entre os quais os de U, com intemperismo de rochas fonte nos continentes adjacentes; TIEH et al. (1980), estudando a liberação de U de rochas graníticas durante o intemperismo *"in situ"* e erosão inicial e a GUTHRIE e KLEEMAN (1986), sobre as mudanças na distribuição do U durante o intemperismo de granitos.

Mais recentemente, um grupo de pesquisadores australianos vem se aprofundando no entendimento de como os **levantamentos radiométricos aéreos** podem ter uma análise mais apurada ao se considerarem os efeitos da lixiviação e do enriquecimento seletivos de U e Th, causados pelos processos supergênicos sobre rochas portadoras desses radionuclídeos, nos dados gama registrados. DICKSON et al. (1996) defendem um aperfeiçoamento da interpretação de levantamentos aéreos de raios gama utilizando modelos geomorfológicos e de intemperismo. Consideram a utilização destes dados, na interpretação de levantamentos radiométricos aéreos, uma nova abordagem capaz de otimizar a interpretação destes levantamentos. Na mesma linha, DICKSON e SCOTT (1997) advogam a utilização de dados geoquímicos superficiais para uma melhor interpretação de levantamentos aéreos de raios gama. Estes autores discutem como diferentes tipos de rochas se comportam durante o intemperismo e pedogênese, quanto à lixiviação e/ou enriquecimento seletivo em U e Th nos 30 centímetros iniciais do solo, e sua influência na resposta gama dos levantamentos aéreos. Por seu turno, WILFORD et al. (1997), objetivando a aplicação da espectrometria aérea de raios gama no mapeamento de solos e regolito e em geomorfologia aplicada, enfocam a diferenciação entre fontes gama primárias e secundárias, estas devidas ao intemperismo que modifica a distribuição e concentração iniciais dos radionuclídeos da rocha. Afirmam que **“respostas de raios gama de material rochoso são geralmente bem entendidas, diferentemente das respostas e distribuição de radioelementos em material intemperizado”**.

No Brasil, SILVA (1994), visando estabelecer uma abordagem sistemática na utilização de dados aerogamaespectrométricos no estudo de corpos granitóides, com base na análise da distribuição dos radioelementos dessas litologias, aplicou a espectrometria de raios gama na classificação de onze corpos granitóides selecionados no Escudo Paranaense. Para tanto utilizou-se dos dados de espectrometria gama aerotransportada do Projeto Aerogeofísico Serra do Mar Sul (CPRM, 1978, citado por SILVA, 1994), o qual envolve o estado do Paraná.

O citado pesquisador constatou que, considerando-se a pequena profundidade de investigação do método, na sua área de estudo cerca de 70% das respostas espectrométricas sobre os corpos graníticos são provenientes dos solos, sendo as demais originadas por rochas com grau variável de intemperismo. Verificou, assim, que ensaios de correlação entre teores médios de radionuclídeos obtidos por métodos químicos convencionais em amostras de rocha e teores médios da aerogamaespectrometria, representativos dos corpos graníticos, não mostram consistência em áreas com coberturas residuais, devido tanto aos processos geoquímicos secundários quanto à representatividade

amostral dos métodos. A falta de informações sobre a distribuição dos radioelementos e suas relações mineralógicas, mais o comportamento destes no complexo material resultante da alteração supergênica dos granitóides, impossibilitam análises detalhadas destas relações. Entre outras conclusões importantes, aquele autor afirma que os teores aerogamaespectrométricos não estão relacionados exclusivamente aos teores químicos originais das rochas, refletindo, predominantemente, o tipo e a intensidade dos processos intempéricos.

Uma outra contribuição significativa a esta linha de investigação foi efetuada por SOUZA (1998), quando do estudo de anomalias aerogamaespectrométricas de K, U e Th existentes na quadrícula de Araras, estado de São Paulo. Esta autora concluiu que as referidas anomalias tem sua origem em parte relacionadas com os processos de diferenciação pedogenética, a partir de rochas com teores normais dos radionuclídeos mencionados, e em parte devida à intensa e sistemática utilização de fertilizantes fosfatados e potássicos, decorrente do manejo agrícola na área. Anomalias de U e Th predominam em Latossolos Roxos, ocorrentes em áreas elevadas com relêvo suave e declividades raramente superiores a 7%.

Os resultados obtidos pelos autores citados, vem corroborar a premissa de que ainda pouco se conhece da capacidade de aplicação do método aerogamaespectrométrico em áreas intensamente intemperizadas, evidenciando a importância dos processos intempéricos e pedogenéticos na redistribuição dos radioelementos das rochas durante a evolução das paisagens.

Radônio nas Paisagens

Como constatado, pesquisas envolvendo a redistribuição de U e Th na parte superior das rochas, por processos supergênicos, não são uma novidade. Da mesma forma não o são os estudos sobre os efeitos dessa redistribuição nos levantamentos gamaradiométricos, muito embora estes últimos sejam relativamente recentes. Ainda assim, as pesquisas sobre radônio nos solos e seu potencial de entrada para o interior das residências, muito pouco incorporaram desse conhecimento. Visando dar suporte a tal afirmativa, analisaremos a seguir alguns trabalhos considerados referência na pesquisa de radônio, no que diz respeito à sua relação com rochas e solos, verificando o grau de utilização de conceitos sobre a alteração supergênica das rochas e suas implicações geoquímicas em tal tipo de pesquisa.

Na Suécia, através de projeto financiado pela **Swedish Radon Commission**, foi efetuado um estudo por muitos considerado uma das referências mundiais em pesquisa de

Rn sob o enfoque geológico. Objetivou registrar tipos de rochas e solos com elevada radiação, para identificar áreas com risco de altas taxas de entrada de radônio no interior das residências a partir do solo. Foram produzidos mapas de “geo-radiação” a partir de levantamentos aerogamaradiométricos, medidas gama no solo e mapeamento do embasamento rochoso, solos e nível freático. A principal conclusão desta pesquisa relaciona alto risco de entrada de radônio em residências com solos de alta permeabilidade enriquecidos em ^{226}Ra (AKERBLOM et al., 1984). Os autores não entram em considerações de como os solos podem adquirir elevados teores de ^{226}Ra , se foram gerados a partir de granitos com teores normais em U e Th. Da mesma forma não fizeram considerações sobre a distribuição espacial dos teores, seja a nível das diferentes paisagens existentes nas vertentes ou nos perfis de solos, e quais os caminhos possíveis para o ^{222}Rn atingir a atmosfera. Assim, não está claro em que parte das vertentes se verificam as relações estabelecidas com a conclusão dos trabalhos.

NERO e NAZAROFF (1984), defendem que uma abordagem ótima para se prever as áreas com riscos potenciais de radônio, seria investigar o teor de radionuclídeos e as características dos solos em grande escala. Tal abordagem, reforçam, seria particularmente atrativa em países como os USA, onde todo o país está mapeado para fontes de U por levantamentos aerogamaradiométricos (vide Anexo 01). Nessa linha, KOTHARI e HAN (1984), citados por NAZAROFF et al. (1988b), obtiveram êxito em correlacionar a média geométrica das concentrações de Rn no interior de residências de nove comunidades americanas com a média geométrica de U no solo, este determinado a partir de levantamentos aerogamaradiométricos (eU). Também MOED et al. (1984), citados por NAZAROFF et al. (1988b), obtiveram relações semelhantes para áreas do oeste americano, usando dados aerogamaradiométricos. Ora, é sabido que anomalias gama podem não significar altos teores de radônio nos poros do solo, pois estas podem ser geradas por minerais resistatos contendo U e Th em estruturas cristalinas densas e fechadas. Por outro lado, a ausência de anomalias gama nas partes superiores das superfícies capeadas por solos, não significa necessariamente ausência de risco para radônio. Assim, a abordagem proposta seria ótima se os dados aerogamaradiométricos fossem inicialmente corrigidos para compensar os efeitos da lixiviação e enriquecimento seletivos do U e do Th, devidos aos processos supergênicos, como avaliam SILVA (1994), DICKSON et al. (1996), DICKSON e SCOTT (1997), WILFORD et al. (1997) e SOUZA (1998). O entendimento da distribuição dos radioelementos em superfície é fundamental, para não incorrer em erros consideráveis.

NAZAROFF et al. (1988b), são de opinião que embora já exista uma literatura grande e crescente sobre radônio, poucos são os trabalhos que se detêm em análises aprofundadas dos aspectos importantes do problema, e nenhum o faz de maneira objetiva e compreensível. É conhecida e aceita a importância do solo como fonte de radônio para o interior de habitações, e metodologias de estudo capazes de predizer, em bases geográficas, ocorrências de altos níveis de radônio nos solos, levariam a um decréscimo significativo dos custos das pesquisas para a identificação de casas contaminadas.

Paulatinamente as lacunas acima apontadas vem sendo preenchidas. Trabalhos mais recentes, da década de 90, tem dado maior atenção ao solo no controle do ciclo do radônio. GUNDERSEN et al. (1992), em sua publicação intitulada ***Geology of Radon in the United States***, uma parceria entre USGS, USEPA e instituições regionais, concluíram que 1/3 dos USA tem alto potencial geológico para radônio (> 4 pCi/l). Para chegar a tal conclusão utilizaram informações resultantes do cruzamento de cinco tipos de dados: ***geológicos*** (litologias com teor > 2 ppm de U); ***radiométricos***; ***características dos solos***, incluindo umidade e permeabilidade; ***concentração de Rn no interior de residências*** e ***arquitetura das construções***. No que tange ao item 2, fundamental na metodologia adotada, esses autores reconhecem que, devido à pequena profundidade de investigação dos espectrômetros de raios gama, tanto aéreos como terrestres, 20 a 25 centímetros, os dados gerados por esses equipamentos levam à subestimação do radônio nos solos, sobretudo quando os perfis são bem desenvolvidos. Assim, na metodologia adotada por GUNDERSEN et al. (1992), apesar desta levar em conta as características dos solos e reconhecer que no ambiente pedogenético os radionuclídeos de superfície são lixiviados para as partes mais profundas do perfil, e por isso a matriz de dados radiométricos não mais representa a radioatividade da rocha subjacente, mesmo assim manteve-se o enfoque litoestrutural na avaliação desses dados, não tendo sido analisados considerando-se os efeitos da pedogênese. Somente em casos específicos, em que existem dados de campo conflitantes, as correções foram efetuadas. Isto significa dizer que o "***mapa de potencial geológico de radônio dos USA***" pode estar subestimando o potencial de radônio em extensas áreas do território americano, principalmente na metade leste onde o clima mais úmido favorece um maior desenvolvimento de solos residuais que recobrem as rochas.

FLEXSER et al. (1993) estudaram a distribuição das fases pedogenéticas portadoras de U, Th e Ra e o seu efeito na taxa de emissão de Rn nos solos desenvolvidos sobre um granito situado em Ben Lomond, California, USA. Estes autores reconheceram que os processos pedogenéticos condicionaram uma considerável redistribuição dos radionuclídeos mencionados, refletindo-se nas taxas de emissão do

radônio, maiores que na rocha inalterada, a ponto de estabelecerem uma correlação entre emissão de radônio e zonagem vertical do solo. Apesar disso e da escala de detalhe dos estudos efetuados, esses autores não levaram em consideração como tais relações se comportam nos perfis dos solos desenvolvidos sobre o granito estudado, restringindo seus estudos a perfis verticais extremamente localizados.

GREEMAN e ROSE (1996), com o objetivo de estudar em detalhe os fatores que controlam a emissão de radônio (^{222}Rn) e torônio (^{220}Rn) em solos do leste americano, fizeram uma profunda revisão da literatura sobre os coeficientes de emissão de Rn em minérios de U, concentrados, rochas, minerais moídos e materiais de construção. Nos levantamentos de campo, os métodos constaram de uma amostragem orientada para representar os principais tipos e variações nas características dos solos do leste americano (*alfissolos, ultissolos, molissolos, spodossolos e inceptissolos*), desenvolvidos sobre vários tipos de rochas (*calcários, folhelhos, arenitos, granitos, aluviões e "till"*), totalizando doze amostras selecionadas. Estes autores, apesar de estabelecerem relações importantes entre os coeficientes de emissão, as fases e diferentes horizontes pedogenéticos, não relacionaram os dados obtidos com as rochas subjacentes. Desta forma não é possível avaliar determinados tipos de radioanomalias geradas durante a pedogênese, como por exemplo as ligadas a minerais resistatos. Também não é possível afirmar se os radionuclídeos são originários da rocha subjacente ou se houve aporte externo, o que, dependendo do caso, resulta em diferentes posições das anomalias nos perfis e diferentes proporções de U livre. As relevantes relações obtidas a nível de laboratório não esclarecem, entretanto, as possíveis influências nos coeficientes de emissão exercidas pela diferenciação das paisagens interligadas nas vertentes e pelos perfis de solos em relação às rochas-mãe. Também não esclarecem as relações entre as anomalias, o nível freático e a atual superfície topográfica do terreno.

No Brasil, dentre as poucas pesquisas já executadas envolvendo a contaminação por radionuclídeos naturais, algumas se destacam pela amplitude geográfica e populações implicadas. É o caso de OLIVEIRA et al. (1997), com o trabalho intitulado ***"Determinação dos Níveis de Radioatividade Natural Presente nas Águas Utilizadas para Abastecimento Público no Estado de São Paulo"***, o qual também passamos a analisar com base nos pressupostos desta pesquisa. O projeto envolveu várias instituições de grande significância nacional, e resultou de uma parceria entre a CNEN, através do IPEN, com o envolvimento do IRD, e a Companhia de Saneamento Básico do Estado de São Paulo - SABESP. Recebeu, ainda, o apoio do Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico - CNPq e da Fundação de Amparo à Pesquisa no Estado de São Paulo - FAPESP. Os

trabalhos constaram da amostragem das águas de abastecimento público provenientes de poços e reservatórios superficiais, no período de 1994 a 1996, de 315 localidades das 7 Unidades de Negócios Regionais da SABESP, do interior e litoral paulista. As amostras foram analisadas nos laboratórios do IPEN para as atividades alfa e beta e concentrações de ^{226}Ra e ^{222}Rn . Uma vez disponíveis, os dados analíticos foram tratados por métodos estatísticos. Os procedimentos executados apoiaram-se em padrões de instituições de renome, como a **World Health Organization** - WHO, USEPA, Ministério da Saúde do Brasil, e a Norma Experimental da CNEN – NE 3.01. Esta estabelece as diretrizes básicas de radioproteção sobre a potabilidade da água, e recomenda um levantamento geral em cada estado, a fim de se conhecer os níveis de radioatividade das águas destinadas ao abastecimento público. A análise conjunta dos resultados obtidos permitiu aos autores, entre outras conclusões importantes, a transcrita a seguir:

(...) “o que mostra que as concentrações variam muito de local para local, principalmente com relação às atividades de ^{226}Ra e ^{222}Rn . Esta variabilidade se deve ao fato da diversidade de condições geológicas das regiões estudadas, tão bem como dos processos de transporte destes radionuclídeos em sistemas rocha-água e do comportamento físico-químico dos mesmos”. Como se constata, este caso é um bom exemplo daquilo que vimos mencionando sobre os critérios de condução de projetos de grande abrangência geográfica, neste caso conduzido por critério administrativo – comercial – estatístico. A conclusão acima destacada, poderia ter sido obtida rapidamente se fosse adotado o critério geológico / pedológico para direcionar as pesquisas.

Na análise até agora efetuada, embora parcial, fica evidenciada a falta de universalidade dos enfoques para o estudo ambiental dos radionuclídeos originários das rochas. A questão da redistribuição superficial dos elementos, resultante da atuação dos processos supergênicos, não sensibiliza a todos da mesma maneira, como também pode ser visto a seguir. ASWATHANARAYANA (1995), em seu trabalho “**Geoenvironment – An Introduction**”, difunde, sem restrições, a aplicabilidade das relações encontradas por AKERBLOM et al. (1984), entre radônio, rochas e solos. Já DISSANAYAKE (1996), afirma que em países tropicais, geoindicadores regionais não podem ser inteiramente aplicáveis, tendo em vista o rigor do clima e suas conseqüências na geoquímica de superfície. É de opinião que os padrões ambientais e geoquímicos da WHO têm limitações em tais ambientes. Este autor também assume as relações de AKERBLOM et al. (1984) supra citadas, mas defende que as regiões tropicais úmidas necessitam ter seus padrões geoquímicos e ambientais próprios.

Em suma, o conceito de que o conteúdo de U e Th dos solos reflete o conteúdo de U e Th das rochas a partir das quais o solo foi formado, nem sempre é válido. Solos evoluídos de regiões com clima tropical úmido são profundamente lixiviados devido aos processos intempéricos e pedogenéticos. No entanto, em geral, a lixiviação é seletiva e determinadas paisagens e/ou horizontes de solo podem sofrer um empobrecimento ou enriquecimento relativos em U e Th, de modo que a relação entre solo e rocha nem sempre é direta. Essa redistribuição de elementos afeta significativamente os coeficientes de geração e emanção, o que associado a outros fatores das paisagens controla as taxas de exalação de radônio. Assim, não só rochas ricas nos radionuclídeos U e Th, e seus descendentes, são fontes potenciais de radônio. Os processos de alteração supergênica podem enriquecer determinados horizontes dos perfis de solos sobre rochas com teores normais em U e Th, transformando-os em importantes fontes de radônio.

Desta maneira, está claro que ainda não está bem compreendido quais são e como interferem os principais fatores controladores da entrada de radônio no interior de residências, notadamente as principais características físicas e químicas dos solos e suas variações espaciais. A chave que requer mais esforços para o entendimento da geração, emanção e migração do Rn no solo envolve o estudo da redistribuição em ambiente superficial dos radionuclídeos U e Th das rochas, da variação espacial da permeabilidade dos solos e dos múltiplos papéis da umidade. Enfocar os controles de radônio sob tal ótica é de fundamental importância nas regiões onde predomina o clima quente e úmido. Nestas áreas, a intensidade dos processos supergênicos leva a modificações profundas da paisagem e dos ambientes geoquímicos superficiais, fatores que, em última análise, irão controlar os níveis de radônio no solo, sua exalação, e, conseqüentemente, o seu potencial de entrada no interior das residências.

1.1.2 Hipótese

Em ambiente tropical úmido com espessas coberturas residuais, mesmo rochas impermeáveis e com teores normais e homoganeamente distribuídos em U e Th podem resultar em paisagens radioanômalas com fluxos de radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn) relativamente intensos. Em tal contexto, os produtos decorrentes da atuação nas vertentes dos processos supergênicos, durante os tempos geológico e pedológico, inter-relacionados aos níveis de umidade dos solos, controlados pelo regime hídrico do atual aquífero freático por porosidade secundária, são determinantes no controle dos processos radioativos de **geração**,

emanação, migração e, conseqüentemente, das diferentes taxas de **exalação** de Rn nas paisagens.

Embora a verificação de tal hipótese demande a integração sistêmica de dados, informações e conceitos de natureza multi e interdisciplinar, numa visão global, algumas perguntas fundamentais, relacionadas com a evolução das paisagens, necessitam respostas muito claras por conduzirem ao âmago dos prováveis modelos previsionais para Rn no contexto enfocado, como veremos a seguir.

1.1.3 Questões a Investigar

O estudo da ocorrência de radônio em contexto de espessas coberturas pedogenéticas, deverá envolver, necessariamente, o entendimento de duas fases distintas, cada uma com processos e tempos de atuação próprios. A primeira fase refere-se à estruturação interna das vertentes de uma bacia de drenagem, durante os tempos geológico e pedológico, quando, pela atuação dos processos supergênicos, ocorre a modelagem das paisagens, é desenvolvido o aquífero freático por porosidade secundária, são formados os solos e redistribuídos os radionuclídeos U e Th. A segunda, refere-se ao “sistema morfológico vertente”, cuja estrutura resulta dos processos anteriores, como suporte para o funcionamento atual dos processos radioativos de **geração, emanação, migração e exalação** do radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn). Estes processos são afetados por fatores meteorológicos, sobretudo precipitação, temperatura, pressão e ventos, refletidos no regime hídrico do aquífero freático por porosidade secundária, portanto afetados pela sazonalidade do clima. Por esses motivos, os resultados destes processos podem ser medidos em anos, meses ou mesmo dias. As principais questões a responder, para provar a hipótese, são as seguintes:

- a) Como os processos supergênicos, com ênfase nos intempéricos e morfopedogenéticos, podem transformar rochas comuns, em geral impermeáveis e com teores normais dos radionuclídeos U e Th, em coberturas residuais (regolito e solos), com permoporosidades elevadas e níveis enriquecidos nos radionuclídeos mencionados. Avaliar a evolução das estruturas do aquífero freático por porosidade secundária durante a evolução das paisagens;
- b) Como as transformações das rochas causadas pelos processos supergênicos resultam em taxas de geração, emanação, migração e exalação de Rn, em determinados horizontes do regolito e solos, mais altas quando comparadas com as mesmas taxas na rocha inalterada, e

- c) Saber como e porque diferentes paisagens, desenvolvidas sobre o mesmo tipo de rocha e sob as mesmas condições climáticas, podem apresentar diferentes taxas de exalação de Rn. Avaliar o papel da geometria e do regime hídrico do aquífero freático por porosidade na distribuição do Rn.

1.2 OBJETIVOS

O objetivo principal deste trabalho é determinar os controles dos processos radioativos de geração, emanção, migração e exalação de radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn) em paisagens tropicais úmidas sobre vertentes com espessas coberturas residuais. Com base em tal conhecimento, estabelecer uma metodologia de estudo capaz de levar à elaboração de modelos previsionais para Rn adaptados a esse tipo de contexto. Para tanto, faz-se necessário avaliar o papel dos **processos supergênicos** (intempéricos, pedológicos, morfológicos, geoquímicos e hidrogeológicos), atuantes na evolução das paisagens durante os tempos geológico e pedológico, com destaque para a redistribuição dos radionuclídeos U e Th e a constituição do aquífero freático por porosidade secundária.

1.3 MEIOS E MÉTODOS

Esta pesquisa sobre radônio nas paisagens compreendeu estudos a partir da literatura científica nacional e internacional, sendo baseada em modelos, conceitos e dados disponíveis. Os estudos, além de serem fundamentados em livros sobre as diferentes áreas do conhecimento relacionadas com o tema, envolveram publicações periódicas nacionais e estrangeiras especializadas, sendo as principais: ***American Journal of Epidemiology; anais de congressos e simpósios brasileiros de geociências; anais do Encontro Nacional de Aplicações Nucleares – ENAN; Chemical Geology; Economic Geology; Environmental Geology; Geochimica Brasiliensis; Geochimica et Cosmochimica Acta; Journal of Australian Geology & Geophysics; Journal of Geochemical Exploration; Radiation Protection Dosimetry; Revista Brasileira de Ciência do Solo; Revista Brasileira de Geociências, entre outras.*** Além disso foram efetuadas buscas através da “**internet**”, consultas e discussões com professores e pesquisadores, principalmente da Universidade Federal do Paraná – UFPR, e com diversos outros profissionais, que de várias formas contribuíram com suas opiniões e experiências. Tendo em vista a multidisciplinaridade do tema, a pesquisa foi seletiva, pautada na compreensão do objeto de estudo, os processos supergênicos e seus produtos, considerando-se a escala espacial das vertentes e os tempos geológico e pedológico. Dentro de tal perspectiva, o estudo da literatura sobre as áreas de interesse buscou dar relevância e aprofundar o entendimento dos conceitos específicos necessários e fundamentais para a comprovação da hipótese de trabalho e subsequente construção de modelos.

A seguir são apresentados as linhas teóricas gerais dos métodos adotados, procurando esclarecer o que levou a se optar por determinados conceitos, entre vários, para o bom andamento e êxito das pesquisas. São conceitos que envolvem a física nuclear e comportamento geoquímico dos membros das cadeias de decaimento do ^{238}U e do ^{232}Th , evolução das paisagens, formação de solos e distribuição do radônio nas paisagens.

A Utilização do U e do Th como Indicadores da Distribuição do Ra

O radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn) é gerado pela desintegração do rádio (Ra) nas cadeias de decaimento radioativo do ^{238}U e ^{232}Th , respectivamente. A principal característica do radônio, que lhe confere uma significância radiológica incomum, é o fato de ser um gás nobre. Como tal, uma vez formado, os isótopos de Rn tendem a escapar dos sólidos, atingindo inicialmente os vazios do material. A partir daí, é possível o seu transporte

macroscópico, seja por difusão molecular/convecção ou pelos fluxos de fluídos, podendo alcançar a atmosfera.

Um caso limite de equilíbrio radioativo, no qual a atividade do pai não cai significativamente durante muitas *meias-vidas* do filho, é conhecido como **equilíbrio radioativo secular**, sendo esta condição satisfeita pelas cadeias de decaimento radioativo que ocorrem na natureza, especialmente as do ^{238}U e ^{232}Th , aqui enfocadas. Em geral, nos estudos ambientais sobre radônio assume-se que os vários radionuclídeos das cadeias do U e do Th estão em equilíbrio radioativo secular, o que nos possibilita calcular a concentração total dos pais a partir de dados gamaespectrométricos, e a concentração de cada um dos radionuclídeos-filho a partir da concentração dos pais, com uma boa aproximação da realidade. Este conceito permite utilizar o U e o Th como indicadores da distribuição do Ra, embora eles não sejam os seus precursores diretos, o que no texto é simbolizado pela notação **U e Th (Ra)**. No entanto, correções têm de ser efetuadas no caso do ^{238}U , quando houver lixiviação geoquímica relativamente recente (mais recente que 1 Ma) de isótopos da sua cadeia de decaimento, ocasionando desequilíbrio radioativo. Na hipótese assumida nesta tese, desequilíbrio radioativo significativo deve ocorrer em áreas restritas das paisagens, como decorrência dos processos de podzolização. Já o ^{232}Th , principalmente devido a suas propriedades geoquímicas, em geral encontra-se em equilíbrio radioativo com os seus radionuclídeos-filho. Assim, uma vez concluída a análise da redistribuição superficial do U e do Th nas diferentes paisagens, ocorrida durante os tempos geológico e pedológico, em que o enfoque é nitidamente geoquímico, a partir do modelo resultante serão feitas considerações sobre o provável estado de equilíbrio radioativo entre os diferentes radionuclídeos da cadeia de decaimento do ^{238}U , nas diferentes paisagens. Este tipo de análise será efetuada contrapondo dados extraídos da literatura, relacionados com ambientes geoquímicos semelhantes aos desenvolvidos nas vertentes, enfocando as razões de atividade entre os nuclídeos-filho de meia-vida mais longa da série (^{234}U , ^{230}Th e ^{226}Ra). A análise estará apoiada nas idades relativas das principais fases pedogenéticas envolvidas na evolução das paisagens e respectivos processos geoquímicos causadores da dispersão dos radionuclídeos considerados. Com este procedimento pretende-se avaliar o impacto do desequilíbrio radioativo na concentração final do ^{226}Ra , e, conseqüentemente, na intensidade do fluxo de ^{222}Rn em cada paisagem considerada.

A opção por trabalhar diretamente com U e Th para indicar a distribuição do Ra é muito vantajosa, pois no caso, diferentemente do Ra, dispõe-se de vasta literatura científica sobre o seu comportamento geoquímico, tanto no ambiente endógeno como superficial. Isto permite dar maior robustez aos estudos sobre a redistribuição geoquímica superficial destes

radionuclídeos, fase fundamental das pesquisas para identificar e entender os controles da distribuição e das diferentes taxas de exalação de radônio nas diversas paisagens.

Paisagens e Solos

Em geral, as paisagens são formadas dentro do ambiente por interações físicas, químicas e biológicas das rochas, água, gases e matéria orgânica, durante os tempos geológico, pedológico, ecológico e tecnológico (FORTESCUE, 1980). É sabido que, em clima tropical úmido, a atuação dos processos supergênicos resulta em paisagens com importantes coberturas pedogenéticas. Os processos intempéricos geram o **regolito**⁵ a partir do qual ocorre a formação dos solos pela atuação dos processos pedogenéticos e morfogenéticos associados. Nesta pesquisa o enfoque recai sobre os solos por serem estes os principais produtos da atuação do conjunto dos processos mencionados, e período de tempo durante o qual ocorre a fase mais intensa de dispersão geoquímica superficial dos elementos das rochas, incluindo U e Th (Ra). Tal redistribuição pode gerar concentrações anômalas dos radionuclídeos mencionados, que associada a determinadas propriedades físicas dos solos e à geometria e regime hídrico do aquífero freático por porosidade, tem papel preponderante na redistribuição do Rn nas paisagens.

Enfocar os solos em pesquisas sobre paisagens ficou facilitado pelo advento do conceito de **catenas de solos**. Processos geomorfológicos interagem nas encostas com processos pedológicos, criando distintas **geofomas**, como superfícies de erosão, as quais têm grande influência nos tipos de solos e sua distribuição. Os estudos demonstraram que padrões de solos e elementos de paisagem freqüentemente coincidem, e que o conhecimento de um leva à predição do outro. A forma da superfície de uma encosta e da base da rocha intemperizada, ou **front** de alteração, e suas relações, são de importância básica para a compreensão da dinâmica de uma paisagem. É a partir do reconhecimento de relações sistemáticas entre solos e certas formas do modelado, que o conceito de catenas é de máxima importância. Então, **catenas** são seqüências de solos, aproximadamente da mesma idade, desenvolvidas a partir de material e condições climáticas similares, porém com características diferentes devido às variações na encosta e na drenagem. Este conceito, originalmente descrito por MILNE (1936), citado por GERRARD (1992), permite a ligação entre pedologia e geomorfologia. O tipo e características dos solos e sua extensão variam com a maturidade da topografia, significando que as evoluções fisiográficas e

⁵ Regolito é a camada superficial geralmente friável, proveniente do intemperismo, que recobre a rocha.

geomórficas da paisagem estão ambas envolvidas neste conceito (GERRARD, 1992). Conceito similar, toposseqüências são seqüências de solos relacionados que diferem uns dos outros, primariamente devido à topografia como um fator de formação de solos. Enquanto na catenas os solos são aproximadamente da mesma idade, segundo BIGARELLA et al. (1996), nas toposseqüências a idade dos solos pode diferir de acordo com a sua posição na vertente.

As relações mais claras entre relevo e propriedades do solo ocorrem em regiões quentes e úmidas, onde os solos situados em relevo plano possuem, quase sempre, um perfil mais profundo do que os solos que se desenvolvem na encosta. No entanto, o relevo muda com o tempo e a idade dos solos pode diferir em função de sua posição na vertente, o que explica muitas diferenças entre solos de uma toposseqüência. Caracterizando os tipos de vertentes e suas posições na bacia de drenagem, pode-se evidenciar as relações espaciais entre vertentes, solos e características das drenagens de um determinado compartimento geomorfológico, porque o movimento da água, incluído o aquífero freático por porosidade secundária, e os processos da pedogênese variam com o tipo de solo. Como solos e vertentes estão diretamente relacionados, é de se esperar que solos e ordem dos tributários também estejam. Alto grau de correlação entre tributários, vertentes e variáveis do solo são relatadas por CHORLEY e KENNEDY (1971), citado por GERRARD (1992). A interação **tributário-vertente-solo** nas bacias de drenagem é uma combinação complicada de **sistemas processo-resposta**. Uma maneira de simplificar esta complexidade é examinar as relações entre vertentes e solos e então localizar estas vertentes, e seus processos associados, na bacia de drenagem (CHRISTOFOLETTI, 1979, GERRARD, 1992).

É pelas razões apresentadas que focalizamos os solos e a feição morfológica encosta como elementos síntese resultantes da atuação dos processos supergênicos, e onde as relações objeto desta pesquisa podem ser esclarecidas. No decorrer do texto, ao nominarmos os solos, seguimos a classificação usada em levantamentos pedológicos no Brasil (CAMARGO et al., 1987). De acordo com a classificação mencionada e os principais levantamentos de solos efetuados, a maioria dos solos da zona tropical úmida congrega os solos com **horizonte B latossólico** e solos com **horizonte B textural**.

Na zona climática tropical úmida, durante a fase de intemperismo / pedogênese de rochas, podem ser gerados horizontes pedogenéticos com anomalias, positivas ou negativas em determinados elementos, com dimensões em área muito significativas, devido à intensa dispersão geoquímica desses elementos. Em alterações pouco espessas, a ocorrência deste tipo de anomalia tem pouca importância. No entanto, alterações pedogenéticas espessas podem, devido a modificações de volume, uma vez que raramente

são isovolumétricas, condicionar níveis elevados de concentrações relativas pela lixiviação dos elementos acompanhantes, mesmo sem o deslocamento do elemento, anomalias de repartição segundo GRANIER (1973).

Na escala das vertentes, a posição no relevo e o tipo de rocha são os fatores principais na determinação de várias propriedades fundamentais para a delimitação do **ambiente geoquímico superficial**. A caracterização de tal ambiente e os processos geoquímicos correlativos é básica, quando se quer entender a redistribuição na paisagem de elementos-traço metálicos das rochas, entre os quais os radionuclídeos U e Th (Ra), quando estas são submetidas a importantes alterações pedogenéticas. A redistribuição do U e do Th (Ra) nas paisagens, que se inicia juntamente com o intemperismo químico das rochas e alcança sua máxima intensidade e organização durante a fase pedogenética, será abordada separadamente no Capítulo 3, com base nos principais conceitos da “geoquímica de paisagens”, apresentados a seguir.

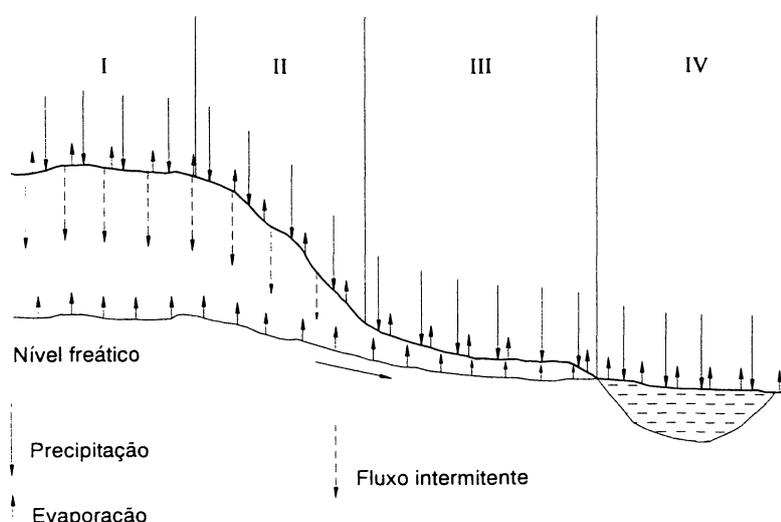
Geoquímica de Paisagens

Como a tônica é a geoquímica, serão discutidos alguns conceitos e definições úteis e importantes, já consagrados, de uma abordagem holística e sistêmica do estudo da dispersão dos elementos em superfície, a “**geoquímica de paisagens**”. Trata-se de uma especialização desenvolvida principalmente por geoquímicos russos, e cuja linha de abordagem, sobre os fenômenos químicos que ocorrem nas paisagens, será seguida no desenrolar das pesquisas relacionadas com este projeto. Através deste enfoque será possível e bastante operacional, a integração dos elementos morfológicos, pedogenéticos, hidrogeológicos e geoquímicos relacionados com os processos que atuam nas paisagens individuais ou interligadas. Os conceitos básicos desta especialização da geoquímica devem-se, principalmente, a POLYNOV (1937, 1951), PEREL'MAN (1966, 1967, 1972), GLAZOVSKAYA (1961, 1962, 1963, 1968) e KOZLOVSKIY (1972), e encontram-se sintetizados de forma objetiva em FORTESCUE (1980).

O conceito de paisagem aqui utilizado evoluiu através dos tempos a partir dos estudos de eminentes cientistas mundiais, sobretudo russos (citados por FORTESCUE, 1980). Por exemplo, DOKUCHAEV destacou a importância dos solos climáticos e zonais na classificação das paisagens russas. Por seu turno, POLYNOV combina sua vasta experiência pessoal no conhecimento das paisagens russas, com idéias geoquímicas de VERNADSKI e de GOLDSCHMIDT, destacando a importância do “intemperismo geoquímico” e “biológico” durante a evolução das paisagens.

Paisagem geoquímica é, pois, uma associação paragenética de paisagens elementares, divisores de água, vertentes, vales, lagos, etc., unidas pela migração de elementos e energia. Neste conceito, os segmentos de um perfil não são seções separadas do terreno, mas sim partes de um todo perfeitamente articulado. Relações entre o nível do sistema freático e a atual superfície do terreno, por um lado, e a natureza do substrato geológico, por outro, determinam as condições gerais de uma paisagem específica **numa escala local**. Em geral a classificação é baseada nos elementos terrestres da paisagem, sendo os banhados, rios e lagos feições subordinadas. Em escala regional ou global, o clima é um fator importante na classificação. Segundo POLYNOV (1937, 1951), há três tipos elementares de paisagens, que geralmente ocorrem juntas na mesma área ou região. Paisagem **eluvial**, terrestre, onde o nível freático ocorre sempre abaixo da superfície topográfica do terreno. Paisagem **supraqual**, onde o nível freático está próximo da superfície, ou coincidente com esta, e, **aqual**, onde a superfície do terreno encontra-se abaixo do nível da água. GLAZOVSKAYA (1961), também citado por FORTESCUE (1980), considera, ainda, uma paisagem intermediária entre as paisagens eluvial e supraqual de POLYNOV, denominada de **transeluvial**. Tais classificações, como pode ser visto, baseiam-se na relação entre as feições topográficas do terreno e a posição espacial do sistema freático (Figura 3).

FIGURA 3 – PADRÕES DE FLUXO DAS ÁGUAS NAS QUATRO PAISAGENS ELEMENTARES DE UMA VERTENTE; (I) PAISAGEM ELUVIAL, (II) PAISAGEM TRANSELUVIAL, (III) PAISAGEM SUPRAQUAL, E (IV) PAISAGEM AQUAL



FONTE: Extraída de FORTESCUE (1980)

Assim, a geoquímica de paisagens estuda o ambiente que ocorre na **superfície atual dos terrenos**, ou próximo desta, resultado da interação da litosfera com a hidrosfera, atmosfera e biosfera, durante os tempos geológico, pedológico e ecológico, além dos efeitos da atividade antrópica. Trata-se, portanto, de uma abordagem holística para o estudo da geoquímica do ambiente, uma vez que envolve o estudo de todos os elementos de uma paisagem, a sua circulação em todos os tipos de paisagens e pode incluir todos os níveis de detalhe de pesquisa, desde local até global. FORTESCUE (1980) resume os principais tópicos a serem considerados na geoquímica de paisagens: abundância de elementos; taxas de migração; fluxos geoquímicos; gradientes geoquímicos; barreiras geoquímicas e geoquímica histórica das paisagens. Em geral, o conhecimento articulado destes tópicos proporciona uma base conceitual para um estudo coerente e com lógica científica de como os elementos de uma rocha sob alteração vão se redistribuir nas paisagens.

O conceito de **superfície atual do terreno** é importante em geoquímica de paisagens, porque é nessa superfície, ou em sua proximidade, que a circulação das substâncias no ambiente alcança a máxima intensidade, devido à presença dos elementos da biosfera, como a matéria orgânica. Geoquímica de paisagens e seqüências geoquímicas de solos, envolvem conceitos similares. Paisagens e solos que são adjacentes, porém em diferentes elevações, são unidos pela migração de elementos químicos. Os horizontes dos solos, em equilíbrio com o atual clima e cobertura vegetal, são relacionados com a atual superfície do terreno. As propriedades dos solos de maior importância na dispersão geoquímica dos elementos são o **pH, Eh, matéria orgânica (MO), argilominerais e quantidade de óxidos de Fe, Al e Mn.**

Ao se estabelecer escalas, o espaço é, sem dúvida, o primeiro e mais evidente elemento a ser considerado em estudos ambientais. Os três níveis de escala mais comuns são local, regional e global. O estudo de **anomalias relativas ou de repartição**, que é um dos pontos centrais desta pesquisa, só faz sentido em escala de detalhe (GRANIER, 1973), o que neste caso significa **escala das vertentes** de uma bacia de drenagem. O tempo, por sua vez, adquire importância absoluta em geologia, possibilitando situar os processos geológicos sob uma ótica evolutiva, em relação a um determinado espaço terrestre. Numa paisagem qualquer, a migração dos elementos deve ter ocorrido a taxas variadas em diferentes épocas de sua evolução. As escalas de tempo aqui utilizadas são a geológica, em bilhões ou milhões de anos, e a pedológica, que envolve períodos de tempo necessários para a formação dos perfis de solos, em geral medidos em milhares de anos. No caso desta pesquisa, o tempo pedológico é o de maior importância, tendo em vista que em tal fase o intemperismo químico atua com maior eficiência, e em que toda a parte superior do regolito

é transformada, com a liberação dos elementos primários, neofomações e migrações. É a pedogênese que possibilita a redistribuição de forma diferenciada dos radionuclídeos U e Th (Ra) das rochas nas paisagens. Uma vez estabelecidas as escalas de estudo, e, obviamente, estarem definidos o clima e cobertura vegetal, estudos geológicos, geomorfológicos e, sobretudo pedológicos, são básicos e necessários para um entendimento amplo da redistribuição de elementos nas diferentes paisagens. Rochas, água, atmosfera, vegetação e solos serão tratados como um único sistema.

Em adição aos conceitos geoquímicos mencionados, comumente utilizados em estudos ambientais, muitos outros também aplicáveis são encontrados na literatura geoquímica direcionada à exploração mineral. Em sintonia com os conceitos acima apresentados, PEDRO (1968), citado por SAMAMA (1971), estabeleceu relações entre os processos de alteração e as características geoquímicas e neofomações de minerais de argila no horizonte de alteração das rochas ácidas. Por seu turno, SAMAMA (1971), partindo das relações obtidas por PEDRO (1968), correlacionou-as com a mobilidade geoquímica do Zn, do Cu e do U em ambiente continental. Essas correlações são de extrema utilidade prática no estudo ambiental envolvendo a dispersão geoquímica de elementos-traço e, por isso, serão aqui utilizadas. Na mesma linha destacam-se os conceitos de urânio total (Ut), urânio fixo (Uf), urânio solúvel (Us) e a relação Th/U, cuja aplicação pode nos fornecer idéias quantitativas da remobilização do U num determinado ambiente. Permitem inferências a respeito das principais fases fixadoras de cada um destes tipos de U, além do Th, durante a evolução das paisagens. Assim, Ut representa a concentração máxima deste radioelemento presente na rocha e equivale à soma de Uf e Us. O Uf representa a parcela de U fortemente fixada à estrutura cristalina dos minerais hospedeiros, sendo de difícil mobilização, enquanto Us representa o U fracamente ligado às fases hospedeiras, em geral adsorvido em superfícies, e, por isso facilmente mobilizado. Em outras palavras, a diferença entre Ut e Us representa o U não solúvel. Valores elevados de Us/Ut em rochas ígneas são indicativos de alteração deutérica ou atividade hidrotermal. Valores relativamente baixos, ao contrário, indicam lixiviação parcial do Us por processos intempéricos (PINTO-COELHO, 1986). Em produtos de alteração pedogenética, altas relações de Us/Ut indicam aporte de U de outros horizontes, excetuando-se contribuições externas. Valores baixos podem significar migração do Us e/ou concentração de minerais resistentes contendo U. No caso da relação Th/U, o Th, sendo considerado geoquimicamente imóvel (em condições de latolização), é a referência para medir a mobilidade do U.

O conjunto dos conceitos até aqui descritos, aplicados ao estudo da mobilidade do U e Th (Ra), permitirá relacionar o empobrecimento/enriquecimento seletivo de U e Th (Ra)

em solos e horizontes pedogenéticos de diferentes tipos de vertentes, resultando num conhecimento integrado que envolve clima, vegetação, rochas, solos, geoformas, distribuição da água e de elementos químicos, embasamento necessário para o correto entendimento da distribuição do Rn nas diferentes paisagens.

Distribuição de Radônio nas Paisagens

O estudo da distribuição de Rn nas paisagens passa, necessariamente, pelo entendimento de como estas se formam e evoluem sob a atuação dos processos supergênicos, e como os processos geoquímicos correlatos redistribuem o U e o Th (Ra) contidos nas rochas subjacentes, elementos cujas cadeias de decaimento radioativo são as geradoras do Rn. Numa segunda etapa, onde o enfoque recai sobre os processos radioativos envolvidos, deve ser entendido que tanto as taxas de geração e emissão de Rn, quanto sua difusão/convecção e transporte pela água até a superfície (exalação), são dependentes da permoporosidade secundária dos materiais portadores de U e Th (Ra). Além destas propriedades, o teor de umidade dos poros também exerce um forte controle nos resultados dos processos radioativos mencionados. Isto coloca em relevo a geometria e o regime hídrico do aquífero freático por porosidade efetiva, como elementos básicos na elaboração de modelos.

Os fatos acima descritos conduzem a uma análise do problema como um todo sob dois ângulos distintos, tendo em vista a ordem de grandeza dos tempos envolvidos na atuação dos diferentes processos. O fluxo de Rn nas paisagens é o resultado da atuação concorrente de duas classes de processos, supergênicos e radioativos, diferenciados não só pela sua natureza intrínseca, mas, sobretudo, pela velocidade com que geram produtos. Tais processos utilizam-se da mesma estrutura sistêmica, **sistema morfológico encosta**, mas tendo em vista as ordens de grandeza dos seus tempos de atuação, tudo ocorre como se fossem dois sistemas distintos. Os processos intempéricos / pedogenéticos necessitam de dezenas de milhares a milhões de anos para gerar produtos em quantidades e intensidades compatíveis com a escala das vertentes, enquanto os processos radioativos são instantâneos, produzindo resultados mensuráveis imediatos ao nível das paisagens. Então, o primeiro sistema, com processos cuja velocidade relativa é extremamente lenta, pode ser considerado como o sistema morfológico sobre o qual os processos do segundo atuam.

Assim, este estudo sobre radônio é modelado sobre rochas graníticas submetidas à alteração supergênica em ambiente tropical úmido, ressalvadas as áreas de relevo íngreme com declividades muito acentuadas e pouca cobertura pedogenética, situação em que o

modelo litoestrutural tem melhor aderência. Tal modelagem se justifica por não haver modelos ajustados a essa zona climática e as rochas graníticas estarem entre as de maior **background** em U e Th, cujas cadeias de decaimento radioativo são as geradoras de radônio, ^{222}Rn e ^{220}Rn respectivamente, e por sua extensa ocorrência superficial. A abordagem conceitual está fundamentada nas relações entre paisagens e solos e nos princípios básicos da geoquímica de paisagens, com enfoque no comportamento do U e do Th nos ambientes endógeno e superficial e processos radioativos envolvidos. Equações matemáticas são utilizadas para determinar a componente da variação das concentrações de Ra e Rn nos poros, como decorrência do fenômeno de transporte **via recuo** desses radionuclídeos após sua desintegração nas proximidades dos poros. A natureza e a dimensão dos poros é correlacionada com a taxa de emanção de radônio e o subsequente acúmulo nos poros.

A avaliação da consistência de modelos com a complexidade dos aqui propostos é, sem dúvida, um problema adicional a ser resolvido. Segundo SKLAR e COSTANZA (1991), modelos de paisagem baseados em processos são os simuladores mais realistas na atualidade, mas envolvem o processamento e utilização de uma grande massa de dados. Combinam informações do macroambiente com as relações espaciais e características internas do sistema que representam, abrangendo áreas disciplinares diversas. Em tal perspectiva, desde a fase inicial dos estudos, cada conjunto de informações organizado e integrado ao modelo em construção, foi precedido por uma avaliação aprofundada quanto aos seus fundamentos e à aceitação científica na sua área disciplinar. Para a avaliação final dos modelos, optou-se pelo seu confronto com modelos da literatura mundial (item Discussão), ao invés da realização de teste de campo. Tendo como referência o contexto tropical úmido, a confrontação foi pautada na verificação do nível de aderência de dados de estudos de Rn existentes, de várias regiões mundiais, aos modelos aqui propostos. Através das discrepâncias encontradas foi possível salientar as diferenças metodológicas, o que possibilitou avaliar a capacidade preditiva de cada um dos modelos no contexto focado. Tal procedimento é vantajoso e se justifica pela complexidade dos modelos elaborados e pela amplitude geográfica quanto à sua possível aplicabilidade. Em tal situação, uma área-teste em um local específico, mesmo que adequadamente selecionada, não passaria de um estudo de caso, sem a devida abrangência.

1.3.1 Estruturação dos Capítulos

O Capítulo 1 contém a parte introdutória da tese. O Capítulo 2, “O Macroambiente Tropical Úmido”, tem por objetivo caracterizar o macroambiente climático tropical úmido, e, dentro de tal contexto, analisar a evolução das paisagens, sob a atuação dos processos supergênicos, a partir de uma rocha inalterada exposta à atmosfera, até a configuração atual.

Os principais processos considerados no Capítulo 2 são os intempéricos, pedogenéticos e morfogenéticos. As escalas de estudo empregadas envolvem amplitudes regionais, ao se abordarem questões climáticas, de cobertura vegetal e bacias de drenagem, mas a atenção maior é dada à escala das vertentes. No tempo, a evolução das paisagens é analisada em termos de escalas geológica e pedológica, com ênfase nesta última, significando tempos de centenas de milhares a milhões de anos. Os resultados pretendidos envolvem o entendimento da distribuição final do regolito e solos, no interior da bacia de drenagem e, mais especificamente, nas vertentes, e, também, a evolução geométrica das vertentes e suas relações com o aquífero freático por porosidade, inicialmente ausente.

Enfim, busca-se compreender os processos e selecionar parâmetros adequados relativos às coberturas residuais, à configuração final da bacia de drenagem, das vertentes e do aquífero freático por porosidade secundária, neste caso com destaque para as relações do nível freático com a superfície atual do terreno.

No Capítulo 3, “Distribuição de U e Th em Paisagens Tropicais Úmidas”, inicialmente passa-se em revista a litogeoquímica e as principais rochas ígneas portadoras de U e Th. Em seguida, estuda-se o comportamento geoquímico desses radionuclídeos no ambiente superficial, a partir da rocha inalterada até a configuração final das paisagens.

Os processos enfocados são os geoquímicos, biogeoquímicos e pedogeoquímicos. A abordagem é norteada pelos conceitos da “geoquímica de paisagens”, e conduzida na escala dimensional das vertentes, e escalas geológica e pedológica para referenciar o tempo, como no capítulo anterior. Pretende-se evidenciar os enriquecimentos e empobrecimentos seletivos em U e Th (Ra) de determinados tipos e horizontes de solos de cada paisagem, em relação à rocha inalterada. Além disso, caracterizar os ambientes geoquímicos, as fases e os horizontes pedogenéticos fixadores dos radionuclídeos mencionados.

Na parte final do Capítulo 3, busca-se estabelecer uma associação entre teores de U e Th (Ra) e solos, o que com o conhecimento obtido no capítulo anterior, propicia uma

ampla visão diagnóstica, capaz de permitir localizar nas paisagens as áreas e horizontes com enriquecimentos relativos nos radionuclídeos mencionados. Ressalte-se que tais enriquecimentos podem ocorrer mesmo em solos desenvolvidos sobre rochas comuns, com teores normais em U e Th.

Os capítulos 2 e 3 tratam da análise evolutiva das paisagens e do comportamento geoquímico do U e do Th durante tal evolução. Obviamente o estudo do comportamento do U e do Th baseia-se nas suas propriedades geoquímicas, sem considerar as propriedades radioativas. No Capítulo 4 o enfoque recai sobre os processos radioativos envolvendo esses radionuclídeos e seus descendentes. Embora espacialmente a escala de referência continue sendo a dimensão das vertentes da bacia de drenagem, do ponto de vista do tempo, devido a natureza dos processos aqui envolvidos, este passa a ser medido em anos, meses ou dias. Isto porque, a geração, emanação e exalação de radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn) são processos radioativos cujos resultados são dependentes da sazonalidade do clima e do regime hídrico do aquífero freático por porosidade secundária.

Finalmente, no Capítulo 5, procede-se à integração e avaliação dos resultados teóricos obtidos, sob o ponto de vista da sua validade científica e operacionalidade, ao confrontá-los com modelos e dados existentes na literatura, referentes a pesquisas similares, após o que, são apresentadas as conclusões.

2 O MACROAMBIENTE TROPICAL ÚMIDO

Numa paisagem, as estruturas e as litologias fornecem as linhas gerais sobre as quais os processos supergênicos, condicionados pela combinação dos regimes térmico, hídrico e cobertura vegetal, vão atuar e modelar o relevo. Na zona tropical úmida, os processos supergênicos se manifestam, principalmente, através de ações bioquímicas. As formas do modelado de tais regiões tem fortes diferenças de acordo com o grau de umidade que comanda as características da cobertura vegetal. Em floresta densa, o fornecimento abundante de restos vegetais e sua destruição, rápida e complexa, liberam uma importante quantidade de CO₂, que leva à acidificação do ambiente, fazendo com que o intemperismo químico e a pedogênese predominem sobre a decapagem superficial.

Os elementos do clima cuja evidência sobre a pedogênese é mais direta são a **temperatura, precipitação pluviométrica e ventos**. Os ventos interferem diretamente no balanço hídrico dos solos pela ação removedora da umidade atmosférica, favorecendo os fenômenos de ascensão capilar e ressecamento das camadas superficiais, principalmente nas zonas de transição para áreas de Cerrado (ou Savana).

2.1 REGIME TÉRMICO, HÍDRICO E COBERTURA VEGETAL

2.1.1 Regimes Térmico e Hídrico

A **zona intertropical** caracteriza-se pela constância de uma temperatura média elevada durante todo o ano, não ocorrendo meses com temperaturas inferiores a 20 °C, e **amplitude térmica anual** inferior a 10 °C. As condições climáticas resultam da intersecção de fatores estáticos (ou geográficos) do clima, relevo, latitude e posição em relação ao mar, com os mecanismos atmosféricos, que se constituem nos fatores dinâmicos. No solo, as variações de temperatura afetam apenas alguns centímetros da superfície.

Apesar dos critérios térmicos serem os definidores da zona intertropical, a sua subdivisão é baseada no regime hídrico. Nesta zona o ritmo do clima é definido pela alternância de **duas estações: a chuvosa e a seca**. A chuvosa é aquela em que as precipitações são freqüentes e intensas e a seca em que há um sensível declínio das chuvas. Diferentemente, nas zonas temperadas existem quatro estações mais ou menos definidas, dentre as quais uma de chuvas mais abundantes e outra com pouca chuva ou seca. Na zona intertropical, devido à temperatura elevada, a quantidade de água correspondente ao ponto de saturação do ar é maior. Um mês que recebe, por exemplo, 20 mm de chuva é um mês seco. Em tal ambiente é necessária uma pluviosidade maior no mês, da ordem de 100 mm, para que a água possa percolar o solo e atingir o nível freático (TRICART, 1965).

A proporção dos meses secos e sua repartição no ano difere muito entre as várias regiões tropicais. A diminuição da pluviosidade ocasiona o rebaixamento do nível dos cursos d'água e do nível freático. De acordo com TRICART (1965), os diferentes regimes hídricos desta zona climática tem precipitações médias anuais e características sazonais conforme abaixo indicado:

- **Regime Equatorial Puro** – precipitações anuais superiores a 2.200 mm. Nestas condições, mesmo uma pequena diminuição de pluviosidade é suficiente para provocar uma restrição considerável dos débitos dos cursos d'água e um abaixamento do nível freático;
- **Regime Equatorial de Transição** – precipitações anuais entre 2.200 e 1.400 mm. Aqui já pode haver uma estação seca considerável, podendo levar a fortes oscilações do nível freático e à dessecação dos solos;

- **Regime Tropical Uniforme** – precipitações anuais da ordem de 1.750 mm. Em tal regime os contrastes pluviométricos são atenuados. Nenhum mês recebe menos de 15 mm, nem mais de 500 mm de chuvas;
- **Regime Tropical de Inverno Longo** - precipitações anuais em torno de 1.500 mm. A estação seca é mais acentuada, com meses recebendo abaixo de 15 mm, e
- **Regime Tropical de Inverno Curto** – precipitações anuais podendo variar de 750 a 1.500 mm. A estação seca possui vários meses muito secos, com água disponível somente nas planícies inundáveis, únicos locais onde podem existir florestas - galerias, sustentadas pela água freática pouco profunda. Fora dessas áreas não existe o desenvolvimento de florestas, e as formações herbáceas (savanas) ou arbustivas (cerrados), quando existentes, apresentam um ritmo sazonal muito forte.

2.1.2 Cobertura Vegetal

A combinação dos regimes térmico e hídrico leva à delimitação dos “Domínios Morfoclimáticos”, cujas fronteiras são coincidentes com os grandes tipos de paisagens vegetais. No entanto, este conceito não depende somente do clima, mas também da cobertura vegetal, sendo o limite entre savanas e regiões secas em torno dos 750 mm de precipitações anuais. Em regiões quentes e úmidas, os três grandes tipos de formações vegetais são: Florestas Ombrófilas (higrófilas e mesófilas); Florestas Tropófilas, e Savanas e Campos Cerrados.

As florestas Ombrófilas são florestas densas (**“evergreen forests”**) onde a temperatura média mensal é de cerca de 25 °C, com amplitude térmica inferior a 5 °C e uma precipitação anual mínima em torno de 1.200/1.500 mm. As Florestas Tropófilas são espessas e impenetráveis. São espinhosas e perdem suas folhas nos períodos secos. No NE do Brasil estas florestas encontram-se no limite das formações arbustivas em regiões que recebem 600/700 mm de precipitações por ano, com temperaturas médias anuais de 25 a 26 °C. As savanas, e seus equivalentes os campos cerrados, são formações vegetais com predominância herbácea. A Savana é uma formação adaptada a uma seca sazonal intensa, o que, aliás, também se verifica com a Floresta Tropófila. Quando as condições climáticas são mais severas tanto a Floresta Tropófila como a Savana cedem lugar à vegetação mais aberta, como a caatinga no NE do Brasil. Neste País, o Agreste, formação arbustiva com algumas árvores isoladas, uma variedade dos campos cerrados, constitui um equivalente aproximado das savanas do oeste da África.

Em resumo, florestas e savanas constituem duas subdivisões essenciais das paisagens tropicais, sendo as savanas e seus equivalentes, os campos cerrados, o limite florístico dos domínios morfoclimáticos da zona tropical úmida.

O Subtropical

No norte da África, a zona tropical úmida é separada das regiões úmidas de médias latitudes por uma grande zona de territórios áridos e semi-áridos. Em outras regiões, como no Brasil, Indochina e sul da China, as temperaturas variam gradualmente, sem que a floresta seja interrompida, continuando para fora dos limites dos trópicos, dificultando, assim, a limitação do ambiente tropical. Nessa transição, as variações geomorfológicas são pequenas e graduais. As rochas continuam a ser alteradas sem variações notáveis nos perfis dos solos. Ou seja, fora dos trópicos, quando a passagem é transacional, as variações nas formações vegetais e nos processos intempéricos, pedológicos e morfológicos são graduais. Segundo TRICART (1965), o que é afetado é a velocidade dos processos, com conseqüências nas quantidades dos produtos gerados, e não a sua natureza qualitativa.

2.1.3 Aspectos Climáticos e Florísticos das Regiões Brasileiras

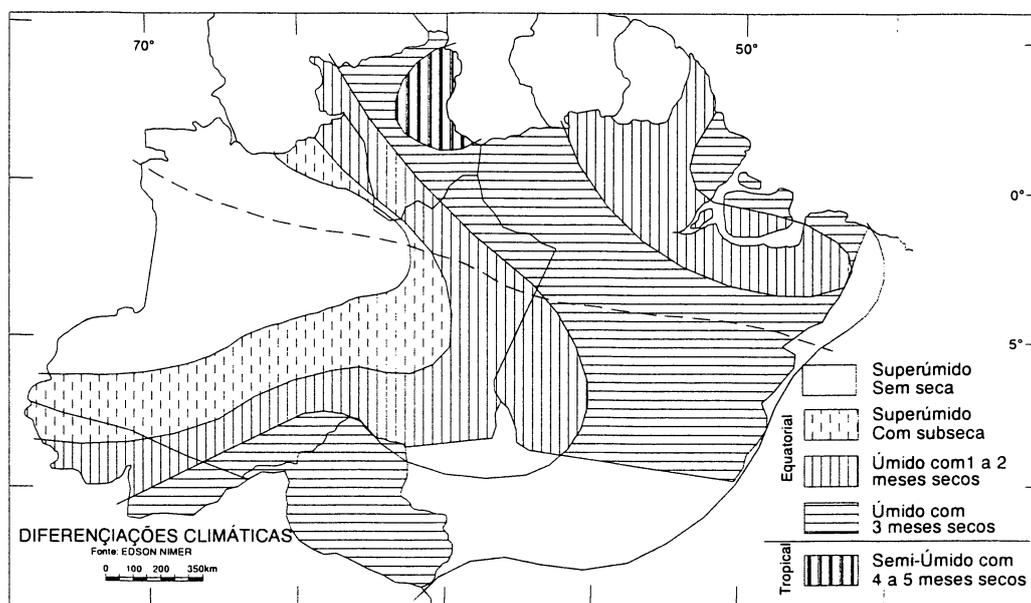
Tendo em vista os dados climáticos e florísticos das regiões brasileiras, verifica-se uma diversidade muito grande de climas no Brasil. Tem-se desde o clima equatorial, passando pelo tropical úmido e desértico, até o subtropical no sul. Da mesma forma a vegetação varia da floresta exuberante até a Caatinga, esta típica de áreas nordestinas com acentuada aridez. Tal variedade deve-se às relações específicas de cada região, entre os diversos fatores estáticos e dinâmicos do clima.

Assim, no Brasil, a ausência de seca está relacionada com áreas florestais. A existência de 1 a 2 meses secos é em geral acompanhada de florestas, e as áreas de 3 meses secos são de transição, onde, na maioria das vezes, aparecem florestas semi-decíduas. Nas áreas com 4 a 5 meses secos quase sempre predominam cerrados, e nas áreas com 6 ou mais meses secos a cobertura vegetal predominante é a Caatinga (NIMER, 1977).

Por exemplo, todo o território da Região Norte está inserido no Domínio Climático Quente, onde se verificam climas desde o super-úmido do tipo equatorial, sem seca ou com subseca, até climas semiúmidos do tipo tropical, com 1 a 5 meses secos. Apesar desta região ter uma distribuição muito homogênea das temperaturas, as suas características

hídricas são tais que se pode individualizar várias **fácies climáticas**, cuja distribuição varia desde a inexistência de mês seco até a existência de 5 meses secos (Figura 4).

FIGURA 4 – REGIÃO NORTE DO BRASIL; DIFERENCIAÇÕES CLIMÁTICAS E DURAÇÃO DOS PERÍODOS SECOS



FONTE: Extraída de IBGE (1977), "Geografia do Brasil", v. 1, p. 53

Verifica-se, assim, que os aspectos térmicos e pluviométricos médios anuais são elementos fundamentais na definição do clima. No entanto, de interesse mais direto para esta pesquisa, são os mapas que representam a marcha estacional do tempo, que mostram a duração dos períodos secos ou de menor precipitação, conforme mostrado na Figura 4. Estes mapas exibem grandezas que traduzem o teor de umidade contida nos solos e sua variação sazonal, fatores que afetam diretamente as taxas de **emanação**, **migração** e **exalação** de **radônio** nas paisagens consideradas.

2.2 INTEMPERISMO QUÍMICO E PEDOGÊNESE

Intemperismo químico é a alteração química de materiais rochosos durante a sua exposição aos fatores atmosféricos. Rápida ou lentamente, as alterações ocorrem em qualquer lugar pelas interações entre a **litosfera, atmosfera, hidrosfera e a biosfera**. É uma zona e não uma superfície de alteração, e estende-se para baixo qualquer que seja a profundidade em que a água e o ar possam penetrar. Muito embora a geração de solos constitua parte dos processos de intemperismo, formação de solos e intemperismo não são a mesma coisa. Gerando o regolito, o intemperismo prepara a estrutura mineral para formar o solo. Este deve conter pelo menos uma pequena quantidade de matéria orgânica misturada com a estrutura mineral, essencial para sua definição usual. Solo é, pois, a parte do regolito que pode suportar vegetação, constituindo-se de uma assembléia de minerais em íntima coexistência. Estes minerais podem sofrer as mais diversas **transformações**, dando origem aos diversos solos. Segundo DEMATTÊ (1983), normalmente são desenvolvidos três **horizontes principais (A, B e C)** que, no conjunto, é chamado **perfil de solo**. Embora o horizonte C seja parte do perfil de solo, ele não é parte do solo propriamente dito, representando o material rochoso original, usualmente a rocha ou o regolito. O **“solum”** é constituído pelos horizontes A e B.

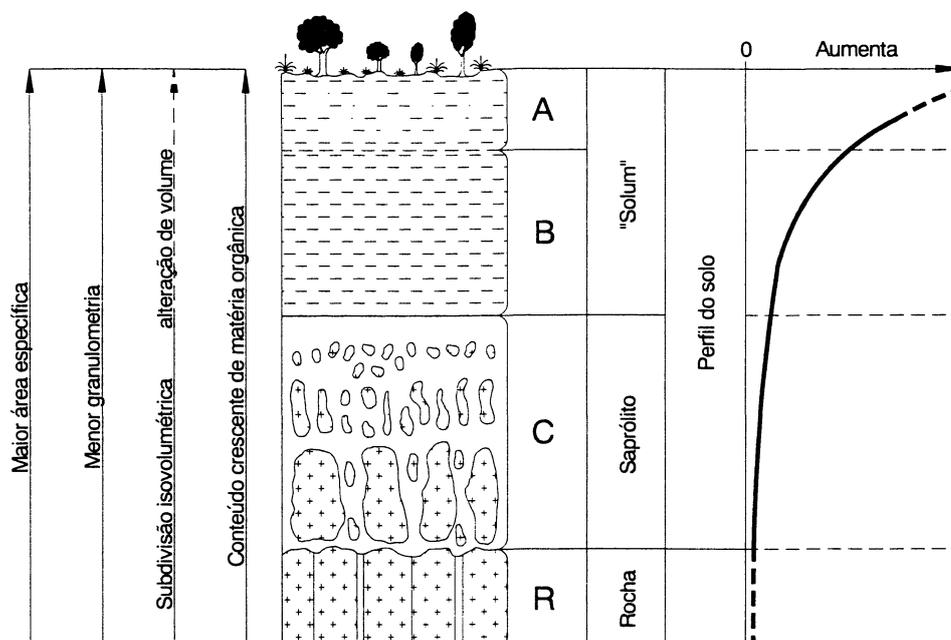
No intemperismo, o fator tempo é um dos principais controladores da decomposição das rochas, o que envolve grandes períodos de tempo, sendo, essencialmente, um processo geológico. Regolito é, então, o produto de processos de intemperismo que podem ter atuado por milhões de anos. Já o tempo necessário para formar uma série ordenada de horizontes de solo no regolito envolve períodos de tempo comparativamente muito curtos, milhares a centenas de milhares de anos, advindo daí os conceitos de **tempo geológico e tempo pedológico**. A maior dinâmica dos processos supergênicos na fase pedogenética do intemperismo, deve-se à eficiência das reações químicas, que cresce com o aumento da área superficial disponível para as reações, ou **superfície específica**⁶, no sentido vertical ascendente do perfil. O aumento desta resulta da **subdivisão isovolumétrica** dos grandes blocos de rocha durante a formação do regolito (Figura 5). Adicionalmente ao fator mencionado, temos uma participação progressivamente maior de produtos derivados da matéria orgânica nas reações, à medida que a superfície topográfica do terreno fica mais próxima.

⁶ Superfície específica de um material é a soma das superfícies de todas as partículas contidas na unidade de volume ou de peso do material ($\text{cm}^2 / \text{cm}^3$ ou cm^2 / g).

Assim, o horizonte A se forma mais rapidamente que o B e este que o C. Mesmo no caso de mudanças climáticas, os horizontes A e B se adaptam mais rapidamente, em tempo pedológico, enquanto o C e sua transição para a rocha fresca, o fazem em períodos de tempo compatíveis com a escala geológica. A elaboração de um perfil completo, sob clima tropical úmido, é um fenômeno que exigiu, pelo menos, uma boa parte do Quaternário (DEMATTÊ, 1983).

Os conceitos gerais sobre intemperismo e pedogênese, apresentados no item 2.2.1 até o 2.2.2.2, são baseados em TRICART (1965), ROSE et al. (1979), DEMATTÊ (1983), GERRARD (1992) e BIGARELLA et al. (1996).

FIGURA 5 – VELOCIDADES RELATIVAS DE FORMAÇÃO DOS DIFERENTES HORIZONTES DE UM PERFIL DE SOLOS DURANTE INTEMPERISMO QUÍMICO E PEDOGÊNESE DE ROCHAS CRISTALINAS



Velocidade das reações de intemperismo
 Intemperismo químico - Tempo geológico (10^6 anos)
 Fase Pedogênica - Tempo pedológico (10^3 - 10^5 anos)

FONTE: O autor

2.2.1 Intemperismo Químico

2.2.1.1 Fatores e mecanismos de intemperismo químico

As reações básicas do intemperismo químico, incluindo a fase pedogenética, são espontâneas, sendo as de hidrólise, oxidação, hidratação, desidratação e quelação, as

principais. Os mecanismos envolvidos na alteração geoquímica superficial decorrem da presença de um certo número de condições que caracterizam o meio evolutivo, em particular das **características climáticas (termohídricas), litológicas, de relevo, físico-químicas e tempo**. As características físico-químicas dependem inicialmente dos reativos, atmosféricos, O₂ e CO₂, litosféricos, NaCl, CaCO₃, H₂SO₄, etc., e biosféricos representados pela matéria orgânica (MO), pH e Eh (PEDRO, 1964 e 1966, citado por MELFI; PEDRO, 1977 e 1978). Os principais fatores que definem o estado do **sistema de alteração** são: **clima, material rochoso, relevo, matéria orgânica e tempo**. Tais fatores são as variáveis interdependentes do sistema, mas na prática são abordados como sendo independentes. Também não é possível hierarquizá-los, pois sua importância relativa nem sempre é a mesma.

Clima

Processos intempéricos com participação de reações bioquímicas apresentam ótima eficiência em **regiões intertropicais úmidas**, onde a cobertura vegetal protege o solo amortecendo os extremos climáticos. Em tal contexto, as reações pedogenéticas atingem sua expressão máxima. Para a pedogênese o fator de maior importância é a quantidade de água oriunda das precipitações que percola um solo, o que depende das condições climáticas da área, da porosidade do solo e do relevo local.

Material Rochoso

O material de origem condiciona muitas das propriedades do solo, nos mais variados graus. Sua influência é muito grande nos estágios iniciais de intemperização, decrescendo à medida que o manto de intemperização evolui. Após certo período de tempo, a influência do clima passa a predominar sobre a da rocha na determinação do caráter do solo.

Relevo

O relevo afeta intensamente a atuação dos processos supergênicos, condicionando a drenagem interna e externa do perfil de solos. A influência do relevo se reflete principalmente sobre a dinâmica da água, quer no escoamento superficial, no sentido lateral, como na infiltração. Sua relação com as propriedades do solo deve ser estudada somente em áreas geográficas restritas (DEMATTÊ, 1983). A topografia local, a forma e orientação

das vertentes, condicionam as características do solo na paisagem e sua distribuição, permitindo agrupar os solos em catenas. Dentro de uma catena, mudanças nas propriedades do solo ocorrem desde a parte superior até a inferior de uma encosta. Segundo BIGARELLA et al. (1996), às classes de relevo correspondem diferentes intensidades de processos pedogenéticos, resultando em diferentes tipos de solos.

O relevo muda com o tempo. Um dos problemas ao se estudar a relação solo, declividade e tempo, é que um declive pode diferir em idade e posição e, portanto, os solos podem não ter a mesma idade de um lugar para outro. À medida que aumenta a declividade, os solos são mais rasos e com menor teor de matéria orgânica, portanto, menos evoluídos (GERRARD, 1992).

Matéria Orgânica

Segundo TRICART (1965), a influência da temperatura e umidade reflete-se na decomposição da matéria orgânica (MO), muito importante para a pedogênese. A acumulação de MO à superfície do solo protege-o da erosão e facilita a absorção de água. Por outro lado, a sua decomposição fornece ácidos orgânicos fortes e ativos para a alteração intempérica, através de reações bioquímicas. Os solos mal drenados tem uma tendência *turfosa anaeróbica*, dificultando a decomposição da MO, o que permite a sua acumulação. As partes baixas das encostas, com má drenagem, mostram enriquecimento progressivo dos solos em MO, à medida que a umidade aumenta. As partes altas, ao contrário, bem drenadas, são caracterizadas por um meio oxidante e os solos coloridos por hidróxidos de ferro.

Tempo

Grande parte das propriedades morfológicas do perfil de solos requer longo tempo para a sua formação. A matéria orgânica do horizonte A provavelmente atinge o equilíbrio dinâmico mais rapidamente do que qualquer outra propriedade do perfil. De um modo geral, as propriedades do horizonte A se desenvolvem mais rapidamente do que as dos demais horizontes. Já o desenvolvimento de um horizonte B textural necessita de mais tempo, da ordem de dezenas a centenas de milhares de anos. Isto porque a formação e translocação de argila são processos relativamente lentos. Estudos recentes, como os de MONIZ (1996) e VIDAL–TORRADO (1999), defendem uma participação efetiva do processo de *adensamento por dessecação* na formação do horizonte Bt (vide item 2.2.2.3).

Assim, um determinado tempo é necessário para que um perfil de solo esteja suficientemente diferenciado e uma **seqüência catenária** se evidencie. Para que existam relações catenárias é necessário que haja **estabilidade**, pois estas resultam de uma interação complexa de formas, solos e tempo. Trata-se, portanto, de um fenômeno dinâmico, com uma dimensão no tempo (GERRARD, 1992). Os Latossolos são solos muito antigos que evoluíram durante uma fase de longa estabilidade.

Mecanismos do Intemperismo Químico

Os processos de hidrólise, oxidação, hidratação, desidratação e quelação, são os principais agentes do intemperismo químico das rochas. As substâncias carregadas em solução são ditas **lixiviadas** da rocha mãe, ou seja, **lixiviação** é a remoção contínua, por água, de material solúvel da rocha ou do regolito. A textura das rochas é decisiva, pois comanda a penetração das soluções responsáveis pelas alterações. Uma frente de ataque progride a partir das grandes estruturas macroporosas das rochas; fraturas, fissuras, juntas, e outras aberturas e da superfície de contato na base do perfil de alteração, por onde todas as rochas são atacadas pelas soluções aquosas. Mas a velocidade de alteração varia com a natureza química das rochas e a densidade de suas aberturas. A penetração da água nas rochas ocorre de duas maneiras. Segundo SCHOELLER (1962), uma penetração relativamente rápida ao longo das macroporosidades; fraturas, fissuras e diáclases, ampliando as descontinuidades, e uma penetração lenta na massa da rocha em função de sua microporosidade.

A alteração conduz a retroações positivas. Alteritas suficientemente permeáveis, nas quais a água pode circular, favorecem a alteração da rocha subjacente ou encaixante. Elas asseguram um contato prolongado da água com a rocha sã, e uma remoção dessa água propicia a continuidade das alterações. Tais mecanismos atuam bem sobre os granitos, pois as suas alteritas contêm uma forte proporção de grãos de quartzo e pouca argila, possibilitando uma boa circulação de água. Comumente duas ou mais reações operam simultaneamente a medida que a rocha vai se intemperizando. Os silicatos se decompõem principalmente **por hidrólise**, mas alterações por troca de íons, a qual inclui cátions outros que não o H⁺, também são importantes. Rochas contendo **ferro** se oxidam rapidamente. **Carbonatação, hidratação, quelação, diálise, solução simples e reconstituição química** são outros mecanismos ativos e importantes do intemperismo químico os quais atacam as diversas rochas da litosfera.

Do ponto de vista hidrogeológico, o intemperismo químico e pedogênese das rochas ígneas propicia a evolução das estruturas física e morfológica do aquífero freático por porosidade secundária, inicialmente ausente. De modo geral, a existência de um aquífero está relacionada com as condições litológicas e estruturais, que são resultantes da história geológica da área considerada, e com as suas condições de alimentação (AUROUZE, 1966). Em áreas de rochas cristalinas e metamórficas inalteradas, com diminutos espaços de poros, um aquífero freático por porosidade secundária não existe. A medida que a alteração supergênica vai evoluindo, uma zona permoporosa vai se formando sobre as rochas, em geral acompanhando a topografia do terreno. Nessas condições, parte do fluxo passa a ser predominantemente lateral ao longo do material superficial. Um aquífero freático por porosidade secundária evoluído resultará como produto da fase pedogenética do intemperismo químico.

Quanto à redistribuição dos elementos contidos nos minerais das rochas durante a fase do intemperismo químico que antecede a fase pedogenética, as reações químicas entre as soluções percolantes e os minerais da rocha ou regolito, devido aos fatores morfológicos desfavoráveis e, por conseguinte, à baixa superfície específica disponível para reação, são menos intensas e difundidas. Nestas condições, a lixiviação e dispersão dos elementos químicos presentes são comparativamente menos acentuadas para um determinado intervalo de tempo. Como consequência, o contraste entre os teores de metais de anomalias nos materiais residuais e os teores normais das rochas subjacentes é baixo. Relevo vigoroso implica em baixo contraste devido ao intenso fluxo de água e, ainda, a taxa de erosão pode ultrapassar a taxa de intemperismo químico, de maneira que a geração de metal oxidado, disponível para lixiviação, é restrito (ROSE et al., 1979).

Em clima tropical úmido, os granitos e gnaisses são as rochas que permitem a formação de produtos menos argilosos e mais permeáveis, através dos quais a percolação das águas é mais intensa. Seus produtos de alteração podem atingir espessuras entre 50 e 100 metros (TRICART, 1965).

2.2.2 Pedogênese

Processos pedológicos e geomorfológicos interagem nas encostas. Processos geomorfológicos criam distintas **geoformas**, como superfícies de erosão, as quais tem grande influência nos tipos de solos e sua distribuição. Estudos demonstraram que padrões de **solos e elementos de paisagem** freqüentemente coincidem, e que o conhecimento de um leva-nos à predição do outro. Esta relação espacial pode ocorrer em qualquer escala, porém

propriedades dos solos e tempo não devem ser relacionados diretamente à idade da superfície. Esta pode ser mais velha que os solos e sedimentos que a cobrem. É a partir do reconhecimento de relações sistemáticas entre solos, certas formas do modelado e processos geomorfológicos, que o conceito de **catenas** é de máxima importância. O real significado está no reconhecimento dos processos essenciais envolvidos na diferenciação catenária. Para que os processos tenham máxima eficiência, e o conceito possa ser adequadamente aplicado, a encosta deve mergulhar continuamente, desde a crista até a base. É incorreto aplicar o termo catenas às encostas que não atendam tal exigência (GERRARD, 1992). A correta aplicação deste conceito possibilita tomar os diferentes solos e suas variedades como elementos fundamentais no estudo das paisagens, sem necessidade de abordagem explícita dos processos morfogenéticos e outros correlatos. No entanto, tendo em vista as dificuldades para sua aplicação, o conceito de **topossequência** é de maior utilidade prática em levantamentos sobre o terreno. De acordo com BIGARELLA et al. (1996), as topossequências, além de estabelecerem nítidas diferenciações de idade entre as várias formações edáficas, fornecem informações das transformações por elas sofridas, bem como as disposições seqüenciais dos solos nas diversas paisagens.

O termo “equilíbrio dinâmico” é o mais adequado para traduzir o estado das condições de um solo. Em tais condições, energia continua sendo aplicada ao sistema, o que permite a continuidade das reações. No entanto, as propriedades do solo permanecem inalteradas ou as mudanças são muito pequenas para serem detectadas. Ou seja, depois de algum tempo as propriedades apresentam pouca variação apesar das reações continuarem. Um perfil de solo pode ser considerado em equilíbrio dinâmico quando suas propriedades diagnósticas estão, cada uma, nesta condição (DEMATTÉ, 1983).

Assim, solo é um horizonte dinâmico onde atividades complexas de natureza química, física e biológica estão acontecendo continuamente. Os **sistemas pedogenéticos** são sistemas abertos do tipo processos - respostas. Como tal, eles estão continuamente se ajustando em vários graus, escalas, e taxas, para mudar constantemente fluxos de energia e massa, gradientes termodinâmicos, e outras condições ambientais. Solo é, portanto, um escudo entre as rochas subjacentes e a atmosfera, constituindo-se num dos reflexos, talvez o principal, da história evolutiva da paisagem. Descrições detalhadas dos vários processos pedogenéticos podem ser encontradas em inúmeros compêndios disponíveis. Entretanto, neste caso, apresenta-se apenas a descrição daqueles processos de maior interesse para a pesquisa.

2.2.2.1 Processos básicos e específicos de formação de solos

Os fatores de formação de solos, anteriormente abordados, condicionando ações sobre um determinado material rochoso, dão origem ao solo, através dos processos pedogenéticos. Processos pedogenéticos básicos são as ações desenvolvidas no interior ou na superfície dos perfis pelas **adições, transformações, transporte e perda de materiais**, cada uma destas contendo vários subprocessos ou processos específicos, como veremos adiante. O balanço final destes processos individuais, em determinada combinação, resultaria na formação de um solo específico (DEMATTÊ, 1983).

Adições

É tudo aquilo que entra no sistema por variados mecanismos. Em termos geoquímicos estes mecanismos são classificados como fluxos extra paisagem positivos (vide item 3.2 do Capítulo 3). Nas adições por difusão, o solo, sendo um sistema poroso, sofre constantes mudanças na relação entre ar e água, condicionando um fluxo constante e bidirecional do ar. Desta maneira são regidos os mecanismos de adições de C, N, CO₂, etc., importantes elementos para o metabolismo dos seres vivos, neoformação de certos produtos orgânicos, oxidação e dissolução de certos minerais. Nas adições pela superfície freática, as flutuações do nível hidrostático, e mesmo a subida de soluções por capilaridade, são exemplos típicos deste caso. Adições laterais ocorrem em solos situados em encostas, como as migrações de sesquióxidos de ferro, mobilizados pelas águas de percolação lateral.

Perdas

Este item diz respeito ao processo pelo qual **os constituintes deixam o perfil**, ou fluxos geoquímicos extra paisagem negativos. Há perdas que se passam à superfície, e outras em profundidade. As perdas por enxurradas é um dos fenômenos mais importantes, tanto do ponto de vista pedológico **como** geomorfológico, pois é um dos processos de esculturação muito ativo da paisagem. As migrações laterais de substâncias dissolvidas são responsáveis, por exemplo, pela formação de níveis lateríticos. No ressurgimento, em superfície, há oxidação e endurecimento de certos compostos, como de ferro.

Transformações

Este processo diz respeito a toda modificação química, física ou biológica dos constituintes do solo, quer sejam residuais, formados ou importados, como veremos mais adiante.

Transporte

Pela própria definição do processo, observa-se a importância do mesmo na individualização de horizontes e conseqüentemente na formação dos perfis do solo. As transferências realizadas pela solução livre do solo pode ser feita de maneira intensa através das fendas deixadas após período de ressecamento do solo, nos grandes poros e nos canais oriundos da decomposição das raízes, ou, de maneira suave, nos **macro e microporos do solo**. Nem toda a transferência ligada à solução livre do solo se processa no **sentido vertical descendente**. Existem as percolações laterais e movimentação capilar vertical ascendente durante a estação seca.

Como já assinalado, dentro de cada um dos **processos básicos**, e mesmo dentro do conjunto de dois ou mais destes processos, ocorrem os subprocessos ou **processos pedogenéticos específicos**, conforme pode ser visto na Tabela 2, que reúne aqueles de interesse mais direto nesta pesquisa, e que serão abordados em itens posteriores.

TABELA 2 – PROCESSOS PEDOGENÉTICOS BÁSICOS E ESPECÍFICOS

PROCESSOS BÁSICOS	PROCESSOS ESPECÍFICOS
Adição	"Littering", Melanização e Enriquecimento
Perdas	Erosão Superficial e Lixiviação
Transporte	Pedoturbação, Melanização, Leucinização, Eluviação, Iluviação, Lessivagem, Braunificação, Rubefação, Ferruginação, Gleização, Latolização e Podzolização
Transformação	Humificação, Mineralização, Decomposição, Síntese, Braunificação, Rubefação, Ferruginação, Gleização e Podzolização

FONTE: Baseado em DEMATTÊ (1983)

2.2.2.2 Solos dos trópicos úmidos e processos de formação

De acordo com a classificação adotada nos principais levantamentos de solos efetuados no Brasil, os solos de maior expressão geográfica da zona tropical úmida

brasileira, congregam os com **horizonte B latossólico** e os com **horizonte B textural** (Tabela 3).

TABELA 3 – PRINCIPAIS UNIDADES DE SOLO DA FAO REPRESENTADAS NO BRASIL

FAO	SISTEMA BRASILEIRO	EXPRESSÃO GEOGRÁFICA (%)
Ferralsolos	Latossolos	56,0
Acrissolos	Podzólico Vermelho Amarelo	12,5
Luvissolos	Podzólico Vermelho Amarelo	11,4
Nitossolos	Podzólico Vermelho Amarelo	0,9
Gleyssolos	Solos Hidromórficos	2,8
Cambissolos	Solos com B incipiente	2,4

FONTE: Modificada de MELFI e PEDRO (1977)

Como é sabido, os solos com B latossólico são o produto de intensa lixiviação em clima quente e úmido, constituindo-se em solos profundos e bem drenados, com seqüência de horizontes A, B e C, com pequena diferenciação entre os horizontes. O B latossólico constitui um horizonte com um estágio de intemperismo avançado, baixa capacidade de troca de cátions (CTC), geralmente muito friável, poroso e permeável. No Brasil os principais grupos de solos dessa subordem são o Latossolo Roxo (LR), Vermelho Escuro (LVE) e o Vermelho Amarelo (LVA). As principais características do horizonte diagnóstico são as seguintes, segundo DEMATTÊ (1983):

- a. pequena presença ou ausência de minerais primários pouco resistentes ao intemperismo;
- b. teor de argila no horizonte B semelhante ao do horizonte A;
- c. fraca presença de cerosidades;
- d. estrutura granular muito porosa e muito pouco coesa, friáveis;
- e. fração argila dominada por caolinita e sesquióxidos;
- f. fortemente ácidos, na maior parte das vezes com baixa saturação em bases, e
- g. relação molecular K_i^7 (SiO_2 / Al_2O_3) inferior a 1,5 (igual ou inferior a 2,2, segundo CAMARGO et al., 1987).

Os solos com B textural são bem drenados, com seqüência de horizontes A, B e C,

⁷ A relação K_i decresce com o aumento do intemperismo.

havendo evidente separação entre eles. O horizonte B textural é um horizonte com acumulação significativa de argila. A argila pode ter sido formada *"in situ"*, herdada do material original ou translocada vertical e lateralmente pelas águas, formando cerosidades. As principais características do horizonte B diagnóstico, são as seguintes (DEMATTÊ, 1983):

- a. pode ocorrer a presença de minerais primários;
- b. teor de argila no horizonte B superior ao do horizonte A;
- c. presença de cerosidades;
- d. estrutura em blocos fortemente desenvolvida, e
- e. relação molecular Ki superior a 1,8.

Os grandes grupos desta subordem que ocorrem no Brasil são o Podzólico Vermelho Amarelo (PVA) e a Terra Roxa Estruturada (TRE). Os PVA ocorrem em regiões de clima quente e úmido das regiões tropicais e subtropicais. Caracterizam-se por baixa acumulação de matéria orgânica na superfície, por um horizonte profundo de eluviação e por uma zona espessa iluviada, na qual a hidrólise e posterior oxidação do Fe são responsáveis pela cor do solo.

Em áreas tropicais úmidas os Solos Podzólicos comumente ocorrem em superfícies mais jovens que as ocupadas pelos Latossolos. Estes ocupam as superfícies mais estáveis (BUOL et al., 1973, citado por SILVA et. al., 1995). O fator determinante no desenvolvimento e ocorrência destes solos é sua posição na vertente. De acordo com as classes de relevo da Tabela 4, e os principais mapeamentos efetuados no Brasil, verifica-se que os Latossolos ocorrem, principalmente, nas partes das vertentes classificadas como planas a onduladas, declives entre 0 e 8% em geral. Por outro lado os Solos Podzólicos, com B textural, ocorrem predominantemente nas porções com maiores declives de 8 até 45 %.

Ainda, na categoria ordem, temos os solos jovens que ocorrem, predominantemente, em posições de vertente de altas declividades, onde as taxas de erosão superficial são bastante elevadas, não permitindo o acúmulo de material evoluído. Em geral, são caracterizados por perfis pouco ou não desenvolvidos, seja devido à sua juventude ou porque as condições do material original ou de relevo impediram ou dificultaram o seu desenvolvimento. Os exemplos mais marcantes desta ordem são os Litossolos. Temos, também, os solos que se desenvolveram sob o controle marcante da topografia, em geral

TABELA 4 – CLASSES DE RELEVO SEGUNDO A COMISSÃO DE SOLOS (1960)

CLASSES DE RELEVO	DECLIVIDADES (%)
Plano	desníveis muito pequenos, com declives entre 0 e 3 %;
Suave Ondulado	elevações de altitudes relativas da ordem de 50 a 100 metros, com declives entre 3 e 8 %;
Ondulado	conjunto de colinas e outeiros, com declives entre 8 e 20 %;
Forte Ondulado	elevações de altitudes relativas da ordem de 100 a 200 m, com declives entre 20 e 45 %;
Montanhoso	superfície topográfica vigorosa, com grandes desnivelamentos e declives superiores a 45 %, e
Escarpado	predomínio de formas abruptas, com vertentes de declives muito fortes

FONTE: Extraída de BIGARELLA et al. (1996)

plana, nas porções mais deprimidas das vertentes, fortemente influenciados pelos ambientes que aí se formam. Um bom exemplo é o grupo dos Solos Hidromórficos, com grande variedade de subgrupos. Os perfis refletem mais os fatores locais, como a topografia ou material original, e tendem a ser pouco desenvolvidos. Um horizonte diagnóstico comum dentre vários solos hidromórficos é o Horizonte Gley (Bg ou Cg). Este horizonte é de coloração acinzentada, em geral mosqueado. Origina-se em terrenos baixos, mal drenados, com influência contínua ou prolongada do nível freático, junto à superfície ou em suas proximidades, conforme veremos adiante.

Principais Processos Pedogenéticos

O termo **eluviação** é mais abrangente que **lixiviação**. Ele inclui o movimento tanto do material em solução iônica como coloidal, e, ainda, a remoção pela água das partículas mais finas no perfil de alteração. Lixiviação refere-se à remoção do material em solução verdadeira ou iônica. Parte dos produtos eluviados pela água percolante podem ser iluviados em outros locais do perfil ou ser evacuados. Assim, **iluviação** refere-se à deposição, tanto lateral como vertical, de moléculas, sales solúveis, colóides e de pequenas partículas minerais eluviadas pela água. O principal produto da **decomposição** da matéria orgânica no solo, **humificação**, é o húmus. Constitui-se uma mistura de várias substâncias, a maioria de caráter ácido, chamada ácidos húmicos. A **mineralização** do húmus consiste na destruição de diversos dos seus componentes por reações que envolvem a formação de complexos com substâncias inorgânicas do solo.

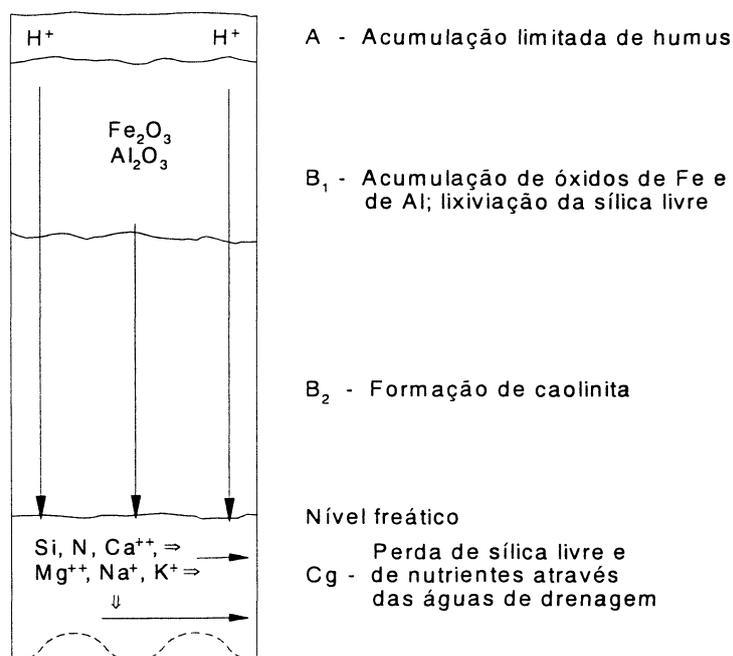
Os fenômenos acima citados são de ocorrência comum em regiões tropicais úmidas e particularmente importantes no desenvolvimento dos principais processos pedogenéticos dessa zona. Assim, em tal ambiente climático, os processos de formação de solos mais importantes são a **laterização (latolização) e podzolização**. Em seus estágios mais avançados propiciam, respectivamente, a formação de **Latossolos e Solos Podzólicos**. Além destes, destaca-se o processo denominado **gleização**.

De acordo com síntese disponível em CARVALHO (1995), a **laterização** (dessilicificação ou ferralitização) é o processo pedogenético condicionado por um pH superficial aproximadamente entre 5 e 9, permitindo lixiviação do silício na forma de Si(OH)_4 e das bases, além da precipitação do alumínio e do ferro férrico na forma de M(OH)_3 . O ferro ferroso, seja na forma de Fe^{++} ou de Fe(OH)_2 , é eliminado em condições de $\text{pH} < 5,5$. Sua permanência, sob a forma de Fe(OH)_2 precipitado, ocorrerá em condições ambientais redutoras e de pH mais elevado. Assim, no desenvolvimento dos **Latossolos** predominam os processos de dessilicificação e concentração residual de hidróxidos de Fe, e em alguns casos de Al (gibbsita). Ocorre a destruição praticamente completa dos minerais primários facilmente alteráveis, das argilas do tipo montmorillonita (2:1) e uma forte lixiviação das bases trocáveis. É típica a formação de caolinita nos horizontes superiores ácidos e remoção da sílica nos horizontes inferiores de pH neutro a alcalino.

Os Latossolos bem evoluídos, abstraindo-se os horizontes escuros mais superficiais, possuem coloração marrom-avermelhada a amarelo-ocre. São profundos (mais de dois metros), friáveis, bastante porosos e permeáveis. A caolinita é o argilo - mineral dominante, excluindo-se a base do horizonte C, onde predominam argilo-minerais 2:1, o horizonte A e o topo do B, onde a gibbsita pode ser relevante. À caolinita e à gibbsita podem estar associados óxihidróxidos de ferro, cuja concentração é dependente do teor em ferro da rocha original. Os Latossolos podem apresentar encouraçamento nos horizontes mais superiores, representados por material terroso rico em óxihidróxidos de ferro, endurecido de forma irreversível pela radiação solar. Esse material é denominado couraça laterítica. De modo geral, a variação na mineralogia do perfil é gradual, o que lhe confere uma grande homogeneidade, resultando em pequena diferenciação morfológica e textural entre os horizontes (Figura 6).

Também de acordo com CARVALHO (1995), a **podzolização** é o processo pedogenético condicionado pelo desenvolvimento de um estado ácido na superfície ($\text{pH} < 5$), que permite a lixiviação do alumínio, predominantemente na forma de Al^{+3} , juntamente com o ferro ferroso e férrico, na forma de complexos orgânicos. Neste processo

FIGURA 6 – PERFIL ESQUEMÁTICO DO PROCESSO DE LATOLIZAÇÃO



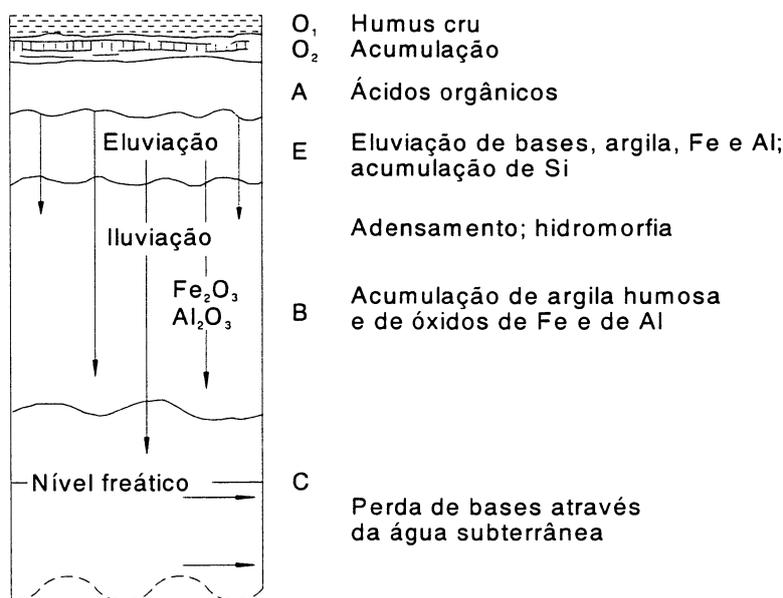
FONTE: Extraída de BIGARELLA et al. (1996)

o silício, na forma de H_4SiO_4 , precipita-se como $SiO_2 \cdot 2H_2O$ e as bases são eliminadas como cátions dissolvidos na solução lixiviante. No ambiente tropical úmido, a podzolização é influenciada pelos produtos acidificantes resultantes da decomposição da vegetação, excesso de água drenante e por rochas-mãe porosas e pobres em cálcio. Há controvérsias quanto aos principais agentes da podzolização em ambiente tropical úmido. Uns enfatizam o papel dos ácidos orgânicos como principais agentes, outros enfatizam os efeitos da alternância de umedecimento e dessecação. De qualquer maneira, os efeitos dessa influência são particularmente visíveis em solos derivados **de rochas pobres em ferro e ricas em sílica**, tais como granitos, arenitos e quartzitos. Na formação dos Solos Podzólicos há necessidade de uma lixiviação intensa, o que resulta numa quase completa alteração dos minerais intemperizáveis em argilas e óxidos. Na continuidade do processo, a eluviação de argilas coloidais do horizonte A leva à formação de um horizonte A arenoso e B argiloso.

Os **Solos Podzólicos** apresentam, imediatamente sob os horizontes A0 e A1, um horizonte cinza A2 (E) de baixo teor em material orgânico, ferro e alumínio, mobilizados na forma de quelatos. Na zona de variação sazonal do nível freático esses compostos se decompõem liberando o Fe e o Al que aí se precipitam. As precipitações ocorrem devido à

diluição da solução descendente ao se aproximar da zona saturada, de maior pH devido à iluviação de bases nesse horizonte pela diminuição da taxa de fluxo das soluções aquosas. O resultado é a manutenção da sílica de neoformação nos horizontes superiores, iluviação do Fe e do Al nos horizontes B e C e remoção parcial do Al do perfil (Figura 7).

FIGURA 7 – PERFIL ESQUEMÁTICO DO PROCESSO DE PODZOLIZAÇÃO



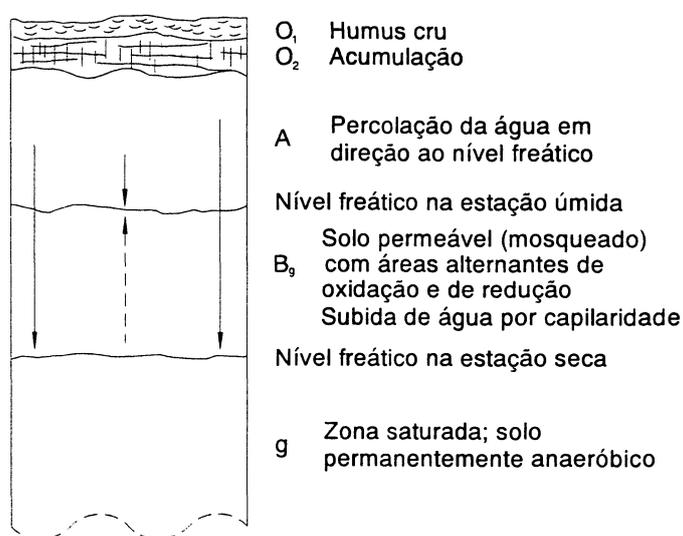
FONTE: Modificada de BIGARELLA et al. (1996)

Nos Latossolos o mecanismo de transferência de húmus é feito de forma similar à dos Solos Podzólicos, mas em pequena quantidade. Isto resulta numa fração pouco significativa de húmus e compostos húmus - ferro depositado no horizonte B, mesmo quando o fluxo de drenagem, durante os períodos de estiagem, se torna menos intenso. A rocha sendo rica em ferro, ou o húmus insuficiente para complexar todo o ferro liberado dos minerais, este poderá, da mesma forma que o alumínio, permanecer no local constituindo sesquióxidos, ou combinado com a sílica e o alumínio para formar argilo - minerais do tipo **esmectita**. As esmectitas normalmente incorporam o $(AlOH)^{++}$ e o K^+ em suas estruturas, ou podem reter este último por **adsorção**. Por isso, na **queluviação parcial** a mobilidade do K é relativamente baixa, fato não observado na podzolização, onde a queluviação do alumínio e ferro é total (CARVALHO, 1995).

A iluviação de argilas no horizonte B dos Solos Podzólicos ocorre entre as partículas do solo na forma de películas e pontes argilosas ou cerosidades. Como consequência o

perfil terá uma granulometria mais argilosa nesse horizonte (B textural). Na latolização a transferência de argilas em suspensão indica que a eluviação ocorre, mas a iluviação no horizonte B é incipiente devido à intensidade da drenagem.

FIGURA 8 – PERFIL ESQUEMÁTICO DO PROCESSO DE GLEIZAÇÃO



FONTE: Extraída de BIGARELLA et al. (1996)

Gleização (Figura 8) é o processo de redução do ferro do solo em condições anaeróbicas. O ambiente predominantemente redutor das áreas hidromórficas, está refletido nas cores pálidas, cinza-azuladas do subsolo, onde o Fe tende a permanecer no estado ferroso. Tais horizontes são conhecidos como “horizontes gley”. Mosqueamento, ferruginização e concreções de Fe são evidências da ocorrência de alguma oxidação na zona de flutuação do nível freático, próximo à superfície. A geração de FeS é comum em solos gleizados, que após drenagem podem se transformar em solos ácidos pela oxidação de sulfetos em H₂SO₄. Entre outros elementos nestes solos encontramos Mn e Ti. Os óxidos de Mn ocorrem na forma de concreções escuras, localizados normalmente abaixo da zona de oxidação do Fe, e os óxidos de Ti são encontrados em associação com os óxidos de Fe férrico. De modo geral, a lixiviação de um perfil hidromórfico é restrita devido ao fluxo lento da água, que é predominantemente lateral. Sob tais condições tendem a se formar argilo-minerais do tipo montmorillonita. Onde ácidos orgânicos ocorrem em quantidade, entretanto, o pH pode situar-se ao redor de 3 e argilas caolínicas predominarão (MOHR, citado por ROSE et al., 1979). Se a água permanece à superfície em considerável parte do ano, depósitos espessos de matéria orgânica parcialmente decomposta podem se acumular.

Solos desse tipo (Histossolos) são mais comuns em climas temperados e frios. No entanto, turfeiras também ocorrem nos trópicos.

Solos hidromórficos são freqüentemente desenvolvidos em depressões e/ou áreas de surgência de água subterrânea. Aqui o perfil inteiro é comumente submetido a uma alternância de oxidação e redução, à medida que o nível freático, raso, sobe e desce de acordo com a estação do ano. Em tal ambiente a destruição do húmus é retardada e a matéria orgânica tende a se acumular no horizonte superficial, mesmo em climas tropicais. Suas características diagnósticas são um horizonte superficial de cor cinza a preto, gradando para um subsolo pálido, cinza-azulado, comumente com estrias ferruginosas, mosqueamento e concreções.

2.2.2.3 O sistema de transformação Latossolo – Solo Podzólico

Coberturas lateríticas são os principais produtos de alteração resultantes das reações de hidrólise de silicatos. Geograficamente representam cerca de 62% dos solos do planeta, distribuindo-se, sobretudo, na zona intertropical sob condições climáticas quentes e úmidas e boa distribuição pluviométrica (CARVALHO, 1995).

Embora os sistemas de classificação definam que os Latossolos são os solos zonais das regiões intertropicais úmidas, a utilização isolada desses sistemas não é suficiente para a compreensão da evolução de uma paisagem neste ambiente climático. Tal entendimento só é possível se analisado em três dimensões (LUCAS; CHAUVEL, 1992, BOULET et al., 1993; RUELLAN; DOSSO, 1993) e na escala das vertentes de uma bacia de drenagem. Os atuais horizontes de solo são consequência de uma adaptação constante e contínua dos processos pedogenéticos, tanto aos fatores externos como internos.

Em tal perspectiva, a natureza e estrutura de uma paisagem podem ser avaliadas pelo estudo de vertentes representativas, a partir das quais pode se detalhar, através de **topossequências**, a distribuição da cobertura pedológica, dentro do que preconiza a **“análise estrutural da cobertura pedológica”** (BOCQUIER, 1973, BOULET, 1978), citados por SALOMÃO (1994). De acordo com essa abordagem, além da **diferenciação vertical** dos horizontes de solo (perfil de solos), também deve ser considerada a **diferenciação horizontal**. Ainda, segundo SALOMÃO (1994), coberturas pedológicas com diferenciação vertical e horizontal que se repetem sistematicamente, constituem os elementos fundamentais de distinção entre os **sistemas pedológicos de transformação**. Segundo este autor, a distribuição e tipologia dos solos constituem parâmetros indicadores claros das relações entre o substrato geológico, o relevo e os agentes da dinâmica externa. As

coberturas pedológicas refletem, em geral, tanto a contribuição das litologias subjacentes, como a forma das vertentes, além dos elementos climáticos e de vegetação. MONIZ (1996), reforçando a importância da mudança de paradigma na ciência dos solos, considera como um fato promissor na evolução dos conceitos no estudo da gênese dos solos, o grande acervo de dados acumulados pelos inúmeros trabalhos que estudaram os sistemas de transformação, em particular de horizontes B latossólico em B textural. Ressalta que o potencial do enfoque “**sistemas de transformação**”, no estudo da gênese dos solos, é incomparavelmente superior à abordagem tradicional do **perfil vertical**.

Na Amazônia Central, a cobertura laterítica desenvolvida no Terciário (entre 65 e 1,8 Ma) está sendo podzolizada (LUCAS et al., 1984, 1987, citados por LUCAS; CHAUVELL (1992). Nas vertentes, a podzolização progride tanto verticalmente como horizontalmente, e de jusante para montante, principalmente em locais bem drenados. Envolve a destruição dos horizontes argílico-férricos existentes, levando à formação de um horizonte A rico em sílica pela migração de Fe e Al, de modo que um horizonte arenoso sucede o horizonte argílico-férrico anterior. Inúmeros trabalhos efetuados na zona tropical úmida, em especial no Brasil e Guiana Francesa, demonstraram que as coberturas pedológicas conhecidas constituem dois conjuntos principais com influências distintas sobre a evolução do relevo. O primeiro conjunto, alvo preferencial dos sistemas de classificação de solos, constitui um **sistema em equilíbrio**, e caracteriza-se, sobretudo, por uma evolução vertical. Ocorre em equilíbrio com o modelado e apresenta variações laterais progressivas. O segundo conjunto, um **sistema de transformação**, é o resultado da substituição progressiva das coberturas iniciais. Segundo BOULET et al. (1993), as coberturas resultantes, secundárias, apresentam discordâncias de horizontes, que são oblíquos à superfície das vertentes, e progridem lateralmente transformando as coberturas pré-existentes (Figuras 9 e 10).

A rigor, tal fato já era evidenciada por TRICART (1965), quando descreve os mecanismos que levam à podzolização em ambiente tropical úmido, e afirma que os Solos Podzólicos associados aos Latossolos ocorrem caracteristicamente sob florestas ombrófilas, principalmente às expensas de rochas ácidas. Da mesma forma, mapeamentos supervisionados pela COMISSÃO DE SOLOS (1960) nos estados de São Paulo e Paraná, estudos de pesquisa no Estado de São Paulo; BARROS (1985), SALOMÃO (1994), VIDAL–TORRADO (1999) e SANTOS (1995), e, SILVA et al. (1995), estudando as coberturas de alteração superficial que ocorrem na região de Marabá – PA, entre inúmeros outros autores, também mapearam este tipo de associação nas vertentes. Segundo VIDAL–TORRADO (1999), a transição lateral de Latossolos para Podzólicos, de montante para jusante nas vertentes, é uma das mais freqüentes na paisagem tropical.

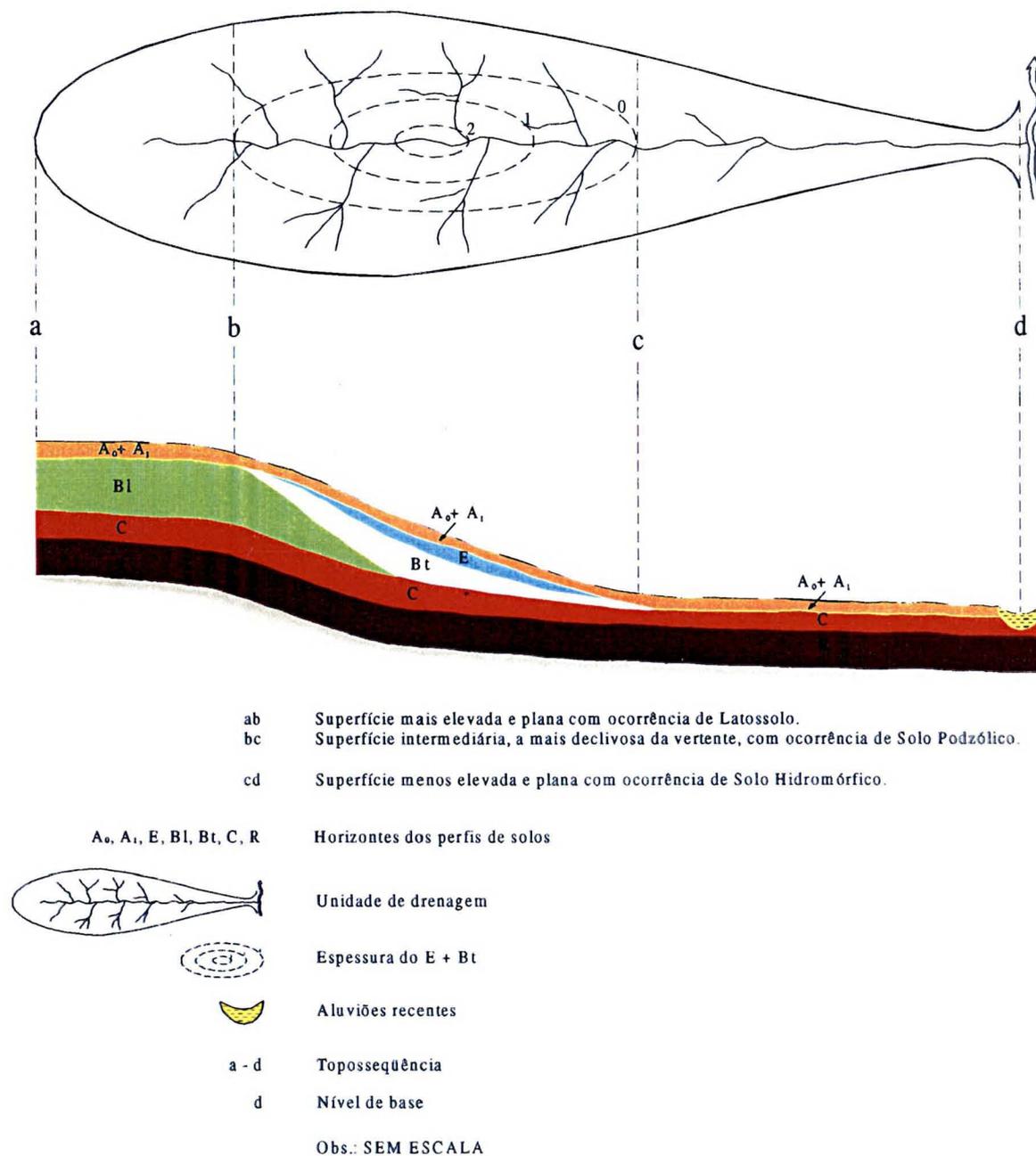
Desta forma, muito embora os sistemas de transformação caracterizados pela associação entre Latossolos e Solos Podzólicos possam ser condicionados por fatores externos, como variações climáticas e/ou movimentações tectônicas, a amplitude geográfica de sua ocorrência leva a crer que são principalmente os fatores internos, aqueles relacionados à própria evolução dos perfis de solos e da paisagem, os principais elementos que determinam o aparecimento e evolução desses sistemas. O motor da evolução são os próprios efeitos das transformações, que agem como mecanismos de “*feed – back*”. Em tal contexto, a evolução dos perfis de solos e do modelado das paisagens alteram as condições do regime hídrico subterrâneo nas vertentes, devido ao desenvolvimento e alteração das propriedades físicas do solo, sobretudo a permoporosidade. Por isso, as frentes pedogenéticas transformantes progridem verticalmente e lateralmente através das paisagens, às expensas das seqüências pré-existentes, gerando sistemas tridimensionais de alteração (LUCAS; CHAUVEL, 1992).

Em tais sistemas, os Solos Podzólicos, em geral nas encostas, desenvolvem-se às expensas dos Latossolos, em geral nos platôs. Estudos de maior detalhe, com base em dados de laboratório, indicam que os principais processos responsáveis pelas transformações são bioquímicos. Os compostos orgânicos, derivados da decomposição bioquímica da *littera vegetal*, proporcionam reações de acidocomplexação, que destroem as caolinitas, gibbsitas e oxihidróxidos de Fe, constituintes dos microagregados das partes superficiais dos Latossolos, levando, assim, à sua podzolização. O mecanismo que inicia a lixiviação lateral transformante é o bloqueamento da percolação vertical e o aparecimento de um microaquífero suspenso dentro dos horizontes originais, com drenagem lateral. A destruição progressiva das argilas caoliníticas mais superficiais e sua precipitação como caolinita secundária, gera um horizonte argiloso de baixa permeabilidade, Bt, capaz de condicionar fluxos laterais, devido ao bloqueamento progressivo dos fluxos verticais.

Com base em pesquisas efetuadas no Estado de São Paulo, SANTOS (1995), destaca os processos de e - iluviação entre os horizontes A e Bt de Solos Podzólicos, onde a migração de argilas e Fe é posterior à sua dissolução por ácidos biogeoquímicos, resultando numa concentração residual de areia no horizonte A e argila iluviada no Bt. A quebra das estruturas dos micro-nódulos argílico-férricos dos Latossolos libera o Fe e o Al, que são mobilizados, gerando material arenoso pelo acúmulo dos grãos residuais do esqueleto. No sentido de jusante o Bt torna-se hidromórfico, afina e desaparece.

No entanto, estudos mais recentes, como os de MONIZ (1996) e VIDAL-TORRADO (1999), defendem que a espessa camada superficial com horizonte Bt

FIGURA 9 – RELAÇÕES ENTRE UNIDADE DE DRENAGEM E O SISTEMA DE TRANSFORMAÇÃO LATOSSOLO – SOLO PODZÓLICO, SOBRE ROCHA GRANÍTICA EM AMBIENTE TROPICAL ÚMIDO



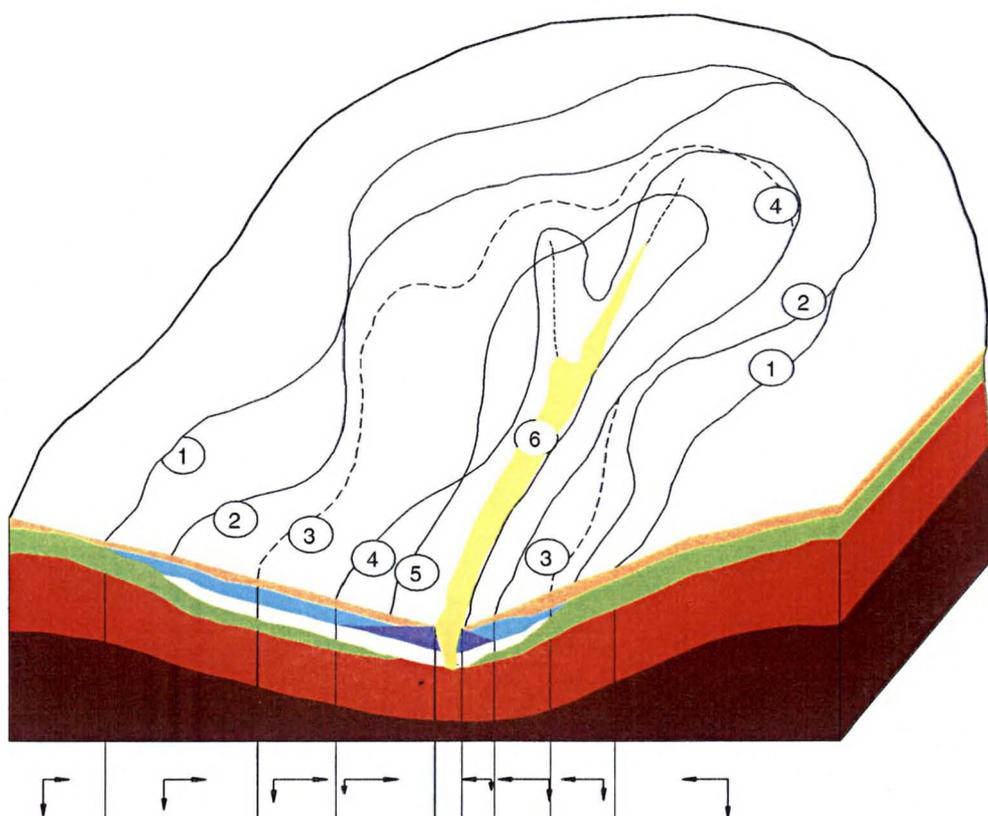
FONTE: Baseada em BARROS (1985), BOULET et al. (1993), RUELLAN e DOSSO (1993) e SANTOS (1995)

embutido tenha se formado, principalmente, através do processo de **adensamento por dessecação** (conceito clássico da Mecânica dos Solos), uma vez que o horizonte B textural tem densidade superior ao horizonte B latossólico, de mesma natureza. Em tal concepção, segundo MONIZ (1996), a camada adensada, onde se inclui o horizonte Bt, resulta da ação de um período climático que chega até a atualidade, estando, portanto, em equilíbrio dinâmico com o meio. Afirma este autor que, isoladamente, a diminuta participação da **argiluviação** não pode explicar satisfatoriamente a formação dos solos com B textural, e que o adensamento permite explicar a existência de dois tipos de solos na mesma superfície geomorfológica. VIDAL-TORRADO (1999), estudando uma seqüência Latossolo - Podzólico na borda de um platô na Depressão Periférica Paulista, concluiu que a transição lateral do B latossólico para o B textural, deve-se ao **adensamento** em subsuperfície do manto latossólico, em conseqüência do rebaixamento e convexização da superfície topográfica original durante o Quaternário e da influência para jusante da ação mecânica do fluxo lateral de água. Somente após, os mecanismos de argiluviação e de degradação de argilas por hidromorfismo temporário no topo do Bt completam as transformações do B latossólico em B textural, e deste em E, respectivamente.

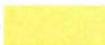
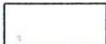
A diferenciação dos mantos podzolizados acompanha a evolução topográfica, transformando platôs em encostas. Quanto mais extensa é a superfície da encosta e mais amplo é o vale, maior é o desenvolvimento dos Solos Podzólicos. Nas cabeceiras das drenagens, onde as encostas são curtas e íngremes, os Solos Podzólicos terão pouca expressão ou podem estar ausentes (Figuras 9 e 10).

O conjunto de evidências apresentado bem suporta a afirmação de que os sistemas pedológicos de transformação correspondem aos últimos estágios da história pedológica das paisagens consideradas, devendo por isso ser explicados pelos processos atuais. Isto significa dizer que a evolução geomórfica dessas regiões é conseqüência, pelo menos em grande parte, da própria evolução geoquímica interna do ambiente pedológico. À medida que as encostas se desenvolvem, a podzolização avança no sentido do topo das vertentes. Portanto, no ambiente climático em discussão, podzolização é um processo secundário de transformação que se desenvolve sobre a cobertura laterítica inicial, condicionado por uma mudança no regime de fluxo da água percolante nos elementos do sistema vertente. Dos processos de transformação podem resultar barreiras geoquímicas, que podem ser de caráter argiloso, físico-químico ou variações nas declividades das encostas, principalmente. O resultado é a precipitação nesses locais de minerais neoformados ou deposição de partículas em suspensão, resultando num "**front**" de acumulação ou iluviação. A associação

FIGURA 10 – REPRESENTAÇÃO DA ORGANIZAÇÃO DA COBERTURA PEDOLÓGICA DE UMA UNIDADE DE DRENAGEM. AS CURVAS DE ISODIFERENCIAÇÃO REPRESENTAM DIFERENTES CARACTERÍSTICAS DA COBERTURA



HORIZONTES

	Aluviões recentes		Horizonte Eg
	Horizonte A		Horizonte Bt
	Horizonte B1		Horizonte C
	Horizonte E		Rocha

LIMITES PEDOLÓGICOS

- ① Aparição do horizonte E
- ② Aparição do horizonte Bt
- ③ Fica nítido o limite horizontal progressivo que separa os horizontes E e Bt
- ④ Transição do horizonte E ao horizonte Eg (aparição de hidromorfia)
- ⑤ Desaparecimento do horizonte B1
- ⑥ Aparição de aluviões recentes

CIRCULAÇÃO DA ÁGUA NO INTERIOR DA COBERTURA PEDOLÓGICA

Os tamanhos respectivos das flechas indicam as proporções relativas das circulações vertical e horizontal da água. A circulação lateral é cada vez mais superficial no sentido de jusante.

FONTE: Extraída de RUELLAN e DOSSO (1993)

Latossolo – Solo Podzólico pode ocorrer isoladamente numa vertente ou coexistir com solos pouco desenvolvidos, como Litossolos e Cambissolos. Tudo vai depender das declividades dos diversos segmentos das vertentes. Da mesma forma podem estar associados Solos Hidromórficos no fundo das vertentes, ou, ao contrário, tais locais podem ser uma zona elevada em relação ao nível de base local e não ter condições de acumular os produtos derivados das partes mais superiores das paisagens.

Pelo apresentado, fica evidente que a abordagem tradicional, com base no estudo de perfis verticais de solos, não conduz a um entendimento satisfatório das relações entre tipos de solos e sua distribuição e as paisagens em que se inserem. Nesse particular, a utilização do conceito de “sistema de transformação” é uma abordagem mais eficaz e esclarecedora. Entretanto, o histórico das pesquisas envolvendo a aplicação do referido conceito, demonstra a existência de divergências importantes, sobretudo quanto à relevância e ordem de atuação dos principais processos transformantes. Portanto, embora encerre enormes potencialidades, este é, ainda, um tema em evolução.

Idades dos Solos

Diferenciações pedológicas importantes só podem se evidenciar se os processos geoquímicos tiverem atuado por um período de tempo relativamente longo. Nos trópicos úmidos, segundo inúmeros autores, havendo associação entre Latossolos e Solos Podzólicos, estes últimos representam uma fase pedogenética mais recente, ou mesmo atual, e teriam se formado a partir dos Latossolos. Tal relação também foi ressaltada por SILVA et al. (1995), com base em pesquisas efetuadas sobre coberturas de alteração da região de Marabá, Amazônia. Estes autores constataram que as lateritas estão associadas com os ciclos pedológicos mais antigos, e os Solos Podzólicos com a pedogênese atual.

DEMATTE (1983), apoiado em dados da literatura, demonstra que um horizonte B latossólico bem desenvolvido necessita de um tempo médio de formação da ordem de 10^6 anos, e, similarmente, um horizonte B textural de cerca de 10^5 anos. Sabe-se que **“nas regiões intertropicais os solos são mais velhos”** (RUELLAN; DOSSO, 1993). Sobre a idade dos solos dos trópicos úmidos, LUCAS e CHAUVELL (1992), citando NAHON e LAPPARTIENT (1977), concluem que o tempo requerido para formar um perfil de solos, com um horizonte cimentado com óxidos de Fe, é da ordem de alguns milhões de anos. Por sua vez, BIGARELLA et al. (1996) consideram as lateritas como solos fósseis muito antigos a subatuais. Citando BUTZER (1976), afirmam que os Latossolos encontram-se em superfícies bem drenadas, expostas ao desenvolvimento de solos desde o Mioceno (22,5 a

5 Ma.) ou mesmo antes. Por outro lado, TURENNE (1975), citado por BOULET et al. (1993), extrapolando datações de sistemas de transformação Latossolo - Solo Podzólico da Guiana Francesa, concluiu que uma encosta podzolizada de cerca de 1 km de extensão necessitaria entre 500.000 e 2 Ma para sua formação. A esse propósito estudos de LUCAS e CHAUVELL (1992), concluem que esses sistemas de transformação, no mínimo, necessitam de uma taxa de aprofundamento de cerca de um metro a cada 100.000 anos.

Tendo em vista o apresentado, percebe-se que é difícil estabelecer as idades absolutas dos horizontes de solos, uma vez que sua formação não depende unicamente do fator tempo. Para todos os efeitos, nesta pesquisa considera-se uma idade mínima da ordem de 1 milhão de anos (1 Ma), como a idade em que um horizonte B latossólico bem desenvolvido sobre saprólito derivado de rochas graníticas nos trópicos úmidos atingiu o equilíbrio dinâmico. Da mesma forma, considera-se que a transformação desse horizonte em um horizonte B textural, durante a podzolização, ocorreu nos últimos 100.000 a 500.000 anos.

2.3 EVOLUÇÃO DO AQUÍFERO FREÁTICO POR POROSIDADE SECUNDÁRIA

Neste item serão abordados os principais aspectos físicos e morfológicos do “**sistema aquífero freático por porosidade secundária**”, existente na porção superior das vertentes. Como visto, estas feições morfológicas e suas estruturas internas são resultantes da atuação dos vários processos de modelamento das paisagens. No Capítulo 4, a partir do aquífero constituído, será analisado o funcionamento dos atuais processos hidrodinâmicos, condicionados pela sazonalidade do atual ambiente climático tropical úmido. Tal análise objetiva avaliar o regime hídrico do aquífero, para, mais adiante, relacioná-lo com os processos radioativos de emissão e migração de radônio, avaliando o impacto dos diferentes intervalos de umidade dos solos na exalação do radônio nas paisagens.

Assim, neste momento dos estudos enfocará-se a evolução das estruturas física e morfológica do aquífero freático por porosidade secundária, condicionada pelo desenvolvimento do intemperismo químico, sobretudo durante a fase pedogenética, até o presente.

2.3.1 Bacia Hidrográfica e Vertentes

Bacias hidrográficas são **sistemas abertos** com entradas de precipitações e energia e saídas de água e material. As bacias são organizadas para escoar a quantidade de água e de detritos que são fornecidos pela sua área de drenagem. As condições geológicas, climáticas e biogeográficas constituem o seu macroambiente. **A rede de canais e as vertentes** são os seus dois principais elementos, sendo a sua estruturação reflexo de controles geológicos e da atuação dos processos hidrogeológicos. As superfícies das encostas convergem para a entrada dos vales, fazendo com que o escoamento, inicialmente como fluxo laminar, concentre-se nos vales formando as correntes.

Várias relações foram estabelecidas entre a ordem do tributário e características das vertentes de uma bacia. E, como solos e vertentes estão diretamente relacionados, é de se esperar que solos e ordem dos tributários também estejam. Associações entre tributários, vertentes e variáveis do solo também são relatadas por CHORLEY e KENNEDY (1971), citados por CHRISTOFOLETTI (1979). Todas essas relações significam que os sistemas de drenagem se ajustam para escoar a água com a máxima eficiência. Assim, a densidade de drenagem é uma resposta à hidrologia de uma área. Aumentando a capacidade de infiltração, haverá diminuição do escoamento superficial e da densidade de drenagem, o que decorre da diminuição das declividades das vertentes. Ao contrário, em vertentes de

maiores declividades, a capacidade de infiltração sendo menor resulta em maior escoamento e densidade da drenagem.

Então, o movimento de água e material é governado pela configuração geométrica das encostas, onde processos pedológicos e geomorfológicos interagem. A forma da superfície de uma encosta e da base da rocha intemperizada, ou "**front**" de alteração, e suas relações, são de importância básica para a compreensão da dinâmica de uma paisagem. A forma do "**front**" de alteração em uma litologia é controlada pela sua microporosidade e tipo, intensidade e orientação das suas juntas.

2.3.2 Aspectos Físicos e Geométricos do Aquífero

Um **aquífero** é um corpo de material permeável, rocha, regolito ou solo, que permite o livre escoamento da água e o volume possível de ser extraído é suficiente para um determinado uso. Os parâmetros essenciais de um aquífero são a permeabilidade (condutividade hidráulica) coeficiente de armazenamento, transmissividade e porosidade. Nos aquíferos a água pode estar ocupando fraturas, diáclases ou gretas e, também, os poros ou vazios intergranulares. Nesse sentido os primeiros são denominados de **aquíferos por fissuração** e os outros de **aquíferos por porosidade** . Além de podermos classificar os aquíferos com base em suas características litológicas e estruturais, outra classificação, também importante, ordena-os conforme a pressão hidrostática que a água contida em seus poros está submetida. Assim, definem-se como sendo **aquíferos livres, não confinados, ou freáticos** , aqueles nos quais existe uma superfície livre da água, que está em contato direto com o ar, ou seja, sob os efeitos da atmosfera. Neste tipo de aquífero a superfície obtida pelos níveis da água em diversos pontos do terreno denomina-se **superfície freática ou nível freático** . Qualquer ponto abaixo dessa superfície estará submetido à pressão atmosférica mais o peso da coluna de água que está acima dele (baseado em CUSTODIO; LLAMAS, 1983).

A quantidade de água que pode ser contida por um dado volume de material natural depende de sua **porosidade** . Nas rochas ígneas e metamórficas, as únicas possibilidades de formar aquíferos residem nas regiões muito afetadas por falhas, fraturas e diáclases e na **zona superficial alterada** , que permitem circulação de água. Perfis de solos formados sobre essas rochas são meios porosos (10% a 20% ou mais), capazes de armazenar água (CEDERSTROM, 1964). Um material de porosidade baixa também tem baixa permeabilidade. Entretanto, valores altos de porosidade não significam, necessariamente, valores altos de permeabilidade.

A Porosidade dos Solos

Segundo TSCHAPEK (1959), o solo constitui um sistema policomponente e polidisperso, integrado por uma fase sólida, o corpo disperso dos minerais do solo, e uma fase líquida e outra gasosa. As fases líquida e gasosa ocupam os poros do sistema disperso do solo, e, por isso, juntas constituem a porosidade total do solo. A água no solo representa a fase líquida, a qual não só preenche seus poros, mas também interage com o mesmo. O solo como um sistema heteroporoso contém poros de diferentes tamanhos. Quanto menores forem as partículas do solo, tanto mais poderosas serão as forças moleculares e iônicas, e tanto maiores e mais importantes os fatores mecânicos. Entre estes últimos assume um lugar destacado a pressão capilar, que se manifesta no sistema devido à boa molhadura dos minerais dispersos pela água. Todos os minerais do solo e seus colóides são corpos hidrófilos, que se molham seletivamente com água e, também, a adsorvem. Este processo de interação com a água advém da presença na superfície dos colóides de radicais do tipo siloxano ($-Si-OH$), que viabilizam pontes hidrogênio com a água. Em relação aos distintos componentes, a montmorillonita, que possui dois níveis com radicais siloxano, está mais próxima dos hidrófilos, enquanto a caulinita e óxidos metálicos estão mais próximos dos hidrófobos .

A porosidade do solo tem uma importância capital sobre o movimento da água, porque regula a permeabilidade. Esta varia segundo a vertical, sendo o horizonte A, (eluvial ou zona de lixiviação), em geral mais permeável que o horizonte B, (iluvial ou zona de acumulação), e o horizonte C mais permeável que a rocha sã. A porosidade é constituída pelo conjunto de vazios contidos na rocha ou solo, que pode ser de várias naturezas. A maioria dos solos tem uma grande porosidade, entre 30 e 50%, sendo maior na superfície e diminuindo com a profundidade. Os horizontes superficiais do solo apresentam uma porosidade muito elevada, chegando muitas vezes a 50 – 60 %, e para solos orgânicos até 70 – 80 %. A porosidade coloidal existe em partículas de rochas e solos argilosos onde pode atingir 1/10 a 1/5 do volume da água de retenção. Em média, a porosidade das argilas é da ordem de 50% (SCHOELLER, 1962).

Distribuição Vertical da Água no Solo

Transcorrido um determinado tempo após a infiltração, a água tende a alcançar um equilíbrio relativo, distribuindo-se em uma série vertical de **zonas de umidade**, considerando-

se constantes as condições iniciais. As zonas de umidade de um aquífero freático são, da base para o topo:

- a) **Zona de saturação**, é a zona limitada superiormente pela superfície freática, submetida à pressão atmosférica, onde a água preenche todos os poros do material;
- b) **Zona de aeração**, ou zona vadosa, ou zona não saturada, situa-se entre a superfície freática e a superfície do terreno. Tem pequena porção (parte baixa da zona capilar) permanentemente saturada de água, e outras partes que, ocasionalmente, podem ficar saturadas, mas deixam de ficar à medida que perdem a água gravitacional. Esta zona pode ser dividida em 3 subzonas, do topo para a base:
 - 1) **Subzona de evapotranspiração**, que se localiza entre a superfície do terreno e os extremos radiculares da vegetação. Além da transpiração pelas plantas, o fenômeno de evaporação afeta a água desta subzona, que ascende por **capilaridade** até a superfície, alcançando uma profundidade de 3 ou 4 metros em argilas;
 - 2) **Subzona intermediária**, abaixo da anterior, não é afetada pelas raízes das plantas e, por isso, sua compactação é maior. Na ausência de água gravitacional, contém somente água de retenção e capilar, e
 - 3) **Subzona capilar**, é a transição para a zona saturada propriamente dita, alcançando uma altura acima da superfície freática, dependente das forças capilares que fazem com que a água ascenda. Sua parte inferior permanece saturada. O limite superior, com a subzona intermediária pode ser bem definido, ou apenas insinuado, dependendo do tipo de material do solo.
- c) Além das zonas apresentadas, também existe no solo, distribuída irregularmente pela zona não saturada, **água na forma de vapor**.

Deve ser ressaltado que a espessura da **zona de aeração, ou retenção**, é muito variável, podendo ser nula ou superar várias dezenas de metros. É mais espessa na parte superior das vertentes e menos espessa, ou ausente, na parte inferior, como em fundos de vale ou áreas pantanosas. Exibe maior espessura quando sobre rochas mais permeáveis do que menos permeáveis.

2.3.3 Síntese Evolutiva

Numa síntese do que foi visto até agora nos capítulos 1 e 2, a água destaca-se como o agente principal de desagregação das rochas e minerais e modelamento das paisagens.

Antes do intemperismo químico adquirir destaque, é o intemperismo físico, com seus processos de caráter erosivo, que impõe importantes desgastes ao relevo, aplainando-o, possibilitando, assim, a infiltração das águas da chuva, inicialmente nas macro porosidades da rocha e, posteriormente, possibilitando um ataque químico de maior expressão volumétrica. Então, o aquífero que inicialmente pode estar presente na rocha, antes do intemperismo químico afetar o volume rochoso, é de natureza fissural (água nas macroporosidades). Este, embora com modificações, pode permanecer ao longo de toda a evolução da paisagem, até o presente. A generalização da atuação dos processos de intemperismo químico, acima mencionados, durante a fase pedogenética, fornece as condições para o desenvolvimento pleno do aquífero freático por porosidade. Este evolui à medida que a pedogênese se intensifica, resultando numa configuração geométrica externa e estruturação interna que são o reflexo da evolução pedogenética e morfogenética dos perfis de solos e das paisagens. Em última análise, o clima e a rocha-mãe, como fatores de formação de solos, condicionam a gênese do aquífero freático por porosidade secundária, levando a uma associação natural entre cada tipo de solo e suas características de umidade. Como consequência, a organização interna e estrutura externa deste aquífero está intimamente associada com a natureza dos perfis de solos e sua distribuição espacial nas paisagens. As suas propriedades físicas, principalmente a permoporosidade secundária, são as mesmas dos solos contidos na sua estrutura morfológica, observada, obviamente, a condição de equilíbrio entre os produtos da evolução supergênica e o clima vigente.

Em resumo, a organização interna e a geometria externa do aquífero freático por porosidade é um reflexo da geometria das vertentes que compõe as paisagens. Ambas resultam simultaneamente pela atuação dos processos supergênicos de modelamento, principalmente durante a fase pedomorfogenética, até o estágio atual. Conforme as paisagens envolventes podemos ter diferentes geometrias de aquíferos e, por conseguinte, diferentes relações espaciais entre o nível freático e a atual superfície do terreno. A morfologia da superfície freática imita a do terreno acima, com contornos mais ou menos paralelos aos da topografia, e mergulha essencialmente na direção desta. Na ausência de chuvas, tende para a horizontalidade e, gradualmente, para o nível dos vales até a secura completa. A água move-se na direção dos vales, alcançando os rios, com velocidade de percolação tanto maior quanto maior for a inclinação do nível freático.

Por fim, um exemplo concreto e bastante didático de aquífero freático em ambiente climático tropical úmido, foi estudado por LELONG (1966). Este autor investigou o regime dos aquíferos freáticos por porosidade secundária desenvolvidos em rochas cristalinas ácidas na região intertropical da África, onde prevalece o clima tropical úmido, com

precipitações médias da ordem de 1200 – 1300 mm/ano em áreas de floresta. Na bacia de drenagem, os desníveis máximos são de 20 a 30 metros e as inclinações das vertentes moderadas, geralmente inferiores a 3%. A parte superior do aquífero reflete a topografia e, nos vales, o nível freático se aproxima da superfície. Na área investigada predominam Latossolos com porosidade total elevada, cerca de 50%, e porosidade útil baixa, em torno de 5,5%. O autor citado verificou que este tipo de aquífero apresenta oscilações grandes e bruscas do nível freático, débitos fracos, grandes volumes de água retidos por forças eletrostáticas e capilares e grande importância relativa dos movimentos capilar e de evapotranspiração no balanço anual, aspectos que serão vistos em maior detalhe no Capítulo 4.

3 DISTRIBUIÇÃO DE U E Th EM PAISAGENS TROPICAIS ÚMIDAS

Neste Capítulo, será abordada a redistribuição dos radionuclídeos U e Th das rochas, durante os tempos geológico e pedológico. Como já mencionado, este estudo é modelado sobre rochas graníticas. A escolha deste tipo litológico se justifica por estarem estas rochas entre as de maior **background** em U e Th, cujas cadeias de decaimento radioativo são as principais geradoras do gás radônio, e por exibirem ocorrência em vastas áreas da superfície terrestre. O entendimento de como os radionuclídeos U e Th são redistribuídos, podendo gerar anomalias nos perfis de solos das diferentes paisagens, sobretudo durante a fase pedogenética do intemperismo, é uma das condições principais para se identificar, e entender, porque existem diferentes **taxas de geração**, com reflexos na emanação, migração e exalação de radônio em diferentes locais das paisagens interligadas.

Os teores em U e Th das rochas inalteradas é a referência a partir da qual posteriores acumulações ou remoções, durante a alteração supergênica, são referidas. O mesmo elemento pode estar concentrado em minerais acessórios relativamente insolúveis e também disperso nos principais minerais formadores de rochas e agregados intersticiais. O comportamento desses radionuclídeos durante a alteração superficial é determinado basicamente pelas proporções relativas dessas diferentes fases minerais. Ou seja, as quantidades de U e Th que podem ser liberadas é determinada por seus minerais hospedeiros. Em muitos granitos são os minerais acessórios (zircão, esfeno, monazita, etc.), que contém a maior parcela de todo o U e Th. Somente uma pequena parte associa-se aos principais minerais formadores de rochas, mas uma quantidade significativa pode estar distribuída ao longo das superfícies e microfraturas dos grãos. A mobilização de U e Th nos granitos, ocorre já no início do intemperismo químico (DICKSON; SCOTT, 1997), mas é somente durante as fases de maior intensidade da alteração que ocorre uma perda considerável de U da rocha. No caso do Th, tendo em vista a sua baixa mobilidade geoquímica, assume-se que ele permanece fixo durante o intemperismo e pedogênese. Evidências da sua baixa solubilidade é o fato de que este radionuclídeo comumente está em equilíbrio com seus produtos de decaimento radioativo e não é detectado em concentrações significativas na solução do solo. No entanto, o Th pode ser mobilizado em condições específicas de pH, sobretudo na presença de ácidos húmicos.

O clima que reúne as melhores condições para lixiviação do urânio das rochas, é o clima quente e úmido. Neste tipo de clima, a grande circulação de águas, em geral ácidas, com oxigênio e dióxido de carbono dissolvidos, é a condição determinante para que os minerais contendo U e Th, exceto os refratários, sejam hidrolisados, oxidados e lixiviados,

resultando na liberação do urânio na forma do íon uranila, $(\text{UO}_2)^{2+}$, que em ambiente oxidante tem alta mobilidade e, assim, U passa para a solução do solo. De acordo com DICKSON e SCOTT (1997), intemperismo químico de todos os tipos de rocha leva à perda significativa de K. Rochas félsicas, além do K, mostram perdas de U e Th durante o intemperismo e pedogênese, cuja intensidade depende de muitos fatores, porém perdas típicas são da ordem de 20 a 30% para os 3 radioelementos.

É pelos fatos apresentados que nesta pesquisa o enfoque do estudo sobre a redistribuição superficial do U e do Th recai sobre a fase pedogenética do intemperismo químico. A associação temporal e espacial entre vertentes, incluído o aquífero freático por porosidade, solos e radioanomalias, resultante da atuação dos processos pedogeoquímicos responsáveis pela formação dos solos e migração das soluções uraníferas através das diferentes paisagens, são fatos que podem ser adequadamente esclarecidos ao se utilizar os conceitos da “geoquímica de paisagens”, pelas razões já manifestas no item “Meios e Métodos”. Mas antes de passarmos à geoquímica de paisagens, é necessário entender como e porque diferentes rochas, durante sua formação, incorporam diferentes quantidades de U e Th, e como esses elementos são distribuídos no seu volume associados às diferentes fases minerais, o que será abordado no item 3.1. Passaremos em revista a geoquímica do U e do Th nos ambientes endógeno e superficial e, conseqüentemente, as principais fases e rochas portadoras desses radionuclídeos, sempre com destaque para as rochas graníticas e considerando-se apenas um ciclo de intemperismo como fator de formação dos solos e responsável pela migração das soluções uraníferas através das paisagens.

3.1 GEOQUÍMICA, ROCHAS E FASES PORTADORAS DE U E Th

No manto terrestre U e Th ocorrem em concentrações muito baixas, a nível de traços. Durante sua caminhada em direção à crosta continental, através dos diferentes ciclos geológicos de remobilização que se sucederam na evolução da Terra, U e Th têm sido concentrados. A introdução de U e Th na crosta continental, em concentrações significativas, a nível de ppm, está relacionada a processos magmáticos e/ou hidrotermais, nos últimos estágios de cristalização das rochas. A abundância de U e Th numa rocha intrusiva varia de acordo com o seu grau de diferenciação magmática, ocorrência e migração de fluídos tardios, numa relação direta com o conteúdo de sílica e álcalis e, inversa, com FeO, MgO e CaO. Por isso U e Th são pouco concentrados em rochas básicas e ultrabásicas e significativamente abundantes em rochas ácidas, intermediárias e de filiação alcalina (Tabela 5).

TABELA 5 – TEORES FUNDAMENTAIS DE ALGUNS RADIONUCLÍDEOS NA CROSTA CONTINENTAL, ALGUMAS ROCHAS COMUNS E ÁGUA DO MAR

ELEMENTO	Média na Crosta Continental	Rochas Ultrabás.	Rochas Básicas	Rochas Intermed.	Rochas Ácidas	Rochas Xistosas	Água do Mar
U (ppm)	2,7	0,03	0,8	1,8	3,5	3,2	0,003
Th (ppm)	9,6	6,0	3,0	7,0	18,0	11,0	0,00005
Ra (ppm)	-	$1,0 \times 10^{-8}$	$2,7 \times 10^{-7}$	$6,0 \times 10^{-7}$	$1,2 \times 10^{-6}$	$1,0 \times 10^{-6}$	-
Rn (ppm)	-	$6,5 \times 10^{-14}$	$1,7 \times 10^{-12}$	$3,9 \times 10^{-12}$	$7,6 \times 10^{-12}$	$6,9 \times 10^{-10}$	-
Po (ppm)	-	$2,2 \times 10^{-12}$	$5,9 \times 10^{-11}$	$1,3 \times 10^{-10}$	$2,6 \times 10^{-10}$	$2,4 \times 10^{-10}$	-
K* (%)	2,1	0,5	0,83	2,31	3,4	2,2	0,038

FONTE: O autor

NOTAS: 1 - Dados extraídos de KRAUSKOPF (1972), volume 2 e de GRANIER (1973);

2 - A participação do isótopo radioativo ^{40}K na ocorrência natural do K é de 0,0117%

No ambiente endógeno, U e Th são geoquimicamente coerentes devido as suas semelhanças no raio iônico e estado de oxidação (+4). Entretanto, essa coerência cessa no ambiente superficial. No ambiente endógeno, os elementos U e Th ao se oxidarem desenvolvem valências (+4). Nesse processo o Th adquire uma configuração eletrônica estável, à semelhança dos gases nobres, diferentemente do U^{+4} que, nesse estado de valência, permanece com 2 elétrons no **subnível 5f (nível O ou 5)** em posição de instabilidade relativa. No ambiente superficial, rico em oxigênio, o Th^{-4} , devido a sua configuração eletrônica, permanece inalterado e imóvel, enquanto o U^{+4} oxida-se pela perda

dos dois elétrons mencionados, passando ao estado U^{+6} , o que lhe confere uma grande mobilidade geoquímica em tal ambiente.

Os principais minerais primários de U e Th são óxidos anidros, em geral negros, uraninita (UO_2) e torianita (ThO_2), respectivamente. Uraninita e torianita cristalizam-se no sistema cúbico, podendo constituir uma série isomórfica e são estáveis no ambiente endógeno. Uraninita em sua forma não cristalizada, ou amorfa, denomina-se pechblenda. De um modo geral, a razão Th/U em rochas ígneas é em torno de 4. Entretanto, segundo RAGLAND et al. (1967), há discordâncias se esta razão permanece constante ou aumenta com a diferenciação.

3.1.1 Fases Portadoras de U e Th

A concentração de U e Th nos minerais acessórios das rochas plutônicas é função da sua concentração no fundido, do tempo de cristalização bem como da temperatura e subsequente taxa de esfriamento do meio. Inicialmente uma concentração constante e uniforme de U no fundido permite a entrada singenética de U na rede cristalina dos cristais (KOZLOVA; GURVICH, 1979, FOWLER, 1981, KRÁL; BURCHART, 1983), citados por GUTHRIE e KLEEMAN (1986). Isto é evidenciado pela distribuição uniforme do U nos primeiros minerais acessórios formados, principalmente apatita prismática, esfeno e zircão. O Th, com comportamento geoquímico semelhante, está presente em proporções consideráveis na allanita, monazita e zircão, ou em quantidades traço nos minerais formadores de rochas (Tabela 6).

Em geral, dois dos maiores portadores de Th, monazita e zircão, são estáveis durante intemperismo e devem se acumular em depósitos de minerais pesados. Com a continuação da cristalização, U é enriquecido no líquido remanescente, resultando numa distribuição heterogênea nos minerais tardios. Tal evidência está no aumento da concentração de U do núcleo para as bordas dos grãos de zircão zonado, e enriquecimento de U nos minerais tardios como a allanita. Durante a alteração hidrotermal, o U é remobilizado e incorporado aos produtos de alteração próprios dessa fase. **Alteração deutérica**⁸ produz concentrações de U anormalmente altas em feldspatos e biotita. Os grãos incipientemente alterados fixam o U que circula nos fluídos tardios, a maior parte por adsorção em minerais de argila dentro dos minerais primários.

⁸ Durante os estágios finais da consolidação magmática, as soluções residuais ricas em voláteis podem induzir alterações amplas, de modo que os minerais pré-existentes são penetrados ou substituídos por novos minerais. Essas alterações chamam-se deutéricas.

TABELA 6 – TEORES DE U, Th E RAZÕES Th/U EM MINERAIS DE ROCHAS ÍGNEAS

Mineral	U (ppm)	Th (ppm)	Th/U
Minerais Acessórios			
Allanita	30 – 700	500 – 5000	5 – 10
Apatita	5 – 150	20 – 150	1
Epidoto	20 – 50	50 - 500	2 – 6
Ilmenita	1 – 50		
Magnetita (e outros)	1 – 30	0,3 – 20	
Monazita	500 – 3000	25000 - 200000	25 – 50
Esfeno	100 – 700	100 - 600	1 – 2
Xenotima	500 – 35000	baixo	baixo
Zircão	300 - 3000	100 - 2500	0,2 - 1
Minerais Essenciais			
Biotita	1 – 40	0,5 – 50	0,5 – 3
Hornblenda	1 – 30	5 – 50	2 – 4
Feldsp. Potássico	0,2 – 3	3 – 7	2 – 6
Muscovita	2 – 8		
Olivina	0,01	baixo	
Plagioclásio	0,2 – 5	0,5 – 3	1 – 5
Piroxênio	0,01 – 40	2 – 25	4 – 5
Quartzo	0,1 - 5	0,5 - 6	2 - 5

FONTE: Extraída de HARMON e ROSHOLT (1982)

Nas rochas o U pode ocorrer em dois estados de oxidação: em minerais traço como uraninita (+4) e uranilfosfatos (+6), ou como elemento traço em minerais hospedeiros. A solubilidade do U^{+4} é negligenciável e estas fases são, portanto, imóveis sob condições redutoras. Em condições oxidantes o U é relativamente solúvel como espécies U^{+6} , formando o íon uranila (UO_2)⁺², que é fortemente adsorvido em óxidos de Fe^{+3} (WEIJDEN; WEIJDEN, 1995). Processos secundários, nas fases finais da diferenciação magmática, levariam à oxidação do U^{+4} a íon uranila, que é mais solúvel no magma residual rico em voláteis. Esta oxidação tem sido usada para explicar a grande dispersão do U em relação ao Th, com o aumento do fracionamento. ROGERS e RAGLAND (1961), citados por RAGLAND et al. (1967), são de opinião que a possível perda de U durante os últimos estágios da diferenciação ígnea deve ser resultado da oxidação do U^{+4} ao íon uranila.

Os principais agregados secundários intersticiais, entre os principais minerais formadores de rochas e os acessórios, compreendem óxidos e hidróxidos de Fe amorfos e argilo-minerais, com grãos de biotita alterados, fragmentos de feldspato e quartzo, cristais de zircão e manchas de magnetita e ilmenita neles incorporados. Assim, o total de U contido em rochas graníticas e similares, dependerá basicamente da sua distribuição nessas fases e de sua lixiviação relativa. Desta maneira, a distribuição do U neste tipo de rocha pode ser classificada conforme sua distribuição nas fases mineralógicas mencionadas como (TIEH et al., 1980, SPEER et al., 1981, citados por GUTHRIE; KLEEMAN, 1986): ***U background, U resistato e U intersticial.***

O U **background** tem sua fonte nos principais minerais formadores de rochas, como quartzo, feldspatos, biotita e anfibólios. Sua proporção em relação ao total da rocha é mínima. Estudos da distribuição de U em rochas inalteradas mostram que os principais minerais formadores de rochas, têm concentração de U menor que os limites de detecção da maioria dos métodos conhecidos (KLEEMAN, 1969, FOWLER, 1981, citados por GUTHRIE; KLEEMAN, 1986). A contribuição mais significativa para o total de U contido em granitóides é o U resistato, ou seja, o U contido nas fases acessórias mais importantes, como zircão, esfeno, allanita, monazita, apatita, magnetita e ilmenita, onde este elemento está uniformemente distribuído, devido à fixação por substituição na rede cristalina. U intersticial, por sua vez, é concentrado nos limites dos grãos ou cristais e ao longo de clivagens e fraturas nos últimos estágios da alteração deutérica e, também, no início do intemperismo. Esta fase mineralógica compreende, principalmente, minerais de argila e óxihidróxidos de Fe, Ti e Mn, os quais adsorvem U dos últimos estágios e de fluídos pós-magmáticos, ou derivado do decaimento dos minerais primários durante o início do intemperismo (KOMAROV et al., 1967, BERZINA et al., 1975, BAJO et al., 1985, citados por GUTHRIE; KLEEMAN, 1986).

TABELA 7 – ATIVIDADES ALFA MÉDIAS DE VÁRIOS MINERAIS NO “**ENCHANTED ROCK BATHOLITH**”, TEXAS, USA

Mineral	Número de Medidas	Alfas/cm ² /Seg. x 10 ⁻⁵
Piroxênio	21	0,96
Feldspato	50	1,3
Quartzo	21	2,5
Biotita	12	16
Zircão	56	900
Esfeno	50	2000
Allanita	59	30000

FONTE: Extraída de RAGLAND et al. (1967)

De acordo com estudos de RAGLAND et al. (1967), resumidos na Tabela 7, sobre radioatividade no “**Enchanted Rock Batholith**”, granito situado no Texas Central, USA, allanita, esfeno e zircão são os minerais acessórios mais radioativos, superando os minerais essenciais por fatores da ordem de 10³ a 10⁴. Em geral, allanita é considerada um produto tardio de alteração deutérica ou hidrotermal, o que pode explicar as suas altas concentrações em U e Th. Na mesma região anteriormente citada, TIEH et al (1980) mostraram que o U em granitos ocorre principalmente em minerais acessórios resistentes ao intemperismo. RICHARDSON (1964), citado por TIEH (1980), determinou que cerca

de 42% do U do granito “**Conway**”, é associado com as fases resistato. GUTHRIE e KLEEMAN (1986) estudando três tipos de granitóides de New South Wales, Austrália, concluíram que as fases resistato encerram concentrações de U variando de 90 a 4.000 ppm. As fases intersticiais de 140 a 1.500 ppm e os minerais essenciais de 0,1 a 2,0 ppm.

Assim, a distribuição heterogênea de U e Th nas diferentes fases mineralógicas das rochas graníticas é bem conhecida. Alguns minerais acessórios podem ter teores de U e Th várias ordens de grandeza acima do contido nos minerais principais (TIEH et al., 1980), de modo que nos granitos o U e o Th ocorrem em maiores proporções em minerais acessórios resistentes ao intemperismo (resistatos) e ao longo dos limites dos grãos dos minerais principais, particularmente biotita, e também associados ao quartzo e feldspatos, em baixas proporções. Deve ser ressaltado que durante intemperismo incipiente a moderado a rocha não tem perdas líquidas de U, havendo uma redistribuição intra-rocha, entre as diferentes fases presentes, como especificado no próximo item.

3.1.1.1 Redistribuição de U e Th em rochas graníticas sob intemperismo incipiente

Mesmo submetidas a intemperismo incipiente, as rochas graníticas sofrem mudanças notáveis na distribuição das concentrações de U das suas principais fases mineralógicas. Em rocha fresca, deutericamente alterada, o U é distribuído da seguinte maneira: ***U background < U intersticial < U resistato***. De modo geral, durante intemperismo incipiente, ***U background*** aumenta significativamente em associação com o aumento das fases de alteração que ocorre ao longo de fraturas e dos limites dos minerais primários. Este aumento deve-se à alta capacidade de sorção das fases de alteração, mais particularmente das argilas nos feldspatos e inter-estratificações de óxidos e hidróxidos de Fe e Mn com illitas, nas biotitas. O decréscimo subsequente, com o aprofundamento do intemperismo, é função da instabilidade das próprias fases de alteração, que pode causar a perda do U adsorvido, como por exemplo no processo de substituição de illitas por caolinitas no intemperismo de feldspatos. Assim, à medida que o intemperismo evolui, a proporção de U intersticial aumenta, com um decréscimo correspondente no U resistato e ***background***.

GUTHRIE e KLEEMAN (1986), estudando o “**Mole Granite**”, em New South Wales, Austrália, verificaram que o U intersticial teve um aumento significativo em relação ao total da rocha fresca, passando de 5 a 10% para 25 a 35% durante o intemperismo inicial. Este aumento está associado com o desenvolvimento, devido ao intemperismo, de fases secundárias em fraturas e nos limites dos cristais, incluindo principalmente minerais de argila, óxidos e hidróxidos de Fe e Mn e a incorporação de minerais acessórios, ricos em U,

liberados durante a degradação da biotita. O U é fortemente adsorvido pelas fases secundárias, fazendo com que U intersticial aumente significativamente.

Após intemperismo incipiente, a apatita prismática mostra-se corroída e tem sua **abundância modal**⁹ diminuída, estando mesmo ausente em material mais intemperizado. Alguma apatita acicular corroída e zircões permanecem como inclusões na biotita alterada, e as monazitas que foram incorporadas nos agregados secundários apresentam-se fraturadas, nebulosas na aparência, e corroídas, indicando alteração durante o intemperismo. Esfeno é alterado para rutilo fino ao longo de fraturas e bordas, durante intemperismo inicial. Substituição mais completa de esfeno por rutilo, e desenvolvimento de argilas nos limites dos grãos e fraturas, ocorrem com a evolução do intemperismo. Apatita e zircão diminuem em abundância com o intemperismo, e os grãos remanescentes particularmente apatitas, mostram corrosão significativa.

Magnetita e ilmenita permanecem como inclusões anaedrais nas fases máficas, sendo incorporadas nos agregados secundários à medida que o intemperismo avança. Allanita é raramente presente nas amostras mais alteradas, indicando remoção do sistema durante os processos de intemperismo. Apatita, zircão e ilmenita deixam de ser inclusões nas biotitas e são incorporados nos agregados secundários de argila e óxidos de Fe, à medida que o grau de intemperismo aumenta. Com o aumento do intemperismo, estes minerais em geral mostram fraturamento, alteração e corrosão (GUTHRIE; KLEEMAN, 1986). **Monazita, apatita e esfeno** mantêm a concentração de U durante o intemperismo, mesmo após a quebra dos grãos de monazita e a substituição do esfeno por rutilo e argilas. Isto confirma que esses minerais primários incorporam U por substituição na rede cristalina. Alteração subsequente resulta no aumento da concentração de U por adsorção e troca iônica.

Durante intemperismo químico significativo ocorre uma grande perda de U da rocha e solos, e o U remanescente é redistribuído entre os 3 principais modos de ocorrência na rocha. **U background** e resísto são reduzidos, e o U mobilizado é **adsorvido** por agregados intersticiais, aumentando, assim, o **U intersticial**. Esfeno, zircão, monazita e apatita acicular retêm suas concentrações iniciais, sendo, no entanto, reduzidos em abundância modal. A apatita prismática, fluorita e allanita são progressivamente removidas e seu U redistribuído. Fluorita e allanita degeneram-se rapidamente com o intemperismo, sendo raras mesmo em amostras moderadamente alteradas, indicando sua remoção do sistema durante os

⁹ Abundância modal refere-se à percentagem (%) de minerais observados na rocha através, por exemplo, de uma lâmina petrográfica. Abundância normativa, por outro lado, refere-se à percentagem (%) de minerais calculada com base nos teores químicos dos elementos das rochas.

processos de intemperismo (GUTHRIE; KLEEMAN, 1986). Em resumo, o balanço geral do U e do Th contido em rochas graníticas não mostra perdas durante intemperismo incipiente a moderado, tendo em vista que argilas e óxidos de Fe e Mn hidratados, intersticiais, adsorvem o U liberado durante o decaimento inicial dos minerais. Mesmo neste nível, já se pode pensar em possíveis anomalias que não poderiam existir na rocha totalmente inalterada. Somente durante intemperismo químico significativo é que ocorre uma grande perda de U da rocha, e o U remanescente é redistribuído entre os outros modos de ocorrência. **U background**, contido nos principais minerais formadores de rochas é depletado, e o U mobilizado é adsorvido por agregados intersticiais, aumentando, assim, o **U nessa fase**. O **U em acessórios** é também depletado, porém em menor intensidade. Distribuição dos isótopos contendo U e Th durante alteração supergênica somente é afetada por erosão, incluindo os processos pedogenéticos de e-iluviação (TIEH et al., 1980). Finalmente, a perda líquida de U total da rocha durante o intemperismo mais intenso, principalmente durante a fase pedogenética, é fortemente influenciada pelo decréscimo na abundância modal das fases portadoras. Segundo DICKSON e SCOTT (1997), dentre os minerais acessórios contendo U e Th, somente zircão e monazita são totalmente estáveis durante o intemperismo.

3.2 COMPORTAMENTO DO U E DO Th EM PAISAGENS GEOQUÍMICAS TROPICAIS ÚMIDAS

Os ambientes geoquímicos que controlam o comportamento dos elementos - traço nas paisagens decorrem da atuação dos processos de alteração supergênica, durante os tempos geológico e pedológico, sendo sua natureza influenciada pelos tipos climáticos, de rocha, de relevo e de solos.

Do ponto de vista teórico, o comportamento geral dos metais em condições superficiais depende do seu potencial iônico (PI). Quanto maior o PI de um metal, mais baixa é sua mobilidade (GOLDSCHMIDT, 1935, citado por SAMAMA, 1971). Por outro lado, segundo ROSE et al. (1979), na dispersão geoquímica superficial as frações mais móveis tendem a deixar seus locais de origem se gradientes químicos e físicos e canais adequados estiverem disponíveis. Os principais fatores que determinam a liberação geoquímica dos elementos são a sua estabilidade na fase sólida imóvel, esta representada pelos minerais acessórios, minerais formadores de rochas e agregados intersticiais, com relação à fase fluída coexistente. No entanto, na prática, existem limites a essas regras. Quando um ambiente geoquímico de um perfil de alteração é rico, por exemplo, em Fe e Al, **elementos tipomórficos**¹⁰, o comportamento dos elementos- traço é controlado em grande extensão por esses elementos ou compostos. Ou seja, a nível do cristal, o elemento é controlado pelo seu PI, natureza e intensidade de suas ligações com os hospedeiros, mas na escala das paisagens geoquímicas os elementos tipomórficos tem papel importante.

Nessa linha, SAMAMA (1971), baseado no conceito de diferenciação pedológica, classifica o possível resultado do comportamento dos elementos nas paisagens em **concentração**, **indiferença** ou **eliminação**. Neste modelo a cobertura de intemperismo, principalmente a pedológica, age como um filtro separador muito eficiente, o qual, de acordo com o tipo de processo de alteração, elimina ou concentra um determinado elemento - traço na paisagem (Figura 11). Também ROSE et al. (1979), faz afirmação semelhante. De acordo com o processo de alteração da rocha, e da paisagem geoquímica decorrente, o mesmo elemento pode ser considerado **residual**, **indiferente** ou **migrante**.

Na **geoquímica tradicional** a litologia desempenha um papel de fundamental importância, o que não ocorre na **geoquímica de paisagens**, onde pedologia, geomorfologia

¹⁰ Conforme PEREL'MAN (1967), citado por FORTESCUE (1980), o conceito de **elementos tipomórficos** está relacionado com o de barreiras geoquímicas. Elementos químicos, íons e compostos são chamados tipomórficos se sua abundância e migração caracterizam um dado **processo epigenético**.

FIGURA 11 – PROCESSOS DE ALTERAÇÃO SUPERFICIAL E COMPORTAMENTO GEOQUÍMICO DO CHUMBO, ZINCO, COBRE E URÂNIO

Processos de Alteração		Comportamento dos metais-traço + concentrado - eliminado			
	Fe	- U +	- Cu +	- Zn +	- Pb +
Bissialitização	Sem rubefação				
Monossilitização	Rubefação				
Alitização					

FONTE: Extraída de SAMAMA (1971)

e hidrogeologia freática são os principais elementos da análise. Por isso, pode ser integrada consistentemente com essas disciplinas, beneficiando-se de modernas tecnologias de levantamentos, como sensoriamento remoto, por exemplo. POLYNOV (1937, 1951), citado por FORTESCUE (1980), ressalta a importância do intemperismo químico e biológico, durante os tempos geológico e pedológico, na evolução das paisagens. É de opinião que as relações entre litosfera, hidrosfera, biosfera e a atual superfície do terreno governam a migração de elementos nas diferentes paisagens. Baseado em tais princípios, ele definiu três tipos elementares de paisagens, que em geral ocorrem interligadas em ambiente tropical úmido: **eluvial**, **supraqual** e **aqual**, já descritas anteriormente. GLASZOVSKAYA (1961), citado por FORTESCUE (1980), considera importante tratar especificamente o segmento situado entre as paisagens eluvial e supraqual, ao qual denominou **paisagem transeluvial**. Para esta abordagem isto é favorável, pois nos trópicos úmidos, em geral, esta paisagem é o local preferencial de ocorrência dos Solos Podzólicos, derivados dos

Latossolos, com implicações importantes para o entendimento da redistribuição superficial do U e do Th (Ra).

A geoquímica de paisagens é fundamentada em quatro princípios filosóficos principais, ou hierarquias, que são a hierarquia do **espaço**, do **tempo**, da **complexidade química** e do **esforço científico**. Além destes, utiliza-se do conceito das **aproximações sucessivas** que é o elemento integrador dos anteriores. Nesta pesquisa o espaço é analisado em escala local, mais precisamente na escala das vertentes de uma bacia de drenagem, contemplando as paisagens eluvial, transeluvial, supraqual e aqual. No tempo, quando abordamos a evolução das paisagens e a redistribuição do U e do Th (Ra), consideramos basicamente o período de intemperismo químico, medido em milhões de anos, com enfoque especial na fase pedogenética que é medida em milhares a centenas de milhares de anos.

As considerações sobre a distribuição de radônio nas atuais paisagens tem por base a natureza, intensidade e duração dos **atuais processos hidrogeológicos** do aquífero freático por porosidade, que em parte são dependentes da sazonalidade do clima, interrelacionados com os processos radioativos. Do ponto de vista do quimismo, a ênfase recai nos **elementos** e/ou **íons**, avaliando suas abundâncias em diferentes materiais das paisagens. Assim como no caso anterior, a análise dos **processos radioativos** e distribuição do radônio nas paisagens é fundamentada, principalmente, no comportamento dos diferentes **isótopos** dos radionuclídeos presentes. Quanto à abordagem científica, esta é norteadada pela análise sistêmica dos principais processos envolvidos nas diferentes partes da pesquisa.

A integração dessas informações permitiu o estabelecimento de modelos que, mesmo a nível preliminar, direcionaram a coleta de informações. Tendo em mente esses princípios e já definido o macroambiente tropical úmido, a parte operacional da geoquímica de paisagens é baseada na aplicação de sete conceitos principais: **abundância, migração, fluxos, gradientes, barreiras, história e classificação das paisagens**, os quais passaremos a enfocar. Outros aspectos e maiores detalhes a respeito desta modalidade da geoquímica podem ser encontrados em FORTESCUE (1980).

Abundância (e Liberação)

A abundância pode ser absoluta, relativa ou parcial. A absoluta é reflexo da composição química da rocha inalterada. A relativa leva em conta a alteração da rocha e a parcial o método analítico de extração do elemento. O ponto de partida para o estudo de elementos no ambiente é a abundância absoluta, constituindo-se na referência para as demais. A abundância parcial reflete os graus de fixação de um determinado elemento em

diferentes fases hospedeiras, devido à espécie química com que ocorre. Este conceito tem envolvimento com a taxa de liberação dos elementos das suas fases portadoras e está diretamente relacionado ao da migração e, usualmente, relaciona a composição química de um componente da paisagem a um ponto particular do espaço, em determinado tempo.

A geoquímica do U nas paisagens, com destaque para a sua taxa de migração num determinado ambiente, pode ser evidenciada pela sua abundância parcial nos materiais analisados. Frequentemente estas informações são de maior importância do que as suas abundâncias absoluta ou relativa. Este tipo de dado tem significado local, refletindo os detalhes da circulação do U num ponto particular de uma determinada paisagem, podendo ser relacionado, por exemplo, com a morfologia da encosta e o tipo e a espessura dos perfis de solos. A abundância parcial de U é nominada nesta pesquisa como **urânio solúvel** (U_s) conforme conceituado no item “Meios e Métodos”.

Como pode ser visto na Tabela 5, a abundância média absoluta em granitos e rochas afins é da ordem de 4 ppm de U e de 12 a 18 ppm de Th ($Th / U = \sim 4$), em geral distribuídos nas suas diferentes fases mineralógicas, conforme discutido em tópico anterior. No entanto, granitos com **background** duas, três ou mais vezes superior são comuns. Por exemplo, os granitos estudados na Suécia e responsáveis por elevados fluxos de radônio no solo, com medidas superiores a 1.000 Bq.m^{-3} (AKERBLUM et al., 1984) no interior de residências próximas, contém até 30 ppm de U e 135 ppm de Th em rocha inalterada. O Granito Serra do Carambeí, situado no estado do Paraná, Brasil, tem teores médios de U de 10 ppm, podendo chegar até teores da ordem de 56 ppm de U, e 270 ppm de Th em diques riolíticos encaixados no corpo granítico (PINTO - COELHO, 1986).

A geoquímica do Th sob condições de intemperismo ainda não é bem compreendida. Embora o enriquecimento do Th em solos residuais e em bauxitas tenha sido reportado por ADAMS e RICHARDSON (1960), e outros pesquisadores, detalhes a respeito dos mecanismos de enriquecimento e a natureza das ocorrências do Th, ainda permanecem desconhecidos. Na faixa de pH 4 a 6, a torianita (ThO_2) é muito pouco solúvel (LANGMUIR; HERMAN, 1980, citados por VIERS et al., 1997), o que explica a baixa concentração de Th em águas naturais. Entretanto, em condições podzolizantes, com a participação de ácidos húmicos, além do U, o Th, e também o Fe e Al, podem ser mobilizados. No caso do U, o tipo de fixação nos minerais acessórios influencia a sua lixiviação e potencial de migração durante o intemperismo químico (TIEH et al., 1980). Como vimos, a proporção de U resistido diminui com o intemperismo, o que é refletido pelo decréscimo na abundância modal dos minerais acessórios.

O decréscimo de U de algumas fases acessórias devido ao intemperismo, indica que uma proporção de U dessas fases é fracamente fixada, possivelmente devido a uma distribuição inicial não uniforme. Uma perda significativa de U dos zircões zonados *na "Bundarra Plutonic Suite"*, allanita no *"Moonbi Adamellite"* e *"Mole Granite"* (GUTHRIE; KLEEMAN, 1986), sugere que uma proporção de U é incorporada nessas fases por adsorção e troca iônica, uma vez que ela pode ser mobilizada por fluidos migrantes durante o intemperismo e lixiviada do sistema. A depleção rápida de allanita com o intemperismo também reflete sua natureza instável.

Em resumo, durante o intemperismo e evolução das paisagens, mudanças nas concentrações de U e Th, inicialmente entre as próprias fases hospedeiras que constituem as rochas, são controladas pelas mobilidades químicas desses elementos, relacionadas ao tipo de fixação em cada uma dessas fases. Intemperismo intenso ocasiona o decréscimo mesmo do U em acessórios, devido, principalmente, à perda considerável de fluorita e allanita e a um decréscimo geral na abundância modal de outras fases acessórias. Neste processo, U intersticial pode aumentar na mesma proporção, à medida que o intemperismo evolui.

Assim, durante a evolução das paisagens, o U e o Th em resistatos, e compostos de Th, tendem a concentrar-se na paisagem eluvial. Entretanto, na paisagem transeluvial, sob condições podzolizantes, o Th pode ser complexado e mobilizado por ácidos húmicos em solução coloidal. A parcela de U em minerais essenciais e fases intersticiais é mobilizada para a solução do solo. Esta, no entanto, fica sujeita às condições de Eh e pH, presença ou ausência de elementos tipomórficos, do fluxo da água subterrânea e umedecimento e secamento periódico do solo. Tais condições é que determinam se há possibilidade de transporte regional líquido de U a partir da área granítica ou fluxo *per descensum*, resultando em diferentes concentrações, ou abundâncias, em diferentes materiais das diversas paisagens.

Migração

Existe uma relação clara entre abundância dos elementos e seus coeficientes de migração. Assim como o conceito de abundância, o de migração, ou mobilidade de elementos, pode ser discutido em termos absolutos ou relativos. Nos estudos em paisagens devem considerar-se as mobilidades sob esses dois aspectos, uma vez que existem diferentes taxas de migração quando um mesmo elemento ocorre em diferentes espécies químicas. A mobilidade depende ainda da dinâmica da água, que em escala regional é controlada pelo clima, notadamente o regime de precipitação, e em escala local é controlada

pela topografia, forma das vertentes, tipo de solos e regime hídrico do aquífero freático. O fluxo é mais intenso nas partes mais elevadas de uma vertente, ou paisagem eluvial, e menos intenso nas partes mais baixas do perfil, ou paisagens supraqual e aqual (Figura 3). A migração depende, conseqüentemente, **da abundância, do potencial iônico, da espécie química, da estrutura cristalina do mineral hospedeiro, do coeficiente de migração aquosa, do Eh, pH e elementos tipomórficos.**

Em ambiente tropical úmido, os granitos são intensamente intemperizados, gerando grande quantidade de produtos, entre os quais se inclui uma parcela considerável do U contido na rocha. Os elementos liberados nesse processo, no entanto, podem permanecer no solo, seja na grade cristalina dos minerais argilosos neoformados, adsorvidos em colóides ou hidróxidos de Fe e Al, ou migrar para níveis mais profundos do perfil, ou, ainda, ser eliminados das paisagens. Elementos - traço, incluindo U e Th, hospedados por minerais formadores de rochas e pelas fases intersticiais, e parte nos acessórios, são freqüentemente liberados pela hidrólise e, no caso do U, oxidado durante o intemperismo químico. A adsorção desses elementos à superfície dos produtos de intemperismo ou migração para outros ambientes, dependerá **do regime hídrico do aquífero freático**, das condições físico - químicas das paisagens e das suas propriedades (WEIJDEN; WEIJDEN, 1995). Na água o U pode ser móvel como oxi - cátions, $(UO_2)^{2+}$, uma das formas de U mais abundantes em solução de águas ácidas, que é a situação mais comum no ambiente climático tropical úmido.

No caso do elemento U, uma vez na solução do solo, o potencial de óxi - redução (Eh), é um dos fatores principais no controle de seu comportamento nas paisagens. No ambiente tropical úmido, nas vertentes, nas partes acima do nível freático das paisagens eluvial e transeluvial, o ambiente geoquímico em geral é oxidante e, portanto, favorável à migração do U. No caso do Th, este pode ser mobilizado por ácidos húmicos na paisagem transeluvial. No entanto, a taxa efetiva de mobilidade nas paisagens é muito dependente da presença de elementos tipomórficos, como óxidos metálicos, matéria orgânica e argilas, agindo como barreiras geoquímicas.

Com o intemperismo químico intenso, durante a fase pedogenética, as argilas inicialmente formadas (ilitas e complexos ilita - montmorillonita) se alteram para fases mais estáveis como caolinitas e posteriormente gibbsitas, que possuem menor potencial de adsorção de íons metálicos (BOROVEC, 1981). Isto resulta na liberação de quantidades significativas de U intersticial, devido à menor capacidade de adsorção das novas fases, que é remobilizado dos locais de maior saturação intersticial, ou de menor estabilidade de adsorção, pela água circulante, removendo o U do sistema como UO_2^{2+} (TIEH et al., 1980,

BOROVEC, 1981). Se a taxa de fluxo de água subterrânea nos perfis de solos é baixa, a fixação de U, uma vez mobilizado da rocha, deve ocorrer no próprio perfil, devido às mudanças locais das condições de umidade e mudanças de Eh e pH. Com taxas elevadas de fluxo, o U liberado dos materiais da paisagem eluvial é transportado pelas águas no sentido descendente do perfil e, também, lateralmente no sentido das paisagens transeluvial, supraqual e aqual. Pode ser aí total ou parcialmente fixado, ou eliminado, dependendo do regime do fluxo das águas e do ambiente geoquímico.

Assim, durante o intemperismo químico e pedogênese de uma rocha granítica, uma parte do U liberado é fixada no perfil de alteração na paisagem eluvial, juntamente com o Th e o U resistato, onde experimentarão um enriquecimento relativo, controlados pelos hidróxidos de Fe e Al e argilas (ADAMS; RICHARDSON, 1960). Outra parte migra para níveis mais profundos do perfil, onde as condições de Eh e pH são mais favoráveis à sua fixação e a parte restante migra na forma de UO_2^{2+} conduzida pelo fluxo lateral das águas subterrâneas, no sentido das paisagens transeluvial, supraqual e aqual, onde pode ser fixada ao encontrar ambientes mais redutores, com pH mais elevados e colóides com maior poder de adsorção, ou, caso contrário, exceder os limites do sistema.

Portanto, perda significativa de U durante intemperismo moderado a profundo, particularmente da paisagem eluvial do sistema vertente, significa a sua mobilização e remoção pelas águas percolantes, principalmente dos locais onde ele é fixado por adsorção, e sua redeposição em outros níveis dos horizontes do perfil de solos, da mesma paisagem ou de paisagens adjacentes, ou completamente eliminado. Isto explica inúmeros indícios uraníferos, que ocorrem particularmente em formações sedimentares e solos, os quais, em muitos casos, requereram o transporte de U por longas distâncias. O Th tem mobilidade mais restrita, em geral limitada às paisagens transeluvial e supraqual.

Fluxos

O conceito de migração de elementos nas paisagens envolve o problema da taxa de movimento de entidades químicas, o que conduz à consideração de **fluxos geoquímicos**. Segundo KOZLOVSKIY (1972), citado por FORTESCUE (1980), fluxos geoquímicos são correntes de substâncias nas paisagens, durante um período de tempo. KOZLOVSKIY (1972) elaborou um conjunto de modelos conceituais e princípios gerais, em consonância com os embasamentos filosóficos da geoquímica de paisagens, visando enquadrar os principais modelos de fluxo de elementos nas paisagens. De acordo com esse autor, incluindo os migrantes independentes e dependentes, os fluxos de substâncias através das

paisagens se processam através de “canais químicos”, sendo a estrutura migracional da paisagem definida por fatores mecânicos, físicos, químicos, volume de água, ar e migração biológica.

A combinação do conceito de fluxos geoquímicos e paisagens possibilita associar as diferentes taxas de migração de elementos em dado espaço das paisagens num determinado tempo. Em termos gerais são definidos três tipos principais de fluxos. O “**ciclo migracional principal**” (MMC), que tem movimento predominantemente vertical e o “**fluxo geoquímico da paisagem,**” (LGF) que se refere a um fluxo através das paisagens. Quando há adição ou remoção de matéria da paisagem, temos o chamado “**fluxo extra paisagem**” (ELF). Um exemplo do modelo LGF pode ser representado pelo gás radônio, que como gás pode fluir para a atmosfera e, difundido na água subterrânea pode fluir através dos horizontes de solo e regolito. Os fluxos podem mudar de direção em resposta à sazonalidade do clima. Um modelo ELF negativo envolve a remoção de elementos da paisagem através de águas superficiais e/ou subterrâneas.

Não obstante sua harmonia teórica, a abordagem de KOZLOVSKIY (1972), considerando os modelos e princípios de funcionamento dos fluxos, não é de fácil aplicação. Neste sentido, um conjunto de conceitos e princípios emprestados da pedologia, geomorfologia e hidrogeologia do freático, contidos no conjunto de tópicos já abordados, desponta como de mais fácil aplicabilidade. Possibilita, pelo menos, inferir a ordem de grandeza relativa das diferentes taxas de fluxo a que diferentes locais da paisagem foram submetidos durante sua evolução.

Assim, nas diferentes paisagens, os fluxos serão fundamentalmente verticais descendentes na paisagem eluvial e laterais nas supraqual e aqual. Na paisagem transeluvial os fluxos terão duas componentes, cuja intensidade diferencial irá depender das declividades das encostas. Os fluxos são tão mais intensos e rápidos, e verticais descendentes, quanto mais acima do nível freático eles ocorrem, tornando-se gradativamente lentos quanto mais próximo à zona de saturação do aquífero e, predominantemente laterais, com componentes ascendentes verticais nas paisagens supraqual e aqual, adjacentes. Em geral quanto mais próximo é o componente da paisagem da superfície atual do relevo, maior é sua significância quanto à migração elementar (Figura 3). Os fluxos de substâncias químicas no ambiente não são uniformes, no espaço e no tempo, variando durante a evolução das paisagens.

Gradientes

Gradiente significa a variação de determinada característica de um meio, como pressão, temperatura, umidade, etc., dum ponto a outro desse meio. Em pedologia e geomorfologia, gradiente é geralmente usado como medida de declividade de um terreno, da dinâmica da drenagem, variação de umidade, etc. Em última análise, são estes gradientes os controladores primordiais das taxas de migração e mobilidades relativas dos elementos químicos nos ambientes.

Gradientes geoquímicos resultam freqüentemente das variações na composição química das rochas. Um caso clássico deste tipo de gradiente, em geral utilizado na área exploracionista, é o modelo de distribuição vertical e horizontal de elementos em componentes de uma paisagem situados a jusante de um filão ou depósito mineral. Ressalte-se que, neste caso, é a concentração anômala, filão ou depósito mineral, a principal condicionante do gradiente geoquímico. No entanto, no caso de rochas com "**distribuição homogênea**" de elementos, que é o caso desta pesquisa, os gradientes geoquímicos são conseqüência de outros tipos de gradientes da paisagem, sobretudo a declividade do relevo e a variação textural das rochas, e, conseqüente destas propriedades, o gradiente de umidade. Estes gradientes são os principais controladores da formação dos diferentes tipos de solos, espessuras dos perfis e do modelamento das paisagens e controle das anomalias relativas de elementos, condicionando, no tempo, o tipo de evolução a que são submetidas.

Nos processos decorrentes dos gradientes acima mencionados são gerados ambientes geoquímicos diferentes daqueles da rocha inalterada. Em tal contexto, por exemplo, na paisagem eluvial o pH tem sua máxima acidez no topo do perfil, que decresce paulatinamente no sentido vertical até alcançar a zona saturada do aquífero freático. Distribuição semelhante também ocorre no sentido horizontal, da paisagem eluvial para a supraqual e aqual. Em termos gerais, idêntico raciocínio podemos aplicar à capacidade de oxidação do meio geoquímico. As condições mais severas de oxidação situar-se-iam no topo do perfil da paisagem eluvial (exceto o horizonte A carbonoso), gradando verticalmente para a zona de saturação do freático, e, horizontalmente, no sentido das paisagens supraqual e aqual, onde, em geral, predominam ambientes redutores. Os gradientes de Eh e pH, entre outros fatores, estão entre os principais que condicionam a redistribuição do U nas paisagens, podendo, nesse processo, gerar anomalias positivas ou negativas, associadas ao perfil de alteração das rochas, sobretudo na fase pedogenética do intemperismo químico. Desta maneira gradientes de teores de U controlados por esses

fatores, e devido as suas propriedades geoquímicas, em geral devem ocorrer nas paisagens.

Então, gradientes geoquímicos são de considerável importância em geoquímica de paisagens, sobretudo para o nosso estudo, seja com relação ao comportamento de um determinado elemento químico, como às condições ambientais como um todo. No ambiente, gradientes geoquímicos resultam de mudanças graduais ou abruptas nas condições das paisagens, podendo ocorrer em escala local, regional ou global, e, usualmente, estão relacionados com o fluxo de água ou ar. As mudanças nas condicionantes físicas e químicas, no sentido vertical da paisagem eluvial, por um lado, e no sentido horizontal entre as paisagens eluvial, transeluvial, supraqual e aqual, por outro, estabelecem gradientes de várias naturezas, que vão alterar a dinâmica da migração dos elementos, onde se inclui o U.

Barreiras

Barreiras geoquímicas são mudanças locais de condições em uma paisagem, podendo constituir-se em pontos de acumulação ou remoção preferencial de certos elementos, ou seja, em geral são seletivas. Elas podem ser condicionadas individualmente ou em conjunto, por fatores mecânicos, físico - químicos ou biológicos. Em casos extremos as barreiras geoquímicas podem condicionar a formação de depósitos minerais de valor econômico. Segundo PEREL'MAN (1967), citado por FORTESCUE (1980), existem barreiras em área e lineares. As do primeiro tipo são grandes áreas como campos, florestas, charcos, etc. e, em geral, são isotrópicas e isométricas no plano. Barreiras lineares, ao contrário das areais, cobrem relativamente pequenas áreas, como descontinuidades de taludes, zonas de falha, linhas de fontes, transição entre tipos de eco-sistemas, etc. Podem ter alguns centímetros a metros (solos), até vários quilômetros (formações). Também podem se formar nas paisagens abaixo da superfície topográfica atual, onde condicionam uma mudança no comportamento migracional dos elementos nesses locais. As barreiras são, predominantemente, dos seguintes tipos: **mecânicas**, onde ocorrem mudanças abruptas na velocidade dos fluxos; **biológicas**, relacionadas com a presença de húmus; **físico-químicas**, representadas por argilas, elementos tipomórficos e mudanças de Eh e pH, **e combinação dos tipos acima**.

Os fatores de maior condicionamento de barreiras geoquímicas no ambiente são, sem dúvida, os argilo-minerais, óxidos metálicos e matéria orgânica (MO). A influência destes materiais na acumulação de U deve-se às suas composições químicas e estruturas cristalinas, caracterizadas por uma grande superfície específica. Baseado em inúmeros

autores, LANGMUIR (1978) afirma que a adsorção de espécies uranila, a partir de águas subterrâneas, em materiais coloidais orgânicos e inorgânicos, como MO, oxihidróxidos de Fe, Mn, Ti e argilas, tem o papel principal na concentração de U no ambiente superficial. Segundo este autor, a faixa de pH (aproximadamente entre 5 e 8) de solubilidade mínima dos minerais uranila é também a de sorção máxima do íon uranila nesses materiais.

Embora o U não seja necessariamente associado com substâncias carbonosas, em geral ele é adsorvido pela matéria orgânica durante sua migração, seja por trocas iônicas ou por formação de compostos químicos. A capacidade de sorção de $(UO_2)^{2+}$ pelos ácidos húmicos no ambiente superficial depende da acidez do ambiente, decrescendo com o valor de pH. Na sorção, o H^+ compete com o íon uranila, não havendo uma troca fácil. Quando a concentração de H^+ cai, o equilíbrio da reação volta-se no sentido da formação de uranil - humatos. Durante tal processo, mais H^+ são trocados por $(UO_2)^{2+}$. Inúmeros estudos sobre adsorção de metais em argilas e ácidos húmicos tem revelado que **“a quantidade de metais adsorvidos diminui com o abaixamento de pH do meio e com a competição entre outros metais”**, como Zn^{2+} , Mn^{2+} , entre outros (BOROVEC et al., 1981). A afinidade dos ácidos húmicos por íons uranila é mais forte que por H^+ . Ou seja, os íons $(UO_2)^{2+}$ podem ser substituídos por H^+ somente se este último estiver presente em muito alta concentração. De outro modo, durante a migração do urânio, na forma de $(UO_2)^{2+}$, ácidos húmicos fixam o U formando humatos insolúveis de uranila (FARRAH; PICKERING, 1979; BOROVEC et al., 1979, citados por BOROVEC, 1981). O alto conteúdo de urânio em materiais argilosos ricos em matéria orgânica (MO) é um fato bem conhecido. A MO das águas naturais e solos tem um papel importante na fixação do urânio. Os íons uranila das soluções são retidos por níveis carbonosos, raízes, etc., formando compostos estáveis ou apenas adsorvidos pela matéria orgânica. Isto significa que a redução do urânio a +4 não é sempre necessária para sua fixação. Mas, se a redução dos íons uranila não ocorrer após a adsorção, estes poderão ser posteriormente “desorvidos” sob condições de maior acidez (LANGMUIR, 1978).

As frações argilosas com predominância de ilitas ou montmorillonitas e caolinitas são efetivas na adsorção de $(UO_2)^{2+}$. A quantidade máxima do íon uranila e seus hidróxidos complexos que podem ser adsorvidos, é diretamente proporcional à sua capacidade de troca de cátions (CTC) e às áreas específicas desses materiais. A relação entre adsorção e superfície específica dos argilo - minerais, depende do coeficiente de adsorção desses materiais, mais baixo do que o dos ácidos húmicos. O coeficiente de adsorção para minerais individuais de argila é constante, aumentando de 50 para 10^3 na seqüência: caolinita < ilita < montmorillonita (Borovec, 1981). O íon $(UO_2)^{2+}$ e seus complexos são fixados nas partes externas e internas no caso das montmorillonitas, e somente nas partes externas no

caso das caolinitas. Em condições naturais, a significância de minerais de argila como adsorventes de U, depende se eles estão em suspensão numa solução ou em camadas impermeáveis às soluções, que impedem a sua penetração. Também depende da densidade de carga na superfície dos minerais, e sinal, se positivo ou negativo. Em depósitos sedimentares somente a montmorillonita em fissuras e juntas, ou finamente dispersa em rochas permeáveis, são capazes de adsorver grandes quantidades relativas de $(\text{UO}_2)^{2+}$.

O conceito de mobilidade de um elemento-traço, quando estabelecido a partir de critérios mineralógicos, ou considerações teóricas, não permite uma boa avaliação do seu comportamento na escala do perfil ou de uma paisagem. Um elemento móvel liberado do cristal pode ser aprisionado e fixado em outro horizonte do perfil de alteração, controlado pelos elementos tipomórficos presentes, ou ser completamente eliminado da paisagem (SAMAMA, 1971). Assim, os processos de alteração supergênica, sobretudo os pedológicos, têm importantes implicações mineralógicas e geoquímicas, sendo considerados como fator importante de enriquecimento ou empobrecimento, e o principal agente geoquímico na separação de metais, incluindo o U e o Th (Ra). Ou seja, dependendo do tipo de alteração e das condições geoquímicas da paisagem, Eh, pH e presença ou ausência de elementos tipomórficos, o U^{+6} pode ter comportamentos de mobilidade bastante diferenciados, significando que estes processos podem acentuar ou atenuar as características geoquímicas do embasamento rochoso (Figura 11, p. 75).

Um trabalho clássico sobre a concentração relativa de elementos em produtos pedogenéticos muito evoluídos é o de ADAMS e RICHARDSON (1960), sobre a concentração de U, Th e Zr em bauxitas, onde a natureza das fases hospedeiras e a questão dos elementos tipomórficos são evidenciadas. Segundo esses autores, as bauxitas originadas de rochas ácidas são aproximadamente 4 vezes mais ricas em U e Th do que as derivadas de rochas básicas, sendo a magnitude desses fatores dependente da fração da massa original removida em solução, e da quantidade de U e Th lixiviados. Com base no exposto, assumindo-se que na "pedogênese laterítica" o Th permanece fixo durante o intemperismo e pedogênese, incluindo a bauxitização, então o fator mínimo de concentração para esse elemento depende somente da quantidade da rocha original removida. Assim, se todo o U e o Th ocorresse em minerais resistatos, a "pedogênese laterítica" concentraria os elementos sem mudança da razão Th/U. Mas, em geral, a razão Th/U nas bauxitas é mais alta do que as razões médias das suas rochas de origem, significando uma perda de U. Considerando que nenhum Th é perdido, os autores citados estimam que neste processo,

aproximadamente 20% do urânio das rochas ígneas e folhelhos é lixiviado do nível bauxítico (Tabela 8).

Assim como ADAMS e RICHARDSON(1960), FERRAIOLI e FERREIRA (1987), estudando o comportamento geoquímico de U_3O_8 , Y, Ga, V e Zn, em um perfil bem drenado da seqüência laterito-bauxítica de Croantá - Paragominas (PA - Brasil), constataram que a

TABELA 8 – VALORES MÉDIOS PARA Th, U e Th/U EM BAUXITAS E RESPECTIVAS ROCHAS - FONTE

TIPO DE ROCHA	Th (ppm)	U (ppm)	Th/U
Folhelhos ¹	12,0	3,7	3,8
Fator de concentração	(3,7)	(2,8)	(1,3)
Bauxitas derivadas de folhelhos (4 amostras)	44,1	10,5	5,1
Urânio lixiviado		(23%)	
Ígneas básicas ²	3,9	0,96	4,0
Fator de concentração	(5,3)	(4,4)	(1,3)
Bauxitas de ígneas básicas (6 amostras)	20,7	4,2	5,2
Urânio lixiviado		(18%)	
Ígneas ácidas ²	13,0	3,0	5,0
Fator de Concentração	(6,9)	(5,3)	(1,6)
Bauxitas de ígneas ácidas (6 amostras)	89,1	15,8	7,8
Urânio lixiviado		(24%)	

FONTE: Extraída de FERRAIOLI e FERREIRA (1987)

distribuição e a fixação dos elementos U e V, teoricamente solúveis, ocorre no perfil laterítico associado às concreções de óxido de ferro ou mudanças no pH, como uma função da profundidade do solo. Afirmam que o urânio remanescente na bauxita corresponde à parte ocorrente nos minerais resistatos da rocha-mãe, e concluem que aproximadamente 40% do urânio foi carregado por ocasião do processo de bauxitização. Estes dados confirmam inúmeros trabalhos existentes na literatura que indicam a adsorção como um dos principais mecanismos para a fixação de U e Th (Ra), particularmente onde argilas, matéria orgânica e hidróxidos de Fe, Al e Mn estão presentes (SMYTH et al., 1980, ZHMODIK et al., 1980, citados por TIEH et al., 1980).

Assim, além das barreiras geoquímicas representadas pela matéria orgânica, argilas e elementos tipomórficos, que fazem com que o Th e parte do U liberado dos minerais hospedeiros na zona de oxidação e de pH ácido da paisagem eluvial fique retido no próprio local, a parte do U que migra para níveis mais profundos encontra, ao nível da superfície freática, condições de menor oxidação e pH mais alcalinos, podendo haver fixação parcial ou total desse elemento. Havendo parte remanescente, esta é conduzida pelo fluxo lateral de águas subterrâneas no sentido das paisagens supraqual (e aqual). Estas paisagens tem como característica básica o fato de apresentarem baixa circulação hídrica e de serem

áreas em que os solos encontram-se freqüentemente saturados em água. Isto condiciona ambientes redutores e, também, alcalinos, com a presença das bases lixiviadas do perfil de alteração da paisagem eluvial. Em geral, nessas regiões, devido ao ambiente estagnado, há o acúmulo de matéria orgânica reforçando o caráter redutor do ambiente. Em tais condições, o U ainda em solução é precipitado ou adsorvido. Desta maneira, o U liberado dos minerais hospedeiros e não fixado nas partes superiores do perfil, passa a constituir um horizonte enriquecido ao nível de oscilação do freático, que pelos aspectos mencionados é uma barreira físico-química de grande eficiência na retenção do U em solução.

Geoquímica Histórica das Paisagens

O conceito da história geoquímica das paisagens é de fundamental importância, na medida em que permite determinar, através de estruturas reliquias, a superposição ou não de ciclos anteriores, o que torna o entendimento do padrão de migração dos elementos mais claro. Embora uma paisagem possa parecer uniforme, as chances de que tenha uma história geomórfica complexa são grandes, incluindo sistemas pedológicos de transformação como, por exemplo, o sistema Latossolo – Solo Podzólico, de ocorrência comum em paisagens tropicais úmidas. Mudanças climáticas resultam em mudanças nas taxas do intemperismo que, por sua vez, afetam a migração de elementos e a formação de solos.

TABELA 9 – MOBILIDADE DE ELEMENTOS EM AMBIENTES GEOQUÍMICOS SUPERFICIAIS

MOBILIDADE RELATIVA	OXIDANTE (pH 5-8)	OXIDANTE (pH <4)	REDUTOR
Altamente móveis (K > 10)	Cl, Br, I, S, Rn, He, C, N, Mo, B (Se, Te, Re?)	Cl, Br, I, S, Rn, He, C, N, B	Cl, Br, I, Rn, He
Moderadamente móveis (K = 1-10)	Ca, Na, Mg, Li, F, Zn, Ag, U, V, As (Sr, Hg, Sb?)	Ca, Na, Mg, Sr, Li, F, Zn, Cd, Hg, Cu, Ag, Co, Ni, U, V, As, Mn, P	Ca, Na, Mg, Li, Sr, Ba, Ra, F, Mn
Fracamente móveis (K = 0,1-1)	K, Rb, Ba, Mn, Si, Ge, P, Pb, Cu, Ni, Co (Cd, Be, Ra, In, W?)	K, Rb, Ba, Si, Ge, Ra ^b	K, Rb, Si, P, Fe ^c
Imóveis (K < 0,1)	Fe, Al, Ga, Sc, Ti, Zr, Hf, Th, Pa, Sn, terras raras, metais de Pt, Au (Cr, Nb, Ta, Bi, Cs?)	Fe, Al, Ga, Sc, Ti, Zr, Hf, Th, Pa, Sn, terras raras, metais de Pt, Au, As ^b , Mo ^b , Se ^b	Fe, Al, Ga, Ti, Zr, Hf, Th, Pa, Sn, terras raras, metais de Pt, Au, Cu, Ag, Pb, Zn, Cd, Hg, Ni, Co, As, Sb, Bi, U, V, Se, Te, Mo, In, Cr (Nb, Ta, Cs?)

FONTE: Extraída de ROSE et al. (1979)

NOTAS: ^aBaseado em dados de Perel'man (1967); ^bNa presença de limonita; e

^cPotencial de oxidação intermediário.

Portanto, nesta pesquisa, considera-se apenas um ciclo de intemperismo como fator de formação dos solos, mas podendo incluir diferentes fases pedogenéticas, e responsável pela migração das soluções (soluções verdadeiras e coloidais) contendo elementos químicos, incluindo U e Th, e sua fixação nos diversos ambientes geoquímicos das diferentes paisagens (Tabela 9). O desenvolvimento histórico das paisagens envolve considerações paralelas sobre as paisagens eluvial, transeluvial, supraqual e aqual. Informações sobre uma parte freqüentemente contribui para a solução dos problemas nas partes adjacentes.

Classificação Geoquímica das Paisagens

GLAZOVSKAYA (1963) e PEREL'MAN (1966), citados por FORTESCUE (1980), classificam as paisagens geoquímicas de duas maneiras distintas. Enquanto o primeiro autor se baseia nas relações entre as paisagens geoquímicas elementares, eluvial, supraqual e aqual, e o substrato geológico sobre o qual elas se desenvolvem, o segundo toma por base o tipo de cobertura vegetal. Sob esta ótica, as paisagens são classificadas como **abiogênicas**, aquelas onde o intemperismo físico e mecânico são mais importantes, e **biogênicas**, onde a biosfera tem um importante papel na migração de elementos.

3.3 ANOMALIAS DE U E Th, TIPOS DE SOLOS E PAISAGENS GEOQUÍMICAS

Sob um mesmo tipo climático, a composição química e mineralógica das rochas influencia a natureza das coberturas residuais, principalmente no que diz respeito às suas feições morfológicas, relevo superficial e composição dos diversos horizontes do perfil de solos. Na zona intertropical úmida brasileira as coberturas formadas pela associação entre Latossolos e Solos Podzólicos, como abordado no Capítulo 2, perfazem cerca de 80% do total das coberturas residuais (vide Tabela 3, p. 44).

Nos trópicos úmidos, durante a pedogênese, a lixiviação, o transporte e redeposição de elementos solúveis são comandados principalmente pela circulação da água, enquanto modificações de volume da rocha fazem aparecer níveis de concentrações relativas, neste caso sem o deslocamento dos elementos. Em tal ambiente, em geral oxidante acima do nível freático, podem ocorrer duas situações limite, que variam em função do pH e das condições de lixiviação; o elemento considerado migra para a parte inferior do perfil, como o Ni, ou permanece na superfície, ou em sua proximidade, como é o caso do Fe. Havendo inclinação da superfície topográfica, que é o caso da maioria das vertentes, à lixiviação *per descensum* soma-se o efeito da lixiviação lateral (GRANIER, 1973). Percebe-se, então, que inter-relacionados aos fatores pedogeoquímicos, os fatores hidrogeológicos e geomorfológicos, são importantes neste tipo de evolução. Segundo GRIMBERT (1963), citado por GRANIER (1973), mesmo no caso de metais com uma dispersão essencialmente química, como é o caso do urânio, podem ser geradas anomalias de vertente, ou ruptura de talude, devido a esse tipo de evolução. Anomalias uraníferas sucessivas nas proximidades do nível hidrostático são comuns sobre rochas de *background* relativamente elevado nos radionuclídeos U e Th, caso típico das rochas graníticas.

Anomalias geoquímicas superficiais não relacionadas a depósitos minerais ou contaminação antrópica, geralmente são vinculadas a rochas que se caracterizam por um *background* elevado em determinados elementos, sendo essas rochas, no entanto, consideradas normais. O intemperismo químico e pedogênese de *rochas* com elevado *background* em determinados metais pode proporcionar uma fase aquosa com altos teores nesses metais (ROSE et al., 1979). A fase aquosa do sistema de alteração é o principal agente redistribuidor dos elementos químicos entre os diversos horizontes de um perfil de solos e entre as diversas paisagens de uma vertente.

As principais propriedades do ambiente que afetam a dispersão química dos elementos em superfície são o Eh, o pH, conteúdo de matéria orgânica, tipos de argilo-minerais e teor em óxidos de Fe, Al e Mn, condicionando a natureza e intensidade dos

processos pedogeoquímicos. O contraste entre o conteúdo de metais em solos residuais e os teores normais desses metais nas rochas subjacentes, em uma determinada área, refletirá a intensidade das anomalias, consequência da resposta do embasamento rochoso ao ambiente climático, condicionada pelos fatores morfológicos e pedogenéticos locais. Com os demais parâmetros constantes, o maior contraste deverá ocorrer em áreas de precipitação e relevo moderados.

Enfim, neste item busca-se entender quais os horizontes pedogenéticos fornecedores e receptores de U e Th (Ra) durante a pedogênese, de maneira a se estabelecer uma regra operacional associando rocha - mãe, anomalias radioativas, perfis e tipos de solos e geoformas. Como a principal fase de mobilização dos elementos químicos na paisagem ocorre durante a pedogênese, é válido afirmar que a atuação dos processos geoquímicos que levaram à redistribuição do U e do Th (Ra) tenha se processado concorrentemente com os processos pedogenéticos, morfogenéticos e hidrogeológicos, durante a evolução das paisagens. É, pois, de se esperar que as principais anomalias desses radioelementos, positivas ou negativas, e horizontes e tipos de solos das várias paisagens, estejam cronológica e espacialmente relacionadas. É o que será analisado a seguir, ressaltando que não são levados em conta possíveis aportes externos de radioelementos.

3.3.1 Conceituação das Anomalias

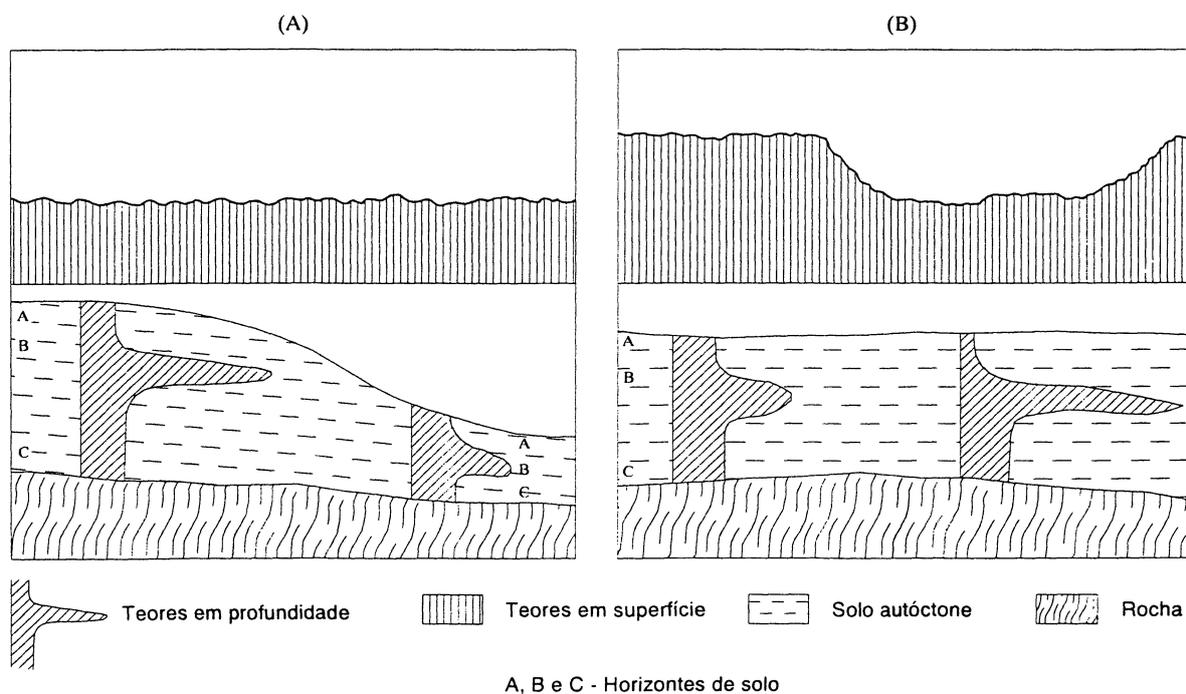
No ambiente pedogenético as anomalias podem ter origens *alógena* e/ou *autígena*. As alógenas, de superimposição ou absolutas são o resultado do aporte externo, tanto de origem química quanto mecânica. Elas são o oposto de anomalias autígenas, ou de *repartição*, que resultam da modificação da repartição de determinados elementos num meio. A diferenciação entre estes tipos de anomalias não invalida o fato de que na natureza esses dois se encontram freqüentemente justapostos. As anomalias de repartição, relativas residuais ou singenéticas, podem corresponder a uma evolução pedogenética num plano vertical ou nos planos vertical e horizontal simultaneamente, tendo pouca importância em formações pedogenéticas pouco espessas. O estudo destas anomalias só faz sentido em escala de detalhe, como a escala das encostas de uma bacia de drenagem, e a sua pesquisa deverá ser conduzida de forma diferente daquela aplicada às anomalias de superimposição (GRANIER, 1973).

No caso das anomalias de repartição, enfoque desta pesquisa, associada às zonas de concentração, haverá zonas de lixiviação. As diferenças de teores resultantes dos

processos pedogenéticos de lixiviação e concentração, durante a formação dos solos, são visíveis mesmo com elementos ou associações de elementos particularmente inertes, dos quais o teor varia durante as alterações, uma vez que as transformações raramente são isovolumétricas. Nas alterações superficiais as **concentrações relativas** devidas à lixiviação dos elementos acompanhantes, são particularmente importantes para elementos como Fe, Al, Mn e Ti.

A espessura de alteração e a intensidade de lixiviação, são determinantes no que concerne às concentrações relativas. Segundo GRANIER, *op. cit.*, para uma mesma taxa de lixiviação, maior espessura de material lixiviado significa um maior enriquecimento dos níveis anômalos em profundidade e teores residuais aproximadamente iguais em superfície. Diferentes taxas de lixiviação levam a diferentes concentrações residuais em superfície e diferentes acumulações em profundidade (Figura 12). Assim, é de se esperar, não se

FIGURA 12 – CONCENTRAÇÕES METALÍFERAS SUBSUPERFICIAIS EM FORMAÇÕES PEDOLÓGICAS: (A) INFLUÊNCIA DA ESPESSURA DE ALTERAÇÃO, E (B) INFLUÊNCIA DA INTENSIDADE DE LIXIVIAÇÃO



FONTE: Adaptada de GRANIER (1973)

considerando aportes laterais, que anomalias de repartição mais intensas devem ocorrer na paisagem eluvial, onde os perfis pedogenéticos são mais espessos. Por outro lado, a influência da taxa de lixiviação é muito importante sobre os teores e a repartição dos elementos em locais de solos menos espessos, situação característica das encostas da paisagem transeluvial. Os principais fatores que determinam a forma e o gradiente das anomalias relativas ou de repartição são: a posição espacial e forma das litologias fonte dos elementos, espessura de alteração pedogenética e a inclinação dos terrenos.

De acordo com ROSE et al. (1979), os modelos geoquímicos de dispersão superficial podem ser geneticamente classificados conforme a idade relativa da matriz hospedeira e seu modo de formação. Nesta classificação, os modelos, ou anomalias, em que os metais foram introduzidos simultaneamente à formação da matriz são ditos **singenéticos**, e, posteriormente, **epigenéticos**. Adicionalmente, podem ser do tipo **clástico** se envolvem o movimento de partículas sólidas, **hidromórficos** se o agente dinâmico são soluções aquosas e **biogênicos** se decorrem de atividade biológica. Ainda segundo ROSE et al., **op. cit.**, padrões de anomalias podem ser reconhecidos pela presença no perfil de solos de minerais primários diagnósticos e pela relação entre metal solúvel, ou abundância parcial, e metal total contido (Ms/Mt), conceito similar ao de Us e Ut (Us/Ut).

No caso de uma paisagem livremente drenada, como a paisagem eluvial, em geral a relação Us/Ut é baixa, sendo alta somente sob raras circunstâncias. Em ambientes mal drenados e/ou ricos em matéria orgânica, como é o caso dos Solos Hidromórficos da paisagem supraqual, em geral as anomalias são de caráter fundamentalmente uranífero e desenvolvem padrões caracterizados pela predominância de U móvel, ou solúvel, resultando em altas razões Us/Ut, que tendem a unidade. Situações intermediárias devem ocorrer na paisagem transeluvial, associadas aos Solos Podzólicos. Por outro lado, a razão Th/U, aproximadamente 4 em rochas ígneas, muda significativamente no ambiente superficial, devido ao comportamento geoquímico diferenciado desses elementos. Em perfis de alteração as razões mais elevadas de Th/U são observadas em solos intensamente lixiviados, como os Podzólicos e Latossolos. ADAMS e RICHARDSON (1960) constataram que a razão Th/U aumenta com a bauxitização. Durante lixiviação intensa, parte do U é redistribuído para baixo e lateralmente pelas águas subterrâneas, enquanto o Th permanece. As relações mais baixas ocorrem em locais com enriquecimentos em U.

No entanto, o solo é um meio heterogêneo e anisótropo, constituído por uma sucessão de horizontes com características diferentes. Por conseqüência, é difícil estabelecer relações confiáveis entre os teores dos elementos da rocha inalterada com a extensão e gradiente do teor das anomalias em solos, pois os efeitos dos processos

pedogenéticos e geoquímicos são de difícil previsibilidade. Por isso, a aplicação destes tipos de relações devem ser apoiadas em controles de campo, que fornecerão o grau de confiabilidade necessária à sua utilização. Sob condições controladas, as razões Th/U e Us/Ut podem servir como indicadores da natureza e intensidade dos processos pedogenéticos condicionadores da intensidade dos processos geoquímicos de intemperismo (VINOGRADOV, 1959).

3.3.2 Caracterização das Anomalias

A associação entre Latossolos e Solos Podzólicos em vertentes sobre granitos é uma situação de ocorrência muito comum em paisagens tropicais úmidas diferenciadas. Este tipo de associação, conforme abordado no Capítulo 2, em geral constitui um sistema de transformação Latossolo – Solo Podzólico. Em tal sistema os Solos Podzólicos, ocorrentes na paisagem transeluvial, são o resultado da transformação dos Latossolos, estes situados na paisagem eluvial. À paisagem supraqual comumente estão associados Solos Hidromórficos. Então, neste item, será efetuada uma análise integrada sobre as relações entre tipos de paisagens geoquímicas, tipos de solos e as anomalias resultantes da evolução pedogeoquímica das paisagens durante os tempos geológico e pedológico. Serão evidenciadas as principais características das anomalias ocorrentes em cada paisagem, notadamente as fases hospedeiras do U e do Th e seus reflexos nas razões Th/U e Us/Ut e nas intensidades gamaradiométricas, além da sua localização espacial nas vertentes em associação com os vários horizontes dos diferentes perfis de solos.

Paisagem Eluvial (Latossolos)

Na paisagem eluvial os solos residuais de ocorrência mais comum são os Latossolos. São solos maduros, bem desenvolvidos e livremente drenados. Nos Latossolos, os metais oriundos da rocha subjacente, além da parte hospedada em resistatos, são fixados em associação com argilas e óxidos de Fe, Al e Mn, principalmente, com concentrações bastante pronunciadas no topo do horizonte B latossólico (Figura 13; Tabela 10). Este é um modelo que bem traduz a redistribuição do U e Th oriundos de rochas graníticas. Mas, à medida que nos aprofundamos nesse horizonte, de um modo geral as concentrações diminuem, e a proporção de U e Th em resistatos progressivamente cede lugar a metais livres dos seus hospedeiros primários, principalmente no intervalo de oscilação do nível freático, associados com óxidos de Fe e Mn e argilas (Figuras 13 e 14).

Este mesmo tipo de diferenciação, em linhas gerais, também ocorre no plano horizontal, da paisagem eluvial no sentido da supraqual, ao longo das vertentes.

TABELA 10 – EXEMPLO DE DIFERENCIAÇÃO DO TEOR DE METAL DE ANOMALIAS SITUADAS EM DIFERENTES HORIZONTES DE UM LATOSSOLO, ÁFRICA CENTRAL

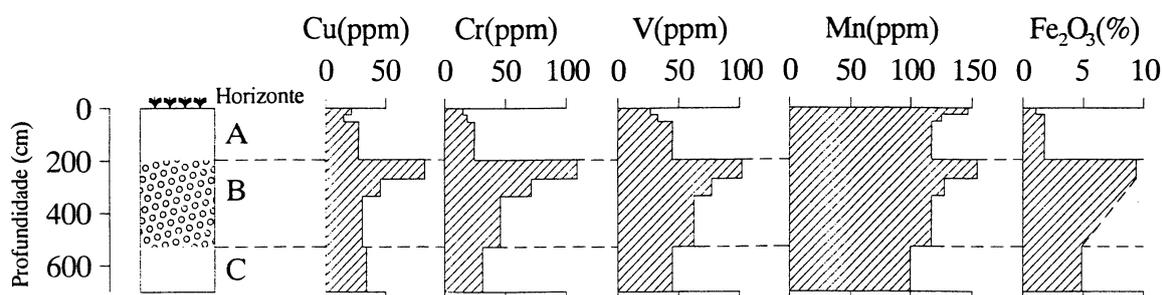
Horizontes de solo	Descrição	Perfil próximo a depósito de Cu (ppm)	Perfil sobre depósito de Cu (ppm)	Perfil próximo a depósito de Pb (ppm)
A1	Solo húmico superficial	130	300	350
	Solo arenoso	160	300	140
B	Solo compacto com concreções ferruginosas	400	1.000	880
C	Material parental intemperizado	200	2.000	170

FONTE: Extraída de ROSE et al. (1979)

NOTA: Dados para a fração < 80 mesh.

Assim, sob as condições de alteração enfocadas, os granitóides são quase que totalmente caolinizados, traduzindo-se em substancial perda de K. Nessas condições, porém, no caso do U e Th, é mantida uma retenção aparente de 60 a 80 % (DICKSON; SCOTT, 1997), constituindo anomalias relativas, provavelmente associadas às fases resistato, óxido e argilas, fases típicas da “pedogênese laterítica”. A retenção de U nos perfis de alteração de rochas profundamente alteradas deve-se à estabilidade das fases acessórias contendo U, e ao U adsorvido aos produtos do intemperismo, como argilas e

FIGURA 13 – VARIAÇÃO DO TEOR EM METAL NOS HORIZONTES DE UM PERFIL DE LATOSSOLO NA ZÂMBIA



FONTE: Extraída de ROSE et al. (1979)

NOTA: Dados para a fração < 80 mesh

óxidos de Fe e Mn. Sabe-se que compostos de U solúvel são fortemente adsorvidos em “geles” de hidróxidos de Fe, Mn e Al e em sílica gel. Quanto maior é a superfície específica, ou quanto mais nova e menos cristalizada é uma substância, maior é a sua capacidade adsortiva. Ou seja, solos com maior proporção de fração coloidal são mais radioativos (RANKAMA; SAHAMA, 1950, citados por BARTON, 1956).

As principais anomalias de U e Th nos Latossolos da paisagem eluvial, situadas no topo do horizonte B, portanto, caracterizam-se por uma razão Th/U e U_s/U_t , respectivamente muito alta e muito baixa, com relação às mesmas razões nas rochas inalteradas, tendo em vista a predominância das fases resistato nessas anomalias. Da mesma forma caracterizam-se por intensa contagem gama (Tabela 11), uma vez que, no caso de granitos, os minerais resistatos são os principais hospedeiros de U e Th. No entanto, diferenças consideráveis nos parâmetros mencionados devem ocorrer quando as concentrações de U e Th são medidas no horizonte A e no corpo do horizonte B, devido à modificação das proporções entre Th e U, e U_s e U fixo (U_f).

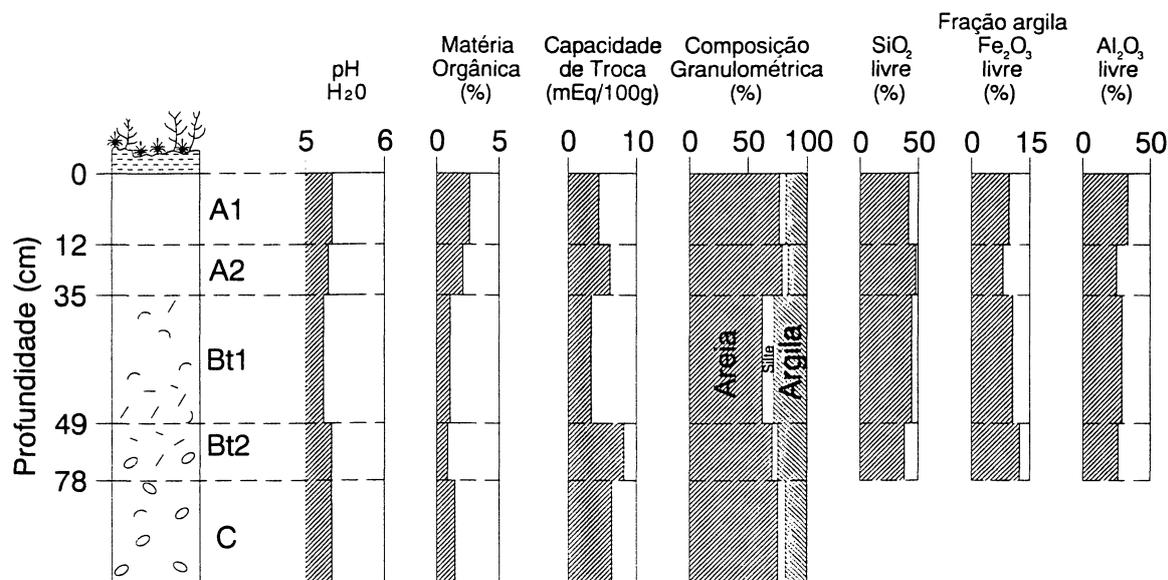
Paisagem Transeluvial (Solos Podzólicos)

Como visto, no ambiente tropical úmido, os Solos Podzólicos são o resultado da transformação dos Latossolos. No processo de podzolização os metais móveis, incluindo o U, das concentrações associadas aos Latossolos tendem a ser eluviados e empobrecidos no horizonte A e enriquecidos no horizonte B textural. Do ponto de vista geoquímico, o maior agente catalizador da lixiviação, e determinante do caráter de todo o perfil de solos, é o húmus, que em geral é acumulado no horizonte A (Figura 14).

O Th e seus compostos são praticamente insolúveis no ambiente pedogenético, e a sua concentração nos horizontes de solo é devida, principalmente, à acumulação de grãos minerais (VINOGRADOV, 1959), pois, além dos compostos óxidos de Th, os principais portadores de Th e U, monazita e zircão, são estáveis durante o intemperismo, devendo acumular-se como depósitos residuais. O Th livre pode ser retido sobretudo em oxihidróxidos de Fe, Al. No entanto, assim como o U, o Th também pode ser transportado em solução coloidal, adsorvido em argilas e óxidos de Fe coloidais (DICKSON; SCOTT, 1997) e colóides orgânicos (VIERS et al., 1997), o que pode ocorrer em condições de podzolização na presença de ácidos húmicos. Durante o retrabalhamento das anomalias associadas aos Latossolos, de acordo com TIEH et al. (1980), a redistribuição de resistatos contendo Th e U, bem como a maior parte dos minerais e fases coloidais contendo Th, podem ser afetadas pelos processos pedogenéticos de eluviação - iluviação.

O horizonte B textural, iluviado, em geral de cor vermelha ou marrom-amarelada, é enriquecido em argilas, óxidos de Fe e Al e compostos orgânicos. O nível onde ocorre a iluviação depende da diminuição da acidez da água, o que ocorre à medida que ela reage com o solo durante a percolação descendente. Tal variação de pH floclula o material coloidal e precipita os óxidos, principalmente na porção superior do horizonte. É no topo desse

FIGURA 14 – VARIAÇÕES NAS PRINCIPAIS PROPRIEDADES FÍSICAS E QUÍMICAS EM UM PERFIL DE SOLO PODZÓLICO, NA TOPOSSEQUÊNCIA HORTO B, BAURU (SP)



FONTE: Dados extraídos de SANTOS (2000)

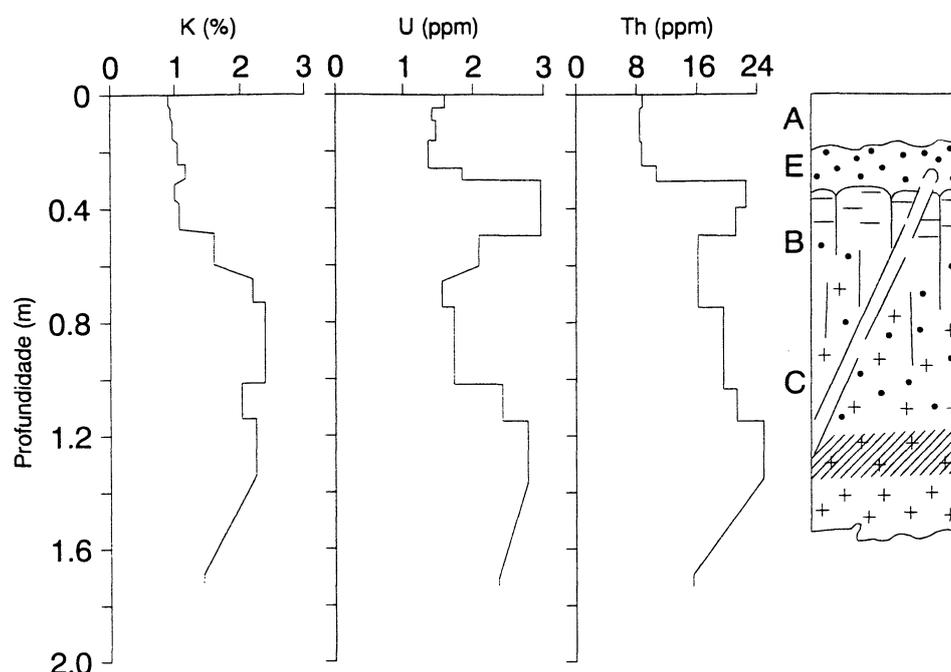
NOTA: Perfil sobre arenitos da Formação Bauru

horizonte que ocorrem as anomalias mais expressivas de U e Th (Figura 15). No horizonte A dos Solos Podzólicos, os solos arenosos altamente porosos em geral são pobres em radioelementos, devido à sua eluição juntamente com os materiais mais solúveis do topo do perfil. Em paisagens estáveis sobre granitos, valores de U, Th e K tendem a ser baixos no horizonte A podzolizado (Figura 16). Ainda, neste caso, podem ocorrer teores baixos em K e relativamente altos em U e Th, estes associados principalmente com acumulações superficiais de minerais resistatos e óxidos, remanescentes da queluição e eluição, processos partícipes da podzolização. Então, durante a podzolização, o horizonte A é mais intensamente lixiviado e, devido a isso, comumente não exibe radioanomalias significativas.

Assim, sobre rochas graníticas, Solos Podzólicos derivados de Latossolos, exibem as máximas concentrações do Th e U no topo do horizonte B textural, associadas com resistatos, sesquióxidos de Fe e Al, argilas e compostos orgânicos, sendo que concentrações de menor monta ocorrem ao longo do referido horizonte. Tendo em vista os fatos, processos e mecanismos já descritos, tais anomalias de U e Th caracterizam-se por

razões Th/U e Us/U médias, menos pronunciadas em relação aos Latossolos, uma vez que uma parcela considerável de Us associada às fases óxido e argilosas do corpo do horizonte

FIGURA 15 – DISTRIBUIÇÃO DE K, U E Th EM SOLO SOBRE ADAMELITO, INFLUENCIADA PELOS PROCESSOS DE ELUVIAÇÃO – ILUVIAÇÃO DE ARGILAS E ÓXIDOS DE Fe



FONTE: Modificada de DICKSON e SCOTT (1997)

NOTA: Adamelito situado em Sutton, New South Wales, Austrália

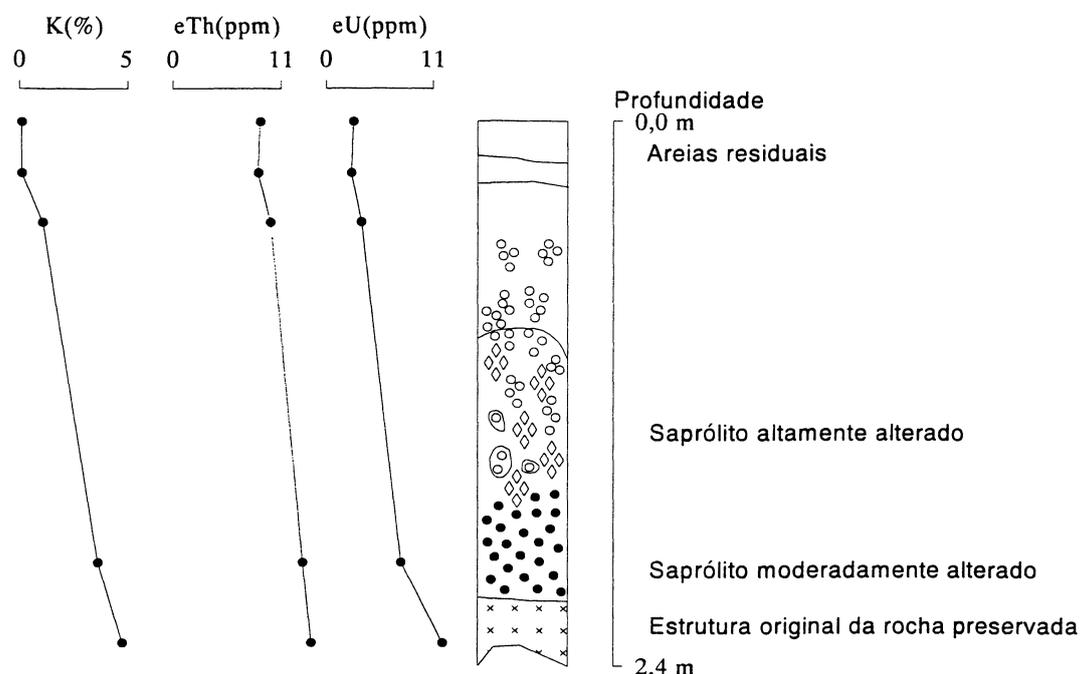
B dos Latossolos é remobilizada pelos processos de podzolização, fixando-se em fases semelhantes no topo do B textural dos Solos Podzólicos. Uma maior proporção de Us contribui para atenuar as relações mencionadas, que evidenciam, assim, uma maior participação relativa do U móvel neste contexto. Por outro lado, de modo geral, tendo em vista um maior grau de concentração de U e Th destas anomalias, por serem o resultado do retrabalhamento de anomalias pré-existentes, estas caracterizam-se por exibir manifestações gama muito intensas (Tabela 11).

Paisagem Supraqual (Solos Hidromórficos)

Tendo em vista que na paisagem eluvial e transeluvial a rocha está constantemente sob oxidação e lixiviação, as anomalias em Solos Hidromórficos podem exibir um elevado

contraste, pois estão sendo continuamente supridas por aportes de metal originário das paisagens mais elevadas. Isto é particularmente evidente nas laterais das zonas de surgência, onde as soluções são canalizadas pela topografia e a fixação controlada pela

FIGURA 16 – PERFIL DE INTEMPERISMO SOBRE GRANITO CONSTITUÍDO POR AREIAS RESIDUAIS ALTAMENTE LIXIVIADAS E POBRES EM K, eTh E eU



FONTE: Modificada de WILFORD et al. (1997)

NOTA: Granito localizado no norte de Queensland, Ebagoola, Austrália

distribuição local de Eh, pH, presença de matéria orgânica (MO) e argilo-minerais. A maior parte dos metais hidromorficamente dispersos, onde se inclui o U, é adsorvida principalmente em MO e argilas e co-precipitada em óxidos de Fe e Mn (ROSE et al, 1979).

Diferentemente dos metais contidos em resistatos dos solos residuais das paisagens eluvial e transeluvial, uma proporção substancial do metal das anomalias em ambiente hidromórfico é fracamente ligado às fases hospedeiras, portanto, facilmente extraível. Na Zâmbia, a proporção de todo o Cu facilmente extraível varia de 20% a 80% em anomalias hidromórficas, comparado com menos de 10% em anomalias residuais de solos livremente drenados (WEBB; TOOMS, 1959, citados por ROSE et al., 1979). Em horizontes de solos permanentemente úmidos, onde o U foi introduzido e distribuído por águas subterrâneas,

proporções muito significativas desse metal podem ser facilmente extraídas, pois são fixadas por adsorção em argilo-minerais e matéria orgânica (MO). A quantidade adsorvida é diminuída por soluções muito ácidas, como já discutido em tópico anterior. Em ambientes com valores de pH próximo da neutralidade, muitos metais, incluído o U, podem ser retidos, seja como elementos - traço adsorvidos ou co-precipitados.

Em Solos Hidromórficos a distribuição de U e outros metais mostra uma tendência a enriquecimento no horizonte A1, rico em MO. A localização e forma das anomalias nesse ambiente são devidas às relações locais entre relevo, nível freático e o fluxo de água subterrânea. O conteúdo básico de U móvel em Solos Hidromórficos tende a ser maior e mostrar uma maior variação do que em solos residuais livremente drenados. Devido à alta capacidade de troca da MO, existe uma relação direta entre a quantidade de U extraível, ou “solúvel”, e o conteúdo de MO dos solos. Tendo em vista o exposto, as anomalias radiométricas em Solos Hidromórficos são essencialmente uraníferas, e caracterizam-se por baixa relação Th/U e alta Us/Ut, esta tendendo à unidade. Por outro lado, a radiação gama detectável é moderada (Tabela 11; Figura 17).

TABELA 11 – ALGUNS ATRIBUTOS DAS PRINCIPAIS CONCENTRAÇÕES DE U E Th (Ra) EM SOLOS RESIDUAIS TROPICAIS ÚMIDOS NAS DIFERENTES PAISAGENS GEOQUÍMICAS DE UMA VERTENTE EM GRANITO

	Rocha Inalterada ¹	Paisagem Eluvial	Paisagem Transeluvial		Paisagem Supraqual
	Ausência de Solos	Latossolos ²	Solos Podzólicos ³	Solos Jovens	Solos Hidromórficos ⁴
Radiação gama ⁵	Moderada	Intensa	Muito intensa	Moderada	Moderada
Th/U	Alta (~4)	Muito alta	Média	Alta (~4)	Baixa
Us/Ut	Baixa	Muito baixa	Média	Baixa	Alta (~ 1)

FONTES: O autor

NOTAS: ¹Radionuclídeos disseminados pelas diferentes fases hospedeiras do granito.

²Principais concentrações devidas a resistatos com U e Th e situadas no topo do horizonte B latossólico.

³Concentrações devidas a resistatos com U e Th e U e Th adsorvidos, no topo do horizonte B textural. As razões Th/U e Us/Ut medidas no horizonte A arenoso em geral são, respectivamente, muito altas e muito baixas, devido à extrema lixiviação sofrida por esse horizonte.

⁴Principais concentrações devidas a U fixado por argilas e matéria orgânica e situadas no horizonte A.

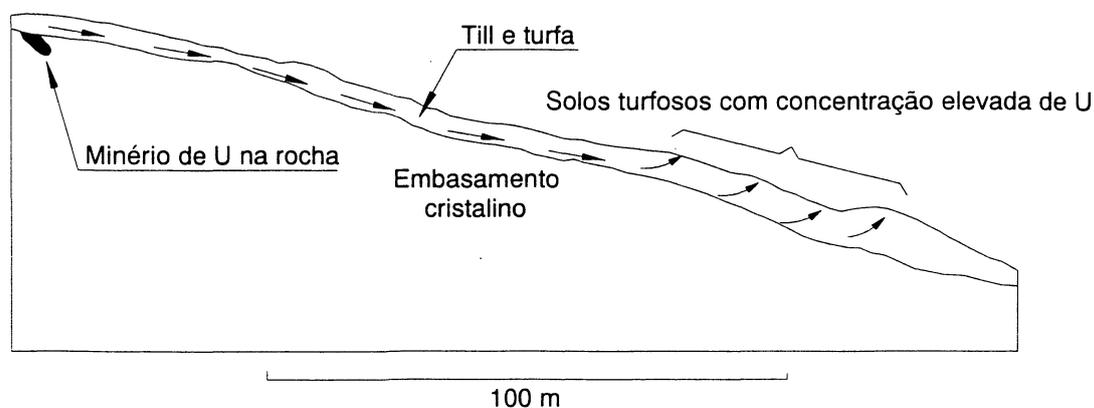
⁵Em bases relativas

Síntese Conclusiva

A nível mundial, inúmeros exemplos existem relacionando anomalias radioativas e solos residuais. Muitas ocorrências de Th e U em vários locais dos EUA, Brasil e em outros países, são associados com este tipo de coberturas. Por exemplo, argilas lateríticas resultantes da decomposição de rochas alcalinas de Jacupiranga, Brasil, contém

aproximadamente 2,30 % de ThO_2 . A **"Terra Rossa"**, cobrindo muitos carbonatitos, mostra alta radioatividade devido, principalmente, à adsorção dos elementos filhos do U e do Th (HEINRICH, 1958). A produção de anomalias de U e Th secundárias é dependente, antes

FIGURA 17 – ANOMALIA DE U EM SOLOS HIDROMÓRFICOS DE UMA ÁREA DE SURGÊNCIA NA PARTE INFERIOR DE UMA ENCOSTA MINERALIZADA, NA ESCÓCIA



FONTE: Modificada de ROSE et al. (1979)

de tudo, da abundância e modo de ocorrência primárias do U e do Th nas rochas de origem, da intensidade do intemperismo e do grau de remoção do U mobilizável dessas fontes (BROWN et al., 1953, citados por GUTHRIE; KLEEMAN, 1986). A depleção líquida de U das rochas é influenciada pelo decréscimo modal na abundância dos minerais acessórios, principalmente allanita, fluorita e apatita e do U em fases intergranulares. No perfil de alteração, o U é removido pelas águas de circulação, não somente como UO_2^{2+} , ou compostos orgânicos, porém, também, em suspensão adsorvido em argilas, devido aos processos de e-iluviação entre os horizontes A e B dos solos (VINOGRADOV, 1959).

Intemperismo e pedogênese de todos os tipos de rochas levam à perda de U, Th e K. A intensidade dessa perda depende do tipo de rocha, clima e fatores da paisagem, porém perdas típicas são da ordem de 20 a 30% para os 3 radioelementos em rochas félsicas (DICKSON; SCOTT, 1997). No caso do U e do Th, esta é, em média, a proporção do U e Th não associados às fases resistato. Durante intemperismo incipiente, as rochas mostram pequenas variações nas concentrações desses radioelementos, porém durante a fase pedogenética, em geral, há um enriquecimento dos solos em U e Th com uma concentração 2, 3 ou mais vezes maior que as contidas nas rochas originais, constituindo anomalias (ADAMS; RICHARDSON, 1960, SAMAMA, 1971, DICKSON; SCOTT, *op. cit.*). O Th e seus compostos são insolúveis no ambiente pedogenético, e os minerais de Th não são

facilmente decompostos durante o intemperismo. A concentração de Th nos horizontes de solo é devida à acumulação de grãos desses minerais (VINOGRADOV, 1959) e adsorção por fases coloidais. Também, os principais portadores de Th, e U, monazita e zircão, são estáveis durante o intemperismo devendo acumular-se como depósitos residuais. A parte solúvel do U é lixiviada, podendo concentrar-se nas partes mais profundas do perfil, ou ser transportada para as paisagens mais a jusante, ou ainda, eliminada do sistema de alteração. Em contexto de podzolização, na escala dos perfis de solos, U e Th podem ter mobilidades idênticas conforme indicado pelas Figuras 15 e 16 (p. 97 e 98).

Assim, materiais intensamente lixiviados, como os da associação Latossolos - Solos Podzólicos, mostram elevação relativa nos valores de U e Th, pela acumulação de resistatos e pela associação com as fases argilo-carbonosas e/ou óxidos de Fe, Al e Mn, no horizonte B dos perfis de intemperismo. Altos teores de U e Th correspondem à concentração de minerais resistatos, como o zircão, e adsorção por óxidos de Fe (WILFORD et al., 1997). Testes de peneiramento em solos demonstram que U e Th estão diretamente associados com as frações mais finas dos solos, em geral argilas neoformadas durante a pedogênese. Mesmo no caso da “pedogênese bauxítica”, caso onde ocorre uma lixiviação extrema da maioria dos elementos químicos da paisagem, U e Th podem ser relativamente concentrados, conforme verificaram ADAMS e RICHARDSON (1960). Segundo esses autores, o teor em U e Th das bauxitas é geralmente maior que o das suas rochas originais. Os diferentes tipos de distribuição de U e Th nas fases hospedeiras secundárias nos perfis abordados, e a intensidade de suas concentrações, refletem os tipos de ligação desses metais com suas fases hospedeiras originais e suas mobilidades nos ambientes geoquímicos estabelecidos pela alteração ao longo das vertentes, o que pode ser evidenciado, conhecendo-se o contexto, pelas razões Th/U e Us/Ut, e pela intensidade das emissões gama (Tabela 11; Figura 18). Em solos imaturos, como Litossolos, em geral as variações no perfil não são importantes, e a resposta deste tipo de solos é muito próxima daquela exibida pelo maciço rochoso propriamente dito.

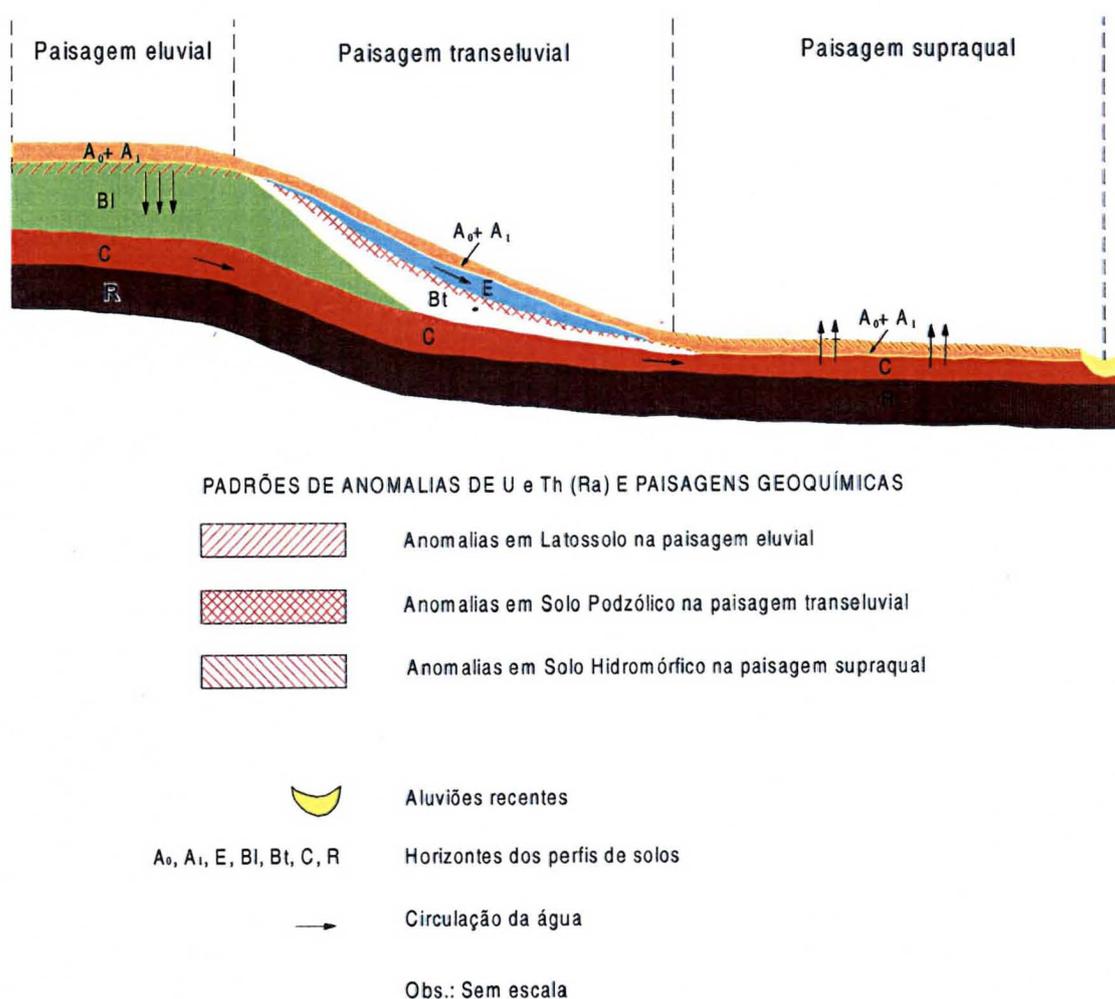
Gamaespectrometria e Radônio

Tendo em vista as considerações feitas, os dados gamaespectrométricos não podem ser utilizados diretamente como base para delimitar fluxos de radônio em paisagens desenvolvidas sobre um mesmo tipo de rocha. É necessário, e fundamental, analisar as especificidades das diferentes paisagens de uma vertente e suas relações, discriminando entre fontes-gama primárias e secundárias e, entre estas últimas, as fases hospedeiras dos

radionuclídeos emissores. A natureza da ligação entre os radioisótopos e as suas estruturas hospedeiras tem importantes reflexos na taxa de emanção de radônio.

A viabilidade e o grau de otimização do uso de dados de raios gama, com o objetivo mencionado, aumenta quando eles são combinados e modelados com dados complementares, particularmente atributos do terreno, como relevo, tipos de vertentes, solos e propriedades do aquífero freático por porosidade.

FIGURA 18 – RELAÇÕES ENTRE SISTEMA PEDOGENÉTICO DE TRANSFORMAÇÃO, PAISAGENS GEOQUÍMICAS E PADRÕES DE ANOMALIAS DE U e Th (Ra), SOBRE ROCHA GRANÍTICA EM AMBIENTE TROPICAL ÚMIDO



FONTE: O autor

4 DISTRIBUIÇÃO E EXALAÇÃO DE RADÔNIO (^{222}Rn E ^{220}Rn) EM PAISAGENS TROPICAIS ÚMIDAS

Nos capítulos 2 e 3 foi mostrado como evoluem os diferentes tipos de paisagens em ambiente tropical úmido. Foi enfatizada a atuação dos processos intempéricos, pedogenéticos e geoquímicos por serem os responsáveis pela síntese dos produtos fundamentais para esta pesquisa. Demonstrou-se que a fase pedológica do intemperismo químico é o momento da evolução das paisagens em que a dispersão geoquímica superficial de elementos ocorre em sua máxima intensidade e eficiência, e quando o U e Th (Ra) contidos nas rochas e regolito atingem sua máxima redistribuição e organização. Nesse particular destacaram-se as relações entre paisagens, tipos de solos e seus horizontes e ambientes geoquímicos, condicionando diferentes padrões de radioanomalias. Estes são caracterizadas pelo seu posicionamento nas paisagens, tipos de solos associados e formas de fixação dos radioelementos às fases hospedeiras, principalmente minerais resistatos, óxidos metálicos, argilas e matéria orgânica. Em linhas gerais, este conjunto de características pode ser evidenciado pelas razões Th/U e Us/Ut e intensidade das emissões gama. Do ponto de vista da paleohidrogeologia ficou claro que é também na fase pedogenética que o aquífero freático por porosidade secundária, ausente no início da alteração supergênica, alcança sua máxima evolução. Os limites morfológicos do envelope do aquífero resultante são a atual superfície topográfica do terreno e o contato entre o perfil de alteração com a rocha. Entre esses limites, sua organização e propriedades físicas, como a porosidade, permeabilidade e distribuição espacial da superfície freática, são o reflexo das granulometrias e texturas condicionadas pela natureza das relações crono-espaciais dos diferentes perfis de solos com as paisagens.

A atuação concorrente dos processos intempéricos, pedogenéticos, morfogenéticos, hidrogeológicos e geoquímicos, desde o seu início até o momento atual, tem como elemento síntese as várias formas de vertentes de uma bacia de drenagem, às quais se associam diferentes tipos e espessuras de solos por onde circulam as águas freáticas. A este conjunto de feições estão relacionados diferentes tipos de anomalias de U e Th (Ra), com forma, extensão, fases hospedeiras e gradientes de teores sem similar na rocha inalterada. Este conjunto organizado de elementos naturais, resultado dos processos supergênicos de alteração durante os tempos geológico e pedológico, doravante chamado **“sistema vertente”**, constitui-se no sistema morfológico dos atuais processos radioativos, devido ao decaimento dos radionuclídeos das séries do ^{238}U e ^{232}Th , principalmente de Ra em Rn, e hidrogeológicos do aquífero freático por porosidade, e cujas relações serão analisadas a

partir deste momento. Ressalte-se que, diferentemente dos casos anteriores, nesta análise, a escala do tempo é dimensionada em anos, meses, ou mesmo dias, tendo em vista a velocidade de atuação dos processos radioativos e hidrogeológicos.

Da interação entre os processos radioativos e hidrogeológicos entre si e com os diferentes elementos do sistema morfológico vertente, nos vários locais das paisagens, devem resultar diferentes taxas de geração, emanção, migração e exalação de radônio. Mas antes de iniciar a análise mencionada é necessário revisar alguns conceitos fundamentais da física nuclear, enfatizando as séries radioativas do ^{238}U e ^{232}Th , com destaque para o radônio, e sobre o regime hídrico do freático, para em seguida relacioná-los com os elementos das paisagens.

Assim, admitindo-se rochas graníticas como o embasamento rochoso sobre o qual as atuais paisagens tiveram início e evoluíram, durante os tempos geológico e pedológico, é necessário, neste momento, analisar como os diferentes produtos da atuação de cada conjunto de processos, pedológicos, geomorfológicos, hidrogeológicos e geoquímicos se relacionam cronológica e espacialmente. O conjunto organizado desses produtos, "**sistema vertente**", o atual regime hídrico do aquífero freático por porosidade e suas relações com os processos radioativos envolvendo os radioisótopos das séries do ^{238}U e ^{232}Th , presentes nas paisagens, culminam em diferentes taxas de exalação de radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn) nos diferentes locais das paisagens interligadas.

4.1 HIDRODINÂMICA DO Aqüífero FREÁTICO POR POROSIDADE SECUNDÁRIA

A noção de aqüífero está relacionada com a história geológica da área considerada. Um aqüífero é uma acumulação de água nos vazios de um terreno permeável, susceptível de se mover sob a ação de um potencial de gravidade. Um equilíbrio tende a se estabelecer entre a quantidade de água que entra no terreno, sua capacidade de escoamento e o volume de acumulação. É, portanto, um sistema aberto que reage às variações das condições de alimentação (AUROUZE, 1966).

A água desde o momento de seu contato com o solo está em movimento permanente. Segundo sua importância respectiva, podem-se ordenar as principais formas de movimento como **gravitacional**, **capilar** e por **difusão**. Pela força gravitacional a água tende a deslocar-se para baixo. Pelas forças **capilares** a água tende a diminuir o gradiente de umidade originado por evapotranspiração, podendo mover-se para cima. Devido ao gradiente de pressão de vapor no solo, originado pelo gradiente de temperatura, o vapor tende à sua menor pressão, difundindo-se. Cada um destes movimentos predomina em **intervalos de umidade**¹¹ característicos. O gravitacional em umidades maiores que W_{fc} ; o capilar em umidades entre W_{fc} e W_{pwc} . Diferentemente destes dois, o movimento por difusão pode ter lugar sempre que haja um gradiente de temperatura e a capacidade seja menor que W_{fc} . Estes três tipos de movimento de água no solo têm diferentes importâncias, não somente nas diferentes zonas fisiográficas, mas também em distintos tempos estacionais (TSCHAPEK, 1959).

Aqüíferos freáticos contidos em formações de alteração resultantes da ação de processos supergênicos sobre granitóides em ambiente tropical úmido, em geral caracterizam-se por porosidade total elevada e porosidade efetiva limitada, por escoamento irregular e por fornecerem pequenos volumes de água. Em geral, apresentam grande amplitude de oscilação do nível freático, cuja subida ocorre defasada em relação às precipitações, após um período de estiagem (LELONG, 1966).

Em suma, neste tópico procura-se analisar o regime hídrico do aqüífero freático por porosidade desenvolvido sobre rochas graníticas em ambiente tropical úmido. Enfocar-se-ão, sobretudo, aspectos relativos às variações dos fenômenos de evapotranspiração e

¹¹ Alguns **intervalos de umidade** do solo são consagrados em edafologia por sua operacionalidade. Assim, Capacidade Máxima ou Total (W_{tc}), é a quantidade máxima de água que pode ser retida nos poros do solo, sendo numericamente igual ou menor, devido à presença de ar, que o volume de poros; Capacidade ou Ponto de Murchamento Permanente (W_{pwc}) equivale à quantidade máxima de água do solo em que se observa o murchamento permanente das plantas. e Capacidade de Campo (W_{fc}), ou Capacidade Mínima (W_{mc}), é a quantidade máxima de água retida pelo solo, que não pode mais ser drenada por gravidade, após uma drenagem de 3 a 5 dias.

movimento capilar em diferentes posições das paisagens, pois estes são os que mais afetam as taxas de emanção de radônio dos materiais contendo Ra, e sua exalação, principalmente nos períodos estacionais de estiagem ou de menor precipitação do clima.

4.1.1 Dinâmica da Água no Solo

Infiltração

Infiltração é o volume de águas meteóricas que, em um determinado tempo, atravessa a zona de retenção e de evapotranspiração do aquífero, em direção à zona de saturação. Conceito decorrente, **recarga** é o volume de água que entra num depósito durante um período de tempo, equivalendo à infiltração eficaz. A **descarga** é o volume que em um período de tempo sai do depósito subterrâneo, não só por gravidade, mas também por **evapotranspiração** se a zona saturada está próxima à superfície. As principais forças motoras da infiltração são a gravidade e a capilaridade. Quando o solo está seco, a infiltração faz-se não somente por canais de gravidade, mas também por ação capilar. Este movimento ocorre sempre da zona úmida no sentido da seca, decrescendo em profundidade devido à diminuição progressiva do potencial capilar.

Na zona intermediária, o teor em água dos solos é pelo menos igual a sua capacidade de retenção. Nenhuma água lhe é subtraída por evaporação ou por absorção pelas plantas. Se a água atinge a superfície freática ela passa a circular com uma componente horizontal predominante. A relação entre as componentes vertical e horizontal é função da resistência do material à circulação, e depende da declividade das encostas e natureza dos solos, além da quantidade de água que se infiltra (SCHOELLER, 1962).

Pelo exposto, no interior de um perfil de solos, podem ser considerados **movimentos descendentes e ascendentes** da água. Os primeiros predominam nos períodos de chuva, após o **déficit de retenção** do solo ser satisfeito, e os ascendentes durante os períodos de seca ou de menor precipitação. Na parte superior do solo, a água pode se evaporar e a diferença de **potencial capilar** entre as **camadas ressecadas** e as mais profundas, **úmidas**, dirige o movimento da água para cima. Estes movimentos, de sentidos contrários, estão vinculados à sazonalidade do clima. De acordo com SCHOELLER, *op. cit.*, nas regiões tropicais úmidas, onde as precipitações são abundantes e o poder de evaporação é muito grande, devido às temperaturas elevadas, à secura do ar e à freqüência dos ventos, os movimentos descendentes ocorrem na época das chuvas e os ascendentes na estação seca. A seguir serão detalhados os fenômenos de ascensão capilar e evapotranspiração,

por serem de importância básica no regime hídrico do aquífero freático por porosidade em ambiente tropical úmido, e, conseqüentemente, no controle de Rn nas paisagens.

Movimento Capilar

A capilaridade é definida como a propriedade que tem os líquidos de ascender através de um tubo capilar, quando parte deste tubo atinge a massa líquida. A altura da elevação do líquido sobre a superfície do mesmo é função de vários fatores, dentre os quais a temperatura, pressão atmosférica, pressão hidrostática, tensão superficial, pressão de vapor, diâmetro do capilar e a viscosidade do líquido. O mecanismo de ascensão de água em um tubo capilar deve-se ao fato de que a água no interior do tubo está sob pressão menor que a água exterior, de superfície plana, submetida à pressão atmosférica. Isto é evidenciado pela concavidade para cima da curvatura do menisco no interior do tubo capilar. Segundo CARVALHO (1995), a altura atingida pela água pode ser calculada pela expressão:

$$h = (2 \gamma_{LG}) [\cos \mu / g (D_L - D_g) r]$$

onde:

g - *aceleração da gravidade;*

D_L - *densidade do líquido;*

D_g - *densidade do gás;*

r - *raio do capilar, e*

γ_{LG} - *tensão superficial entre o líquido e o ar.*

Quanto mais disperso for um solo mais dificilmente ele apresentará um empacotamento uniforme, de modo que muitos poros capilares serão interceptados pelos grandes poros, o que influi substancialmente sobre a elevação capilar. A condição de capilaridade da água no solo depende inicialmente do seu grau de umidade. Em segundo plano, a elevação capilar de um líquido em um sistema disperso depende do raio do ponto mais estreito de seus poros, este dependente da granulometria do material e do tipo de empacotamento. Então, a altura atingida por um líquido em um tubo capilar é inversamente proporcional ao diâmetro do tubo. Dependendo das condições climáticas, a elevação capilar da água subterrânea pode atingir 3 a 4 metros em materiais argilosos (CEDERSTROM, 1964).

Além da altura, outro fator importante a considerar é a velocidade com que a água se move no tubo capilar. Esta velocidade depende da ação conjunta das forças adsortivas, capilares e gravitacionais. Cada uma destas forças predomina em um determinado intervalo de umidade do solo. Como já mencionado, as forças capilares predominam entre os intervalos de umidade W_{fc} e W_{pwc} . Assim o volume de água movimentado em um determinado tempo por capilaridade, deduzida a força gravitacional, pode ser determinado utilizando-se a seguinte fórmula (TSCHAPEK, 1959):

$$V = (P \cdot \pi \cdot r^4 \cdot t) / (8 \cdot l \cdot \eta),$$

onde:

V - volume de líquido (cm^3);

P - valor da diferença das pressões capilares ($cm^{-1} g s^{-2}$);

r - raio do capilar (cm);

t - tempo (s);

l - comprimento do capilar ou da coluna de solo (cm), e

η - viscosidade ($cm^{-1} g s^{-1}$)

Pela fórmula apresentada e por observações diretas, sabe-se que nos solos muito argilosos, nos quais a ascensão capilar pode atingir 3 a 4 metros, as perdas para a atmosfera por este mecanismo diminuem significativamente quando o nível freático está a profundidades maiores que 1,5 m, devido ao tempo requerido para que a água supere o limite máximo de capilaridade. Por outro lado, o volume de água movimentado depende do cubo do raio do conduto capilar, o que significa que uma redução de 10 vezes nesse raio ocasiona uma redução de 1.000 vezes no volume de água movimentado por unidade de tempo.

Evapotranspiração

A proximidade do nível freático com a superfície, e o suprimento capilar dos horizontes superiores pela água subterrânea, representa um fator importante regulador da perda de água por evapotranspiração. Nos casos em que a água subterrânea está a profundidades em que não pode elevar-se por capilaridade até a superfície, não ocorre a perda desta água por evaporação direta através da superfície. Com a aumento do tamanho dos agregados estruturais do solo se incrementa a intensidade de evaporação, porém se reduz o suprimento de água à superfície por capilaridade. A velocidade de evaporação, ou

quantidade de líquido que passa ao estado de vapor em unidade de tempo, depende de muitos fatores: vento, pressão do ar, quantidade de vapor atmosférico, grau de convexidade do menisco, cobertura vegetal, etc. Todavia, os dois fatores principais que limitam a evaporação são o suprimento de água e de calor. Segundo SCHOELLER (1962), uma das fórmulas que expressam a velocidade aproximada da evaporação é a de Dalton, onde $p_0 - p$ representa o déficit de umidade, que é uma característica climática importante:

$$dV/dt = K [(p_0 - p)/P]$$

onde:

dV/dt - **velocidade da evaporação;**

K - **coeficiente de proporcionalidade;**

P₀, p - **tensão de vapor saturado e presente na atmosfera, e**

P - **pressão atmosférica.**

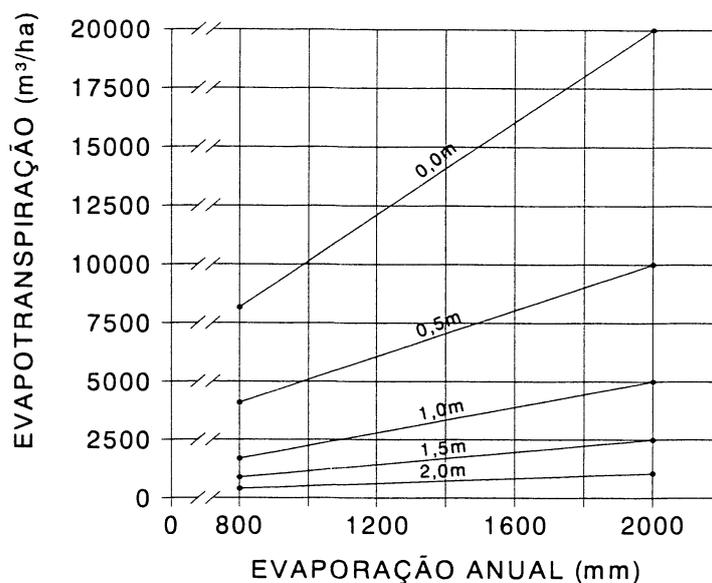
Tendo em vista que a superfície do solo se aquece mais que a da água, e que a do solo não é tão lisa, quando saturado o solo evapora 20 a 40 % mais que a superfície da água. Já a evaporação de água situada a pequena profundidade depende não somente da intensidade possível da evaporação na superfície do solo, mas igualmente dessa profundidade. De maneira geral, pelo menos em clima temperado, sabe-se que a evaporação a partir de uma superfície freática cessa quando a sua franja capilar situa-se um pouco abaixo da superfície do solo (Figura 19).

Assim, a zona de evaporação de um solo nú atinge apenas uma pequena profundidade, tanto menor ela será quanto mais grosseiro for o solo. Ressecamentos bem mais profundos em solo nú só se produzem em condições extremas favorecendo a evaporação, conforme observado por DIXEY, citado por SCHOELLER (1962), na Tunísia, onde as fissuras devidas ao ressecamento atingem até 2,40 m de profundidade e 0,25 m de largura. Em solos cobertos por vegetação, o nível a partir do qual as águas não são mais submetidas a evapotranspiração, encontram-se, em média, entre 0,90 m e 1,20 m abaixo do nível das raízes.

Evaporação por um Solo Saturado

A evaporação de água de um solo saturado não ocorre da mesma maneira que de um solo já com déficit de saturação. Um solo pode permanecer saturado um determinado tempo após a chuva se for pouco permeável ou, ainda, se a **franja capilar** do nível freático

FIGURA 19 – EVAPOTRANSPIRAÇÃO DE ÁGUA FREÁTICA ATRAVÉS DO SOLO EM FUNÇÃO DA EVAPORAÇÃO ANUAL PARA DIFERENTES PROFUNDIDADES



FONTE: Extraída de TSCHAPEK (1959)

alcançar a superfície. Em tais condições, o solo evapora quase a mesma quantidade de água que uma superfície líquida. Várias experiências demonstram que a evaporação de água de um arenito saturado é igual ou ligeiramente superior à de uma superfície líquida. No entanto, no que diz respeito aos solos siltosos e argilosos, ela é menor, de 75 a 95% (SCHOELLER, 1962).

É principalmente após a chuva que a evaporação se produzirá, tão logo o sol, aquecendo diferentemente o solo e o ar, cria entre os dois uma diferença de tensão apreciável e, sobretudo, se o vento permite acelerar a difusão do vapor. Assim, a água que se evapora do solo pode ser renovada se a franja capilar alcança a superfície. No entanto, esta renovação é limitada, pois os movimentos capilares são lentos.

Evaporação por um Solo não Saturado

Como visto, num solo não saturado, a água livre e/ou capilar está a uma certa profundidade abaixo da superfície. A evaporação, neste caso, produzir-se-á, sobretudo, por um ressecamento cada vez mais profundo das camadas do solo, e não por uma renovação ascendente da água, que está relativamente estabilizada (KEEN, 1927, citado por SCHOELLER, 1962). O movimento de água sob a forma de vapor ocorrerá se o ar não estiver saturado, dirigindo-se de regiões com tensão de vapor mais forte no sentido das

regiões com menor tensão. Se o ar estiver saturado o movimento será das regiões mais quentes no sentido das mais frias (LEBEDEV, 1936, citado por SCHOELLER, 1962).

No caso de água em capilares, a passagem do estado líquido ao de vapor depende, essencialmente, para a água capilar, do diâmetro dos tubos. Quanto mais estreitos são os tubos capilares, menor será o raio de curvatura da superfície do menisco, e menor a tensão de vapor. A água evaporada da superfície dos meniscos dos tubos capilares e das superfícies das películas em torno dos grãos, deverá difundir e chegar até à superfície do solo, para que a evaporação possa continuar. Tal difusão depende do comprimento e largura dos canais do solo. Quanto mais curtos são os canais e mais largas as aberturas, mais fácil é a difusão. A difusão através das aberturas dos poros e dos canais do solo depende da agitação do ar e da diferença que existe entre a tensão de vapor da água do solo e a tensão de vapor da água do ar. No inverno, tal diferença não é muito grande, pois o solo é mais frio, sendo a tensão do vapor mais fraca em superfície que em profundidade, o que ocasiona um movimento ascendente do vapor. No verão o fenômeno é no sentido contrário, consequência da inversão das temperaturas relativas do solo nas diferentes profundidades.

Assim, a evapotranspiração da água do solo depende da temperatura, pressão barométrica, déficit de saturação do ar, agitação do ar, dimensões e profundidade do nível freático e da cobertura vegetal. Na zona de evapotranspiração, nas proximidades da superfície do solo, a diferença de temperatura e de umidade relativa, segundo a vertical, regulam o movimento do vapor. Abaixo dessa zona a umidade relativa do ar é sempre 100% e, neste caso, o que condiciona o movimento do vapor é a variação de temperatura ao longo do perfil (difusão térmica).

4.1.2 Regime Hídrico

Como visto no Capítulo 2, embora a região intertropical seja caracterizada por critérios térmicos (temperatura média anual superior a 20 °C e amplitude térmica menor que 10 °C), a sua subdivisão é baseada no regime hídrico. Os regimes de precipitação são caracterizados pela alternância de uma estação úmida, com precipitações freqüentes, e uma seca, onde há um sensível declínio da chuva (TRICART, 1965). O número de meses secos e sua repartição no ano é muito diferente em cada uma das diferentes regiões tropicais úmidas. Nos trópicos úmidos brasileiros, por exemplo, com base nos critérios hídricos do clima, temos áreas onde inexistem sequer um mês seco, em que dominam as florestas equatoriais, até a existência de 5 meses secos, equivalente às áreas de Cerrado

O regime do clima aliado às propriedades morfológicas do aquífero freático por porosidade, inserido no “sistema vertente”, desenvolvidas durante os tempos geológico e pedológico, condicionam o atual regime hídrico do referido aquífero. Tais propriedades são, fundamentalmente, a geometria externa do seu envelope, sua organização interna, permo-porosidade e natureza de seu material constituinte, solos e regolito, nas diferentes posições espaciais nas paisagens interligadas. Cada segmento do aquífero apresenta características específicas, que podem ser relacionadas com a posição espacial do nível freático e sua relação com a atual superfície do terreno, que determinam a importância relativa de cada um dos diferentes processos hidrogeológicos aí atuantes. Esta é uma propriedade deste aquífero que permite entender o seu regime hídrico em pontos específicos do sistema e relacioná-lo com as diferentes geoformas das paisagens, tipos de solos, paisagens geoquímicas, radioanomalias e os atuais processos radioativos de geração, emissão, migração e exalação de radônio.

Alimentação do Aquífero

Tendo em vista as suas propriedades físicas e morfológicas, já descritas no Capítulo 2, uma parte importante da alimentação do aquífero freático por porosidade contido em materiais de alteração em ambiente tropical úmido, não se manifesta por flutuação do nível hidrostático. Segundo LELONG (1966), a água da chuva que se infiltra durante a primeira parte da estação chuvosa, serve somente para satisfazer o déficit de umidade, ou **recarga oculta**, cuja importância aumenta com a espessura do perfil dessaturado. Somente após satisfazer esta recarga a água infiltrada pode se exprimir sob a forma de água livre, ou **recarga visível**, susceptível a participar do escoamento. Posteriormente uma grande parte desse volume é retomado pela evapotranspiração durante a estação seca, resultando em novo **déficit de umidade**. Desta maneira, no caso de alterações areno - argilosas, o nível de umidade do subsolo é um fator cuja influência sobre a intensidade do escoamento pode ter mais importância que as chuvas. Quando estes materiais, inicialmente permeáveis, ficam saturados, comportam-se como substratos impermeáveis.

É importante frisar, no entanto, que a recarga oculta tem uma participação relativa aumentada na mesma proporção em que a pluviosidade diminui. No caso de perfis derivados da alteração de rochas cristalinas, estudados por LELONG, *op. cit.*, na região intertropical úmida da África Ocidental, para precipitações da ordem de 1.600 mm/ano, a recarga oculta representa somente 23 % do balanço, contra 34 % da recarga visível; para 1.200 mm ela atinge 30 % contra 24 %; e para 800 mm atinge 40% contra 7 %.

Escoamento

Cessadas as chuvas, o esvaziamento dos grandes poros é quase instantâneo e sua velocidade decresce exponencialmente à medida que a carga diminui. No entanto, nos solos areno - argilosos, onde os poros não têm uma repartição homogênea, o escoamento lento não tem a mesma importância. Neste caso o escoamento é paralisado logo após o esvaziamento dos poros grosseiros. Isto significa que o **escoamento diferido**¹² pode ser negligenciável no caso desses materiais. O déficit de umidade, resultaria, portanto, essencialmente da **evapotranspiração diferida**.

Evapotranspiração

Nos trópicos úmidos a “evaporação subterrânea” em perfis de alteração sobre rochas cristalinas, em regime não saturado, se processa por difusão. LELONG (1966), citando SOEIRO (1962), afirma que os movimentos de água em um solo não saturado, manifestam-se tanto na fase líquida como na fase vapor. Sem nenhuma dúvida, a diminuição muito rápida de umidade nas partes mais superiores do solo atesta uma difusão da água no estado de vapor. Em princípio, a hipótese de **difusão térmica** abaixo de dois metros de profundidade pode ser eliminada, pois as variações de temperatura são muito pequenas abaixo dessa profundidade. A hipótese de **difusão isotérmica** no estado de vapor se adapta bem às características de perfis areno-argilosos dos trópicos úmidos. Provavelmente este mecanismo não é o único. Difusões de filmes líquidos agem simultaneamente mas, devido à lentidão da circulação da água nos poros capilares, os volumes de água movimentados em fase líquida deverão ser pouco importantes. Sabe-se, como vimos no tópico anterior, que a evaporação subterrânea das águas é negligenciável quando a franja capilar não atinge a superfície, devido à extrema lentidão com que a água atinge o limite máximo de capilaridade.

Os dados acima discutidos mostram que a relação exponencial da evaporação com a profundidade de água subterrânea, expressa em % de evaporação sobre uma superfície livre, em certos casos pode ocorrer de maneira muito particular, como no caso de condições climáticas tropicais. Estas condições são caracterizadas por temperaturas muito elevadas e extrema secura do ar, aliado às propriedades particulares dos perfis de solos que, sobre rochas cristalinas, apresentam uma rede de poros grosseiros numa massa argilosa,

¹² Em hidrogeologia o termo **diferido** se opõe ao termo direto, e qualifica o efeito retardado de um processo, ou seu prolongamento por um certo período de tempo, após o início desse processo.

favorecendo o contato entre o ar atmosférico e a água retida. Assim, o déficit de umidade observado ao fim da estação seca será, em sua maior parte, devido a uma lenta vaporização de água retida na parte superior dos aquíferos.

Balanco Hidrogeológico

Em aquíferos contidos em produtos de alteração supergênica de granitos em ambiente tropical úmido os principais termos de um balanço são o escoamento do aquífero, a evapotranspiração direta e a evapotranspiração diferida. Esta subdividida em **evapotranspiração profunda**, correspondendo ao déficit médio de umidade do perfil do terreno dessaturado e em **evapotranspiração superficial**, correspondente ao dessecamento suplementar superficial.

Em termos gerais, na camada humífera superficial e no nível de acumulação subjacente, o **dessecamento** é manifesto de forma contundente. Abaixo desta camada, a quantidade de **água retida** em um dado volume na parte não saturada do aquífero é bem maior que a **água livre** disponível em um volume equivalente abaixo do nível hidrostático. Esta parece ser uma característica específica dos aquíferos contidos nas alterações de rochas cristalinas em ambiente tropical úmido. Isto significa que a quase totalidade do déficit de umidade dos perfis resulta da evapotranspiração e não do escoamento diferido.

Segundo LELONG (1966), as formações argilosas de alteração situadas acima do nível hidrostático retêm, durante a estação seca, um volume considerável de água. Este volume, variável conforme a profundidade, é em média da ordem de 30% do volume total das formações. A existência desta recarga explica bem porque as flutuações dos níveis freáticos variam de acordo com sua profundidade. Ela também permite compreender melhor porque o escoamento superficial ocorre defasado, mais tarde, em relação ao período das chuvas. Enquanto o déficit de umidade do subsolo não for satisfeito, mesmo as chuvas mais fortes provocam escoamento negligenciável. Deve ser ressaltado que os dados e aspectos discutidos são válidos para os aquíferos contidos nas coberturas argilo - arenosas, com capacidade de retenção muito forte e fraca permeabilidade lateral, como as desenvolvidas sobre substrato granito - gnáissico em clima tropical úmido. Em tal contexto, uma parte importante, e às vezes preponderante, de água dos aquíferos freáticos por porosidade é evacuada **per ascensum**.

Como já mencionado na parte introdutória desta tese, as variações sazonais dos níveis de umidade nos solos de uma vertente têm influência direta sobre a eficiência dos processos radioativos de emissão de Rn para os poros dos materiais pedogenéticos e sua

migração até à interface solo / ar, afetando as taxas de exalação. Assim, para efetivamente caracterizar o funcionamento e eficiência do “sistema distribuidor de Rn”, além do conhecimento do regime hídrico do aquífero, é importante conhecer o funcionamento dos processos radioativos e a natureza e intensidade das suas relações com os níveis de umidade dos solos, o que será abordado nos próximos itens.

4.2 CONCEITOS BÁSICOS DE FÍSICA E GEOLOGIA NUCLEAR NO ESTUDO DE RADÔNIO

As radiações podem ser partículas carregadas, como partículas alfa e elétrons rápidos, e radiações eletromagnéticas e neutrons. Cada uma dessas radiações, após sua emissão, tende a perder energia pela interação com os elétrons e núcleos dos átomos, criando **ionização** em diferentes graus, mediante processos primários ou secundários, sendo por isso chamadas **radiações ionizantes**. A radioatividade produz, entre outros efeitos, cintilações e mata tecidos vivos. Libera grande quantidade de energia com pequena perda de massa e independe de alterações químicas e físicas sobre o material emissor. Esta última característica é de particular importância, comprovando que a radioatividade se processa no núcleo dos radionuclídeos.

Processos radioativos são reações nucleares espontâneas, caracterizados pelas radiações emitidas. Eles ocorrem aleatoriamente, e o momento exato em que um dado átomo decairá não pode ser previsto. Entretanto, num grande número de átomos uma certa fração decairá por unidade de tempo. Esta fração, chamada **constante de decaimento** (λ), não é afetada materialmente por qualquer processo físico ou químico conhecido. É certo que λ permanece constante através do tempo geológico, apesar de mudanças drásticas nos ambientes, estado químico, campos gravitacional, elétrico e magnético. Com o avanço do conhecimento teórico da radioatividade verificou-se que a taxa de decaimento radioativo por **"captura de elétron"**, o que será visto mais adiante, pode ser ligeiramente influenciada pela densidade de elétrons em volta do núcleo. Porém mesmo pressões do interior da Terra não são suficientes para induzir mudanças maiores do que as mencionadas. Então, radioatividade é o processo de emissão de partículas alfa, beta e energia gama de núcleos instáveis de elementos. Deve-se à desintegração espontânea, ou **decaimento** de núcleos, com a emissão de partículas e radiações eletromagnéticas.

Muitos elementos naturais, e outros criados pelo homem, são radioativos. Os processos são regidos por uma **relação exponencial**, de tal forma que metade de uma amostra decai num intervalo de tempo chamado **tempo de meia-vida** ($t_{1/2}$). Estes valores podem variar de frações de segundos a bilhões de anos, entre as centenas de radioisótopos conhecidos. As radiações podem ser partículas, como os raios alfa e beta, ou ondas, como os raios gama, cujas principais propriedades são apresentadas a seguir (FRIEDLANDER et al., 1964, KNOLL, 1979, BACH, 1987).

4.2.1 Propriedades das Radiações

a) **Radiação ou Partícula Alfa** - Constitui um núcleo de hélio, formada por 2 prótons e 2 neutrons (${}^4_2\text{He}$). Essas 4 partículas possuem alta energia de ligação, cerca de 28 MeV, de forma que uma alfa natural se comporta como se fosse uma partícula fundamental. Tem 4 vezes a massa do próton, ou 7.000 vezes a massa do elétron, e carrega duas unidades de carga elétrica positiva, possuindo energias entre 4 e 8 MeV.

Quase todos os **emissores alfa naturais** são encontrados entre os “elementos pesados” das **séries de decaimento** do ${}^{238}\text{U}$, ${}^{235}\text{U}$ e ${}^{232}\text{Th}$. Partículas alfa transportam energia considerável, dissipando cerca de $\frac{3}{4}$ da energia liberada no decaimento radioativo das séries do urânio e do tório. Porém, devido ao seu “grande tamanho”, tem **baixo poder de penetração**, podendo ser barradas por uma delgada folha de papel e percorrendo menos de 5 cm no ar. Quando uma espécie mineral ou rocha é estudada para atividade alfa, somente uma superfície muito delgada, cerca de 30 micra, é efetiva. O radioisótopo pode ser identificado pela energia característica da partícula alfa emitida.

b) **Radiação ou Partícula Beta** - Radiação beta é o termo usado para descrever elétrons de origem nuclear, carregados negativa ou positivamente. A emissão de radiação beta é um processo mais comum entre os núcleos leves ou de massa intermediária, que possuem um excesso de neutrons ou de prótons em relação à estrutura estável correspondente. Quando um núcleo muda por decaimento beta, uma **partícula beta** é emitida junto com um **neutrino**, este não sendo detectável. Tendo em vista que o decaimento envolve três corpos (núcleo, partícula beta e neutrino), a energia do raio beta pode ter qualquer valor, desde aproximadamente zero até um máximo definido pelo total de energia disponível no decaimento. Portanto o **espectro beta** é contínuo, não sendo sua energia característica da desintegração. Existem três formas de decaimento beta: **beta menos** (β^-), **beta mais** (β^+) e **captura de elétrons** (EC).

No decaimento β^- um elétron negativo é emitido por um núcleo e o número atômico do elemento resultante é aumentado de uma unidade. Uma outra forma de decaimento beta é a emissão de um elétron positivo chamado **pósitron**, que é a antipartícula do elétron. Um núcleo instável pelo **excesso de prótons**, e que então apresenta poucos neutrons, para se estabilizar deverá emitir um pósitron, diminuindo sua carga nuclear. Este tipo de decaimento consiste na transformação do próton num neutron. A terceira forma de decaimento beta envolve a aniquilação da carga do próton, transformando-o em neutron, pela **captura de um elétron orbital**. Neste tipo de decaimento, chamado **captura eletrônica orbital** (EC), ocorre a

diminuição de uma unidade, como na emissão de pósitron, pela incorporação ou captura, pelo núcleo, de um elétron atômico, freqüentemente da camada K do átomo. Por isso, o processo também é chamado "**K-capture**". Devido a essa remoção segue-se a emissão de um "**raio X característico**", através do qual o elemento pode ser identificado. Em geologia tal processo é significativo somente no decaimento do ^{40}K para o ^{40}Ar , onde cerca de 10 % ocorre por captura de elétron.

Os diferentes tipos de decaimento beta são chamados de **transformações isobáricas**, pois só alteram a carga nuclear, não afetando o número de massa. A maior penetração de partículas beta energéticas é da ordem de alguns milímetros nas rochas. Somente cerca de 20% dos raios beta originados na superfície de um mineral de urânio penetrarão em um detector. Uma partícula beta de 1 MeV percorre cerca de 3 metros no ar.

c) **Radiação Gama** - A radiação gama é de natureza eletromagnética e de alta energia, não tendo carga elétrica nem massa, e consiste de **quanta** ou **pacotes** de energia transmitidos em forma de movimento ondulatório. A diferença essencial entre radiações gama e X está na sua origem. Os raios gama resultam de mudanças no núcleo dos radioisótopos e os raios X tem origem nos orbitais eletrônicos. A quantidade de energia em cada **quantum** está relacionada ao comprimento de onda da radiação, sendo a energia dos raios gama da ordem de KeV a MeV. Cada radionuclídeo tem emissões gama de energias características. Sua penetração é de 500 a 1.000 metros no ar, 1 a 2 metros na água e 20 a 40 centímetros em rochas de densidade $2,6 \text{ g/cm}^3$. Essa maior penetração, em relação aos tipos anteriores, é devida à ausência de carga e massa.

4.2.2 Decaimento e Atividade

Um átomo instável ao emitir partículas alfa, beta ou radiação gama, perde massa e energia. Este processo é chamado **decaimento radioativo** e segue a lei exponencial. É de natureza aleatória e, portanto, obedece as leis estatísticas. Assim, sendo N_0 o número de átomos presentes no instante inicial e $N(t)$ o número de átomos presentes no tempo t , temos (FRIEDLANDER et al., 1964); $N(t) = N_0 e^{-\lambda t}$. O número de átomos que se desintegra num certo intervalo de tempo é proporcional ao número de átomos radioativos presentes na amostra, ou seja, $dN(t)/dt = -\lambda N(t)$. O símbolo λ é denominado **constante de decaimento** e não pode ser alterada, seja pela variação de temperatura, quimismo ou pressão e campos gravitacional, magnético ou elétrico. A quantidade proporcional a λN é chamada **atividade** (A), que é a razão de desintegração de uma amostra na unidade de tempo, ou **taxa de**

decaimento de um radioisótopo, sendo proporcional ao número de átomos instáveis e, assim, também, varia exponencialmente; $A = -\lambda N(t) = \lambda N_0 e^{-\lambda t}$. A lei do decaimento, $N = N_0 e^{-\lambda t}$, também pode ser escrita em termos de atividade, ou seja, $A = A_0 e^{-\lambda t}$. Por outro lado, a taxa de decaimento radioativo pode ser expressa em termos de **tempo de meia-vida** ($t_{1/2}$), que é o tempo requerido para que a quantidade inicial de átomos seja, em média, reduzida à metade. Então, para $t = t_{1/2}$, temos que $N/N_0 = 1/2$, $e^{-\lambda t} = 1/2$, e, portanto, $\ln 1/2 = -\lambda t_{1/2}$ ou $t_{1/2} = \ln 2/\lambda \approx 0,693/\lambda$.

Outro conceito importante, e de aplicação prática em estudos geoambientais, é a “**Atividade Específica**” (AE) de uma fonte radioativa, definida como a atividade por unidade de massa da amostra do radioisótopo. Alta atividade específica é inerente a radionuclídeos com grande λ ou pequena meia-vida. Para uma amostra pura, sem mistura com qualquer outra espécie, a atividade específica pode ser calculada da seguinte maneira:

$$AE = \text{Atividade/massa} = \lambda A_v/M$$

onde:

M é o peso molecular da amostra em gramas;

A_v é o Número de Avogrado (= $6,02 \times 10^{23}$ núcleos/mole), e

λ é a constante de decaimento do radioisótopo (= $\ln 2/\text{meia-vida}$).

Utilizando-se os procedimentos de cálculo decorrentes do conceito de atividade específica, chegamos às seguintes relações entre atividade e concentração de alguns dos principais radionuclídeos de ocorrência natural:

1ppm de ^{238}U	=	12,3	Bq.Kg ⁻¹
1ppm de ^{226}Ra	=	$3,7 \times 10^7$	Bq.Kg ⁻¹
1ppm de ^{232}Th	=	4,0	Bq.Kg ⁻¹
1% de ^{40}K	=	310,0	Bq.Kg ⁻¹

4.2.3 Famílias Radioativas Naturais

Os elementos radioativos decaem em produtos filhos que são eles próprios radioativos. Por seu turno eles também decaem, e, então, formam séries ou cadeias que terminam quando um isótopo filho estável é alcançado. São as famílias radioativas (Figuras 20 e 21). Os nuclídeos ^{232}Th , ^{238}U e ^{235}U são os primeiros membros de 3 famílias ou séries

radioativas. Cada um destes elementos tem uma abundância isotópica natural e tempo de meia - vida próprio. São famílias, pois a partir dos núclídeos citados ocorre toda uma seqüência de desintegrações. As três famílias mencionadas acima são naturais, e são designadas respectivamente de família do tório, urânio e do actínio. Todos os descendentes de cada uma destas famílias mantêm, durante toda a seqüência de decaimento, o número de massa genérico. Por exemplo, o ^{235}U começa com $(4n + 3)$ onde $n = 58$, chegando ao ^{207}Pb $(4n + 3)$ onde $n = 51$. Desta maneira, qualquer intermediário, de qualquer das famílias, pode imediatamente ser identificado.

Uma série está em equilíbrio radioativo quando a concentração de qualquer um dos membros da série, pai, filho ou neto, não muda com o tempo. O número de átomos de cada filho intermediário deverá, então, estar em proporção direta à sua meia - vida $(t_{1/2})$, ou em proporção inversa a sua respectiva constante de decaimento (λ) . Séries radioativas naturais estão usualmente próximas do equilíbrio. No entanto, pais e filhos radioativos são quimicamente diferentes, e podem ser separados por processos geológicos comuns, de modo que a natureza e o grau de desequilíbrio que existe numa amostra oferece pistas da sua história geológica.

Não obstante o apresentado, o ^{235}U e o ^{234}U , tendo em vista a sua baixa abundância isotópica natural (Tabela 12), estes não serão aqui abordados. O ^{40}K , embora de considerável ocorrência em minerais de grande número de rochas, por outro lado não tem relação com nenhum dos isótopos de radônio, e, portanto, somente é considerado na avaliação geral da radioatividade ambiental. É por esses motivos que o enfoque está nas cadeias do ^{238}U e ^{232}Th , onde são gerados, respectivamente os isótopos ^{222}Rn e ^{220}Rn (Figuras 20 e 21).

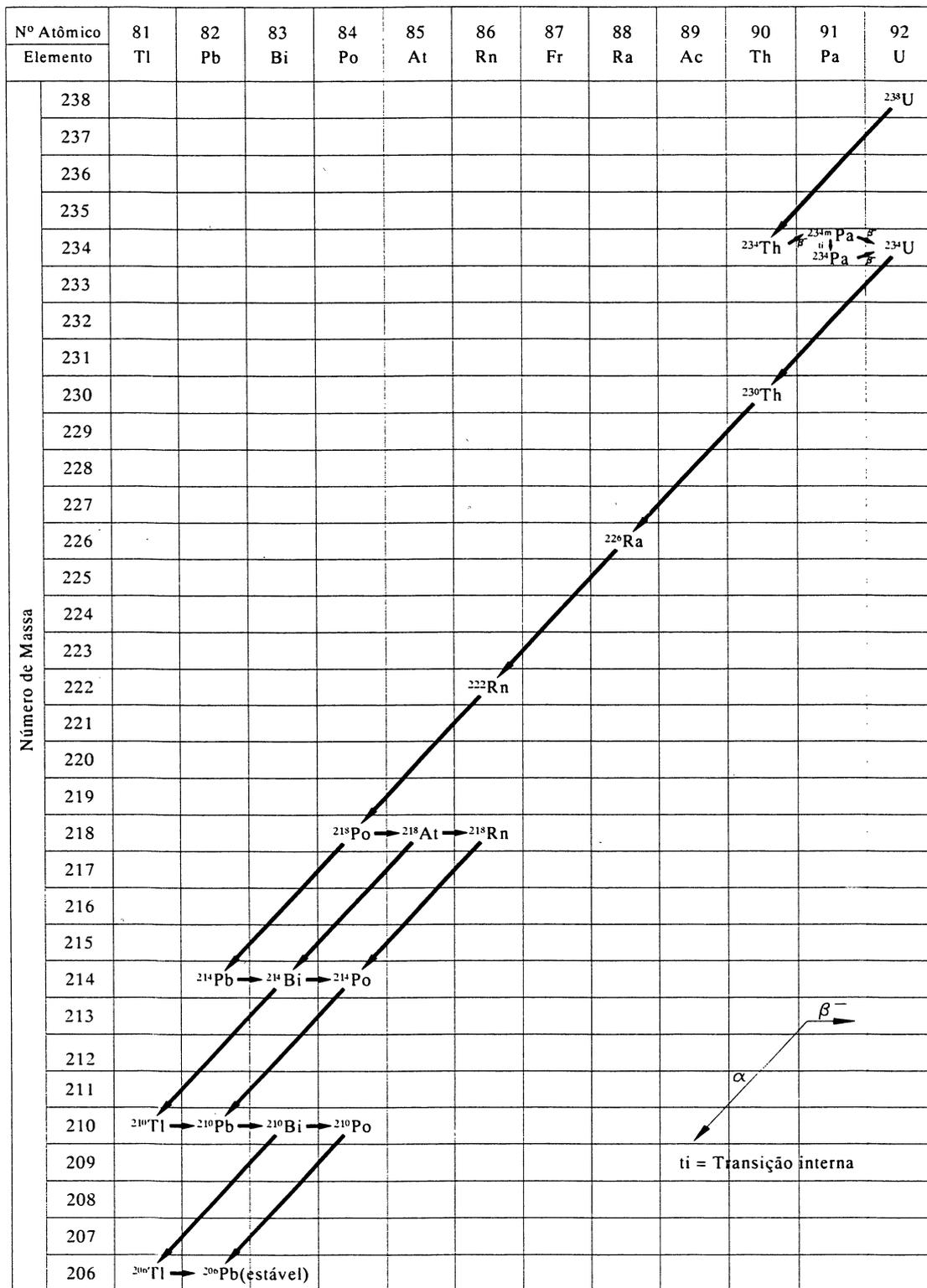
TABELA 12 - ABUNDÂNCIA ISOTÓPICA NATURAL, MEIA - VIDA E MODO DE DECAIMENTO DOS RADIONUCLÍDEOS ^{238}U , ^{235}U , ^{234}U , ^{232}Th E ^{40}K

NUCLÍDEO	ABUNDÂNCIA (%) $t_{1/2}$ (anos)	MODO DE DECAIMENTO
^{238}U	99,275% $4,468 \times 10^9$ a	α
^{235}U	0,720% $7,038 \times 10^8$ a	α
^{234}U	0,0054% $2,45 \times 10^5$ a	α
^{232}Th	100% $1,41 \times 10^{10}$ a	α
^{40}K	0,0117% $1,28 \times 10^9$ a	β^- (89,3%) EC (10,7%) β^+ (0,0010%)

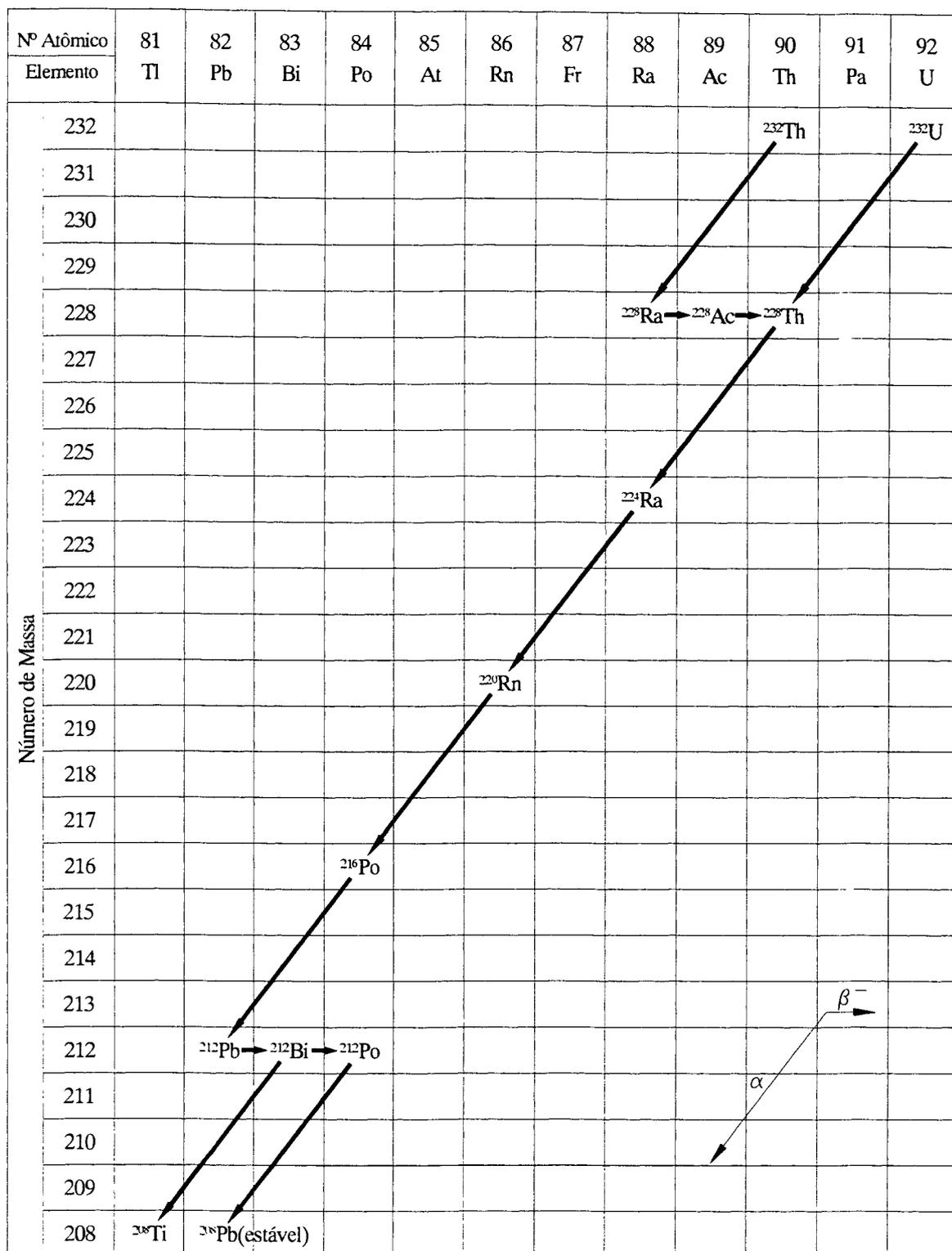
FONTE: O autor

NOTA: O ^{39}K (93,26%) e o ^{41}K (6,73%) não são radioativos)

FIGURA 20 – SÉRIE NATURAL DE DECAIMENTO RADIOATIVO DO ^{238}U



FONTE: Extraída de BONOTTO (1996)

FIGURA 21 – SÉRIE NATURAL DE DECAIMENTO RADIOATIVO DO ^{232}Th 

FONTE: Extraída de BONOTTO (1996)

4.2.4 Equilíbrio Radioativo

No equilíbrio temporal a derivada de uma função em relação ao tempo é zero. Com esta condição aplicada aos membros de uma cadeia radioativa, temos que as derivadas $dN_1/dt, dN_2/dt, \dots, dN_n/dt$ são todas iguais a zero, pois a derivada reflete a taxa de variação da quantidade de radionuclídeos no sistema, que neste caso tem entrada igual à saída, o que significa que o número de átomos da cadeia é constante. Então, as condições para o equilíbrio são:

$$dN_1/dt = -\lambda_1 N_1 = 0, \quad \text{e} \quad \lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \dots = \lambda_{n-1} N_{n-1} = \lambda_n N_n$$

No entanto, tais condições não podem ser satisfeitas rigorosamente se a substância pai da cadeia é radioativa. Mas é possível atingir um estado muito próximo do equilíbrio, onde a substância pai decai muito menos rapidamente que qualquer um dos outros membros da cadeia. Obviamente nenhum equilíbrio será atingido se o pai é de vida mais curta do que o filho ($\lambda_1 > \lambda_2$). Assim, existem duas situações a considerar com relação ao equilíbrio radioativo estabelecido entre o decaimento do pai e o crescimento do filho; **equilíbrio transiente** (transitório) e **equilíbrio secular**, o qual nos interessa mais diretamente:

Equilíbrio Transiente – Neste tipo o pai é de mais longa vida que o filho ($\lambda_1 < \lambda_2$), e um estado chamado **equilíbrio radioativo transiente** é alcançado. Ou seja, após um certo tempo a razão do número de átomos e, conseqüentemente, a razão das taxas de desintegração de pai e filho será constante.

Equilíbrio Secular – É um caso limite de equilíbrio radioativo, onde $\lambda_1 \ll \lambda_2$. Neste caso a atividade do pai não cai significativamente durante muitas meias-vidas do filho, fato conhecido como **equilíbrio radioativo secular**, condição satisfeita pelas cadeias radioativas que ocorrem na natureza. O ^{238}U tem uma meia-vida de $4,5 \times 10^9$ anos, e a fração de átomos transformados durante a vida de um experimentador é realmente pequena. Em tal caso, pode-se tomar o número de átomos N_1 como constante, e o valor de λ_1 sendo muito menor do que de qualquer outro dos λ da cadeia. Este tipo de equilíbrio satisfaz a condição: $\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \dots = \lambda_{n-1} N_{n-1} = \lambda_n N_n$, ou em termos de meias-vidas;

$$N_1/(T_{1/2})_1 = N_2/(T_{1/2})_2 = \dots = N_{n-1}/(T_{1/2})_{n-1} = N_n/(T_{1/2})_n$$

Numa amostra não perturbada de ^{238}U , por exemplo, contendo N_1 átomos, um equilíbrio dinâmico é estabelecido no qual a taxa de formação dos átomos - filho (N_2) do ^{234}Th é igual a sua taxa de decaimento. Isto significa que $-dN/dt = \lambda_2 N_2$, porque a taxa de formação dos átomos - filho é igual à taxa de decaimento dos átomos - pai. Usando a relação anterior temos que $\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2$, sendo λ_1 e λ_2 as respectivas constantes de desintegração. Esta relação somente pode ser aplicada quando $\lambda_1 \ll \lambda_2$, ou $(T_{1/2})_1 \gg (T_{1/2})_2$. As relações $N_1/(T_{1/2})_1 = N_2/(T_{1/2})_2$ podem ser usadas para achar a meia-vida de um radionuclídeo cuja meia-vida é muito longa. Por exemplo, mostrou-se que minerais de urânio, nos quais se estabelece um equilíbrio secular, contêm um átomo de rádio para cada $2,8 \times 10^6$ átomos de ^{238}U . Se o urânio é indicado pelo subscrito 1 e o rádio pelo subscrito 2, então no equilíbrio $N_1/N_2 = 2,8 \times 10^6$. A meia-vida do rádio é conhecida por medidas diretas como sendo de 1.620 anos, conseqüentemente a meia-vida do urânio é: $(T_{1/2})_1 = N_1/N_2 \cdot (T_{1/2})_2 = 4,5 \times 10^9$ anos.

Além da complexidade teórica inerente ao tema equilíbrio radioativo, outros fatores que na prática irão dificultar esse estudo são de natureza geoquímica. As propriedades geoquímicas dos vários elementos na série radioativa do ^{238}U são diferentes, causando lixiviação diferenciada e, conseqüente, separação dos radionuclídeos. Um dos membros da série, o radônio, é gás e freqüentemente escapa de sistemas naturais. Quando um membro da cadeia é removido, parcial ou totalmente, o equilíbrio é perturbado e a velocidade de desintegração daquele elemento, e do resto da série, não é mais equivalente à velocidade de desintegração do elemento pai, ^{238}U . No caso do ^{222}Rn , de meia-vida 3,8 dias, o equilíbrio da série que se segue a este nuclídeo será restabelecido depois de 10 meias-vidas, ou cerca de 1 mês.

Se o equilíbrio for perturbado através de repetidas remoções de um membro de vida longa, como o ^{234}U com $2,48 \times 10^5$ anos, ou o ^{226}Ra , 1.622 anos, uma nova situação de equilíbrio pode nunca ser atingida. Este fato constitui uma limitação a que devemos estar sempre atentos, ao efetuarmos estudos radiométricos de urânio. Segundo FRIEDLANDER et al. (1964), o tório, por sua vez, está geralmente em equilíbrio com seus produtos de decaimento, devido à mobilidade geoquímica relativamente baixa do ^{232}Th e ^{228}Th , às curtas meias-vidas do ^{228}Ra e ^{224}Ra , respectivamente 6,7 anos e 3,64 dias, e à natureza efêmera do ^{220}Rn , 55 s, e dos outros nuclídeos da série entre o ^{224}Ra e o ^{208}Pb . Este último, o produto final estável da série. Geralmente o estado de equilíbrio só pode ser adequadamente determinado em laboratório, sendo muito difícil sua determinação no campo.

4.2.4.1 Mecanismos geoquímicos e desequilíbrio radioativo na série do ^{238}U no ambiente superficial

No ambiente superficial o comportamento geoquímico diferenciado dos vários radionuclídeos das cadeias do ^{238}U e ^{232}Th (Figuras 20 e 21) é o principal responsável pela ocorrência do desequilíbrio radioativo natural (CHERDYNSTEV, 1971, citado por GASCOYNE, 1982). O desequilíbrio é o resultado principalmente da diferenciação geoquímica devida à interação entre as fases sólida e aquosa do ambiente, levando à ruptura das cadeias de decaimento radioativo. No entanto, o desequilíbrio também depende do tempo de meia - vida dos radionuclídeos considerados e do seu alcance de recuo, como consequência do decaimento radioativo do seu precursor imediato. Quanto menor a meia - vida de um determinado isótopo, menor é sua possibilidade de causar desequilíbrio, o que se reflete na sua abundância no meio considerado. Entre dois radionuclídeos com as mesmas propriedades geoquímicas, a espécie de menor meia - vida será mais escassa, a menos que seja constantemente suprida por seu pai, e não alcançará uma dispersão considerável no ambiente. De modo geral, no ambiente superficial o ^{232}Th e elementos de sua cadeia de decaimento estão em equilíbrio radioativo secular. O problema do desequilíbrio é mais conspícuo entre os elementos da série do ^{238}U , cujos principais aspectos, conforme CHERDYNSTEV, *op. cit.*, são abordados a seguir.

Mecanismos

O fracionamento do ^{234}U em relação ao ^{238}U durante o intemperismo químico é bastante evidente, e refletido na razão de atividade $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, tanto na fase sólida como na aquosa de um sistema de intemperismo. Isto deve-se aos seguintes fatores principais:

- ***lixiviação preferencial do ^{234}U das estruturas cristalinas danificadas pela radiação, devido ao decaimento do ^{238}U ;***
- ***maior liberação diretamente para a fase aquosa do ^{234}U pelo alcance de recuo, e***
- ***decorrente dos processos acima, o ^{234}U é preferencialmente oxidado (a U^{+6}) e mobilizado em relação ao ^{238}U .***

Como resultado de tais processos a fase aquosa acusa excesso de filhos solúveis e a fase sólida, deficiência nesses mesmos isótopos. Subseqüentemente, as espécies dissolvidas produzem filhos por decaimento radioativo que podem ser mais ou menos

solúveis que os pais, sob determinadas condições de Eh, pH e outros parâmetros do ambiente, levando, ao final, ao desequilíbrio radioativo entre os vários isótopos da série. Por esses motivos, águas naturais superficiais e subterrâneas, tem excesso de ^{234}U em relação ao ^{238}U , gerando, por outro lado, razões de atividade de $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ e $^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$ aumentadas nas fases sólidas. Lixiviação seletiva dos radionuclídeos da série do ^{238}U pode resultar em solos com razões $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ superiores à unidade, tendo em vista a baixa solubilidade do Th.

O Th hidrolisa-se a pH em torno de 3,5. Mesmo quando é gerado em solução, pelo decaimento do ^{234}U , rapidamente se hidrolisa sendo adsorvido pela fase sólida do sistema, principalmente óxidos e hidróxidos de Fe, matéria orgânica e minerais de argila. Em solos e em sedimentos, o excesso de ^{226}Ra em relação ao U, em geral é devida ao excesso de ^{230}Th presente. Por outro lado, tendo em vista a maior solubilidade do ^{226}Ra em relação ao ^{230}Th , em geral ele é encontrado em excesso ao seu pai na maioria das águas naturais significando desequilíbrio radioativo. O ^{226}Ra é móvel em muitos ambientes superficiais, especialmente em ambientes redutores onde o U é imóvel. Por isso, freqüentemente está em desequilíbrio com seus pais, exceto em minerais detríticos. Em ambiente oxidante, óxidos de Fe e Mn tendem a adsorver o Ra e reduzir sua mobilidade, e, por esse motivo, o Ra forma muitas anomalias sem a presença do U. Desta maneira, o fracionamento do ^{230}Th em relação aos seus predecessores, ^{238}U e ^{234}U , e ao seu filho, o ^{226}Ra , é consequência, principalmente, de sua baixa solubilidade em meio aquoso, resultando em acumulações na fase sólida sem a presença equivalente dos isótopos citados, gerando desequilíbrio radioativo.

Assim, de um modo geral, equilíbrio radioativo secular entre os membros da cadeia do ^{238}U somente é atingido em um sistema que permanecer fechado por um período de cerca de 10^6 anos (IVANOVICH, 1982). O U de precipitação recente, tal como o encontrado em sedimentos de corrente ou em sedimentos lacustres recentes, necessita, aproximadamente 752.000 anos, equivalente a 10 meias-vidas do ^{230}Th , para tornar-se radiogênico e detectável com adequada precisão por métodos gama-analíticos com base no ^{214}Bi . Por isso, depósitos ou anomalias recentes de U epigenético carecem de seus filhos mais insolúveis, especialmente o ^{230}Th , com reflexos importantes no restante da cadeia de decaimento. Do ponto de vista físico-matemático, com base nos conceitos de atividade e equilíbrio radioativo pode ser deduzida, entre outras, a seguinte fórmula, que nos fornece dados numéricos sobre a dimensão do desequilíbrio radioativo, considerando-se o tempo de decaimento do ^{238}U (vide Anexo 02):

$$D(t) / A_0 = \lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 \left\{ \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{((\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_4 - \lambda_1))} \right] + \right. \\ \left. + \left[\frac{e^{-\lambda_2 t}}{((\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_2))} \right] + \left[\frac{e^{-\lambda_3 t}}{((\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)(\lambda_4 - \lambda_3))} \right] + \right. \\ \left. + \left[\frac{e^{-\lambda_4 t}}{((\lambda_1 - \lambda_4)(\lambda_2 - \lambda_4)(\lambda_3 - \lambda_4))} \right] \right\}$$

Sendo:

$D(t)$ = atividade do ^{226}Ra num tempo qualquer;

A_0 = atividade do ^{238}U no tempo inicial ($t = 0$);

$\lambda_1 = \lambda$ do ^{238}U ;

$\lambda_2 = \lambda$ do ^{234}U ;

$\lambda_3 = \lambda$ do ^{230}Th , e

$\lambda_4 = \lambda$ do ^{226}Ra .

Esta fórmula permite calcular a atividade do ^{226}Ra a partir do ^{238}U puro, considerando-se apenas os radioisótopos intermediários de maior tempo de meia-vida, ^{234}U e ^{230}Th , em qualquer tempo posterior ao instante inicial considerado. As curvas geradas e alguns dados numéricos mostrados a seguir, foram obtidos a partir da referida fórmula (vide Anexo 02), utilizando-se o “**software MATLAB 5**” (HANSELMAN; LITTLEFIELD, 1999). Considerando-se um sistema fechado, pode ser verificado, através dos documentos mencionados, que decorrido 1 milhão de anos o ^{226}Ra ainda não atingiu o equilíbrio radioativo secular pleno, e, neste caso, a sua atividade é 88,86% ($3,0712 \times 10^{-7}$) do seu valor máximo no equilíbrio ($3,455 \times 10^{-7}$). Para um tempo de crescimento de 500.000 anos a atividade do ^{226}Ra corresponde a 60,46% ($2,0895 \times 10^{-7}$), e para 100.000 anos cerca de 7%. A geração de ^{222}Rn ocorrerá na mesma proporção das concentrações de ^{226}Ra , nos tempos e locais considerados.

O destaque para os períodos de tempo de 1 milhão (1 Ma) e 100.000 e 500.000 anos, nos exemplos acima, deve-se ao fato de que, no ambiente climático considerado, estes valores são referência para a cronologia de atuação dos principais processos pedogenéticos, latolização e podzolização, e geoquímicos associados, responsáveis pelas fases mais importantes de remobilização de U nas paisagens. Este ensaio servirá de base para as considerações finais sobre o impacto do desequilíbrio radioativo entre os nuclídeos - filho da série do ^{238}U , na geração, e ao final na exalação, do ^{222}Rn nas paisagens, tendo em vista as diferentes fases de migração do ^{238}U .

Assim, em solos e sedimentos o ^{226}Ra geralmente ocorre em excesso relativamente ao ^{230}Th e, também, em relação ao ^{238}U . O ^{226}Ra é adsorvido em argilas, matéria orgânica, óxidos de Fe e Mn, a partir das soluções e, também, absorvido pelas plantas. Por fim, os isótopos de Rn são considerados, devido à sua grande mobilidade através de difusão

gasosa ou transporte pela água, como uma das principais causas de desequilíbrio radioativo. Acumulações excessivas de Rn em determinado ponto, com relação ao Ra, deve-se à sua migração do local em que é gerado. Ou seja, mesmo uma forte anomalia de ^{222}Rn em águas subterrâneas não garante a presença de Ra em suas proximidades.

4.3 RADÔNIO

Formado na cadeia do ^{238}U (Figura 20), pelo decaimento do ^{226}Ra , o ^{222}Rn é o isótopo de radônio de maior relevância em estudos geoambientais e sanitários por ter a meia-vida mais longa, 3,8 dias. É o suficiente para permitir que, uma vez formado, grande parte possa alcançar outros ambientes distantes do seu lugar de origem, se rotas permeáveis e meios-de-transporte estiverem disponíveis. O ^{220}Rn , também chamado torônio, embora seja gerado em quantidades expressivas, pelo decaimento do ^{224}Ra da cadeia do ^{232}Th (Figura 21), quantidades substancialmente menores alcançam a atmosfera devido à sua curta meia-vida, 55,6 segundos, que limita a distância que o mesmo pode percorrer antes de decair.

Segundo NAZAROFF et al. (1988b), a principal característica do radônio que lhe confere uma significância radiológica incomum em relação aos seus elementos precursores e sucessores é o fato de ser um gás nobre. Como tal, uma vez formado em materiais contendo rádio, um átomo de radônio fica relativamente livre para se mover. Outra característica importante é que o mesmo decai em radionuclídeos quimicamente ativos e de meias-vidas relativamente curtas, menos de 30 minutos. Uma vez inalados, decaem antes de serem removidos pelos mecanismos de defesa dos pulmões. Além do radônio, o entendimento do comportamento dos seus produtos de decaimento é necessário para orientar a natureza das medidas de controle para atenuação das suas concentrações, sobretudo em ambientes fechados. Nesse sentido, uma outra manifestação radiológica importante, decorrente da atividade físico-química do radônio, é que os seus produtos de decaimento podem formar "**aglomerados aéreos**" ao se ligar às partículas existentes no ar. Aderindo às superfícies macroscópicas dos ambientes e aos **aerosóis**, os produtos de decaimento do radônio podem se depositar diretamente no trato respiratório humano através das partículas do ar. Tendo em vista a energia das partículas emitidas, os decaimentos alfa responsáveis pela dose de radiação de maior significância nos seres vivos são aqueles dos radioisótopos ^{218}Po e ^{214}Po , para a série do ^{222}Rn e, similarmente para a série do ^{220}Rn , dos ^{212}Bi e ^{212}Po (Figuras 20 e 21).

Do ponto de vista químico o radônio é um gás inerte de número atômico 86, gás nobre, solúvel em água e matéria orgânica (MO), podendo ser adsorvido por carvões e "potassa" (K_2CO_3), difundindo-se no ar e na água. Sob pressões parciais muito baixas, isto é, sob condições ambientais o radônio condensa-se em superfície a aproximadamente $-150\text{ }^\circ\text{C}$, sendo o ponto de ebulição e de fusão $-62\text{ }^\circ\text{C}$ e $-71\text{ }^\circ\text{C}$, respectivamente. Técnicas usadas para concentrar radônio a partir de uma corrente de ar envolvem a sua

coleta com carvão ativado resfriado à temperatura do CO₂ sólido (-56,6 °C), ou em lã de vidro resfriada à temperatura do N₂ líquido (-196 °C).

Por fim, cabe ressaltar que porções de material radioativo podem ser definidas por sua massa ou atividade, sendo esta última a mais utilizada na prática. Atividade é a taxa com que os átomos decaem, e a unidade padrão internacional (SI) para atividade é o BECQUEREL (Bq), igual a uma desintegração por segundo (dps). Esta unidade, ou seu equivalente tradicional CURIE (Ci), que equivale a $3,7 \times 10^{10}$ dps ou Bq, é a adequada para expressar atividade e concentração, não somente para o radônio, mas também para os seus produtos de decaimento ou qualquer combinação destes. Deste modo, uma fonte de radônio pode ser caracterizada em termos de sua concentração em U e Th (Ra), da fração de Rn gerado que escapa do material de origem, denominada **fração** ou **razão de emanção** (%), da **taxa de emanção**, que no SI é dimensionada em Bq / Kg.s, e da **taxa de exalação** ou **fluxo**, em Bq / m².s (FRIEDLANDER et al., 1964, KNOLL, 1979, BACH, 1987, NAZAROFF; 1988).

4.3.1 Conceitos de Geração, Recuo Alfa, Emanação, Migração e Exalação

A **taxa de geração** de Rn num ponto qualquer depende da concentração e decaimento do Ra, ou seja, é dada pela atividade do Ra no ponto em questão. No processo de decaimento do Ra, o Rn é gerado com energias de recuo de 0,086 MeV para o ²²²Rn e 0,103 MeV para o ²²⁰Rn. Estas energias fazem com que estes radioisótopos se movimentem no meio onde foram gerados, cujo deslocamento, da ordem de nanômetros (nm = 10⁻⁹ m), chamado **recuo alfa**, irá depender da natureza, densidade e composição do meio. Assim, o alcance do ²²²Rn é de cerca de 65.000 nm no ar, 95 na água e entre 30-50 na maioria dos materiais sólidos naturais, sendo 35 nm nas argilas (BOSSUS, 1984, SEMKOW, 1990, GREEMAN; ROSE, 1996). Taxa efetiva de geração ou taxa de emanção é a fração do Rn gerado que pode se mover através de um material (NERO; NAZAROFF, 1984). Estudando a emanção do Rn, SEMKOW, *op. cit.*, concluiu que o poder de emanção é igual à razão da taxa de Rn que escapa do sólido e sua taxa de formação no sólido sob condições de equilíbrio dinâmico, o que requer que a taxa de formação no sólido seja igual à soma das taxas de escape e de decaimento no sólido. A partir dos seus estudos propõe quatro mecanismos para explicar a emanção de Rn a partir de sólidos: **recuo alfa, difusão através do sólido, recuo indireto e efeito knock - out**. Entretanto, destaca que a emanção devida ao recuo alfa é o principal mecanismo de liberação de radônio de materiais sólidos. E, no caso

de materiais geológicos, a taxa de emanção é fundamentalmente consequência desse processo, de modo que os demais mecanismos podem ser negligenciados.

Então, os isótopos de Rn gerados, sendo gases inertes, tendem a escapar dos sólidos na fase gasosa, mas somente uma fração deixa os grãos onde foram gerados e entra nos poros do material. Esta fração é conhecida por vários nomes, como coeficiente de emanção, fração de emanção, poder de emanção, taxa efetiva de geração, taxa de emanção. MEGUMI e MAMURO (1974), estudando perfis de solos contendo Ra concluíram que a taxa de emanção de radônio (Ci / g.s ou Bq / Kg.s no SI) de um material qualquer depende: **do teor e modo de distribuição do Ra; da superfície específica do material portador do Ra (granulometria), e do teor de umidade no ar dos poros ou espaços vazios.**

Incorporando os resultados dos estudos citados, vários autores em literatura mais recente nos apresentam definições similares. SOLIANI e POUPEAU (1993) consideram coeficiente ou taxa de emanção o número de átomos de radônio liberados nos espaços livres do solo ou rocha, dividido pelo número de átomos formados pela desintegração radioativa do Ra, numa unidade de tempo. GREEMAN e ROSE (1996) definem coeficiente de emanção ou poder de emanção, como a proporção de radônio produzido pelo decaimento do Ra que escapa de um material sólido. Para um solo úmido, na ausência de migração, o conteúdo de Rn no gás do solo é, segundo WASHINGTON e ROSE (1992), citados por GREEMAN e ROSE (1996):

$$C_{Rn} = C_{Ra} ED / [P \{ F (K-1) + 1 \}]$$

Onde:

C_{Rn} - é a concentração de Rn (Bq/m³_a);

C_{Ra} - é a concentração de Ra no solo (Bq/Kg);

E - coeficiente ou taxa de emanção (Bq/Kg.s);

D - é a densidade do solo (Kg/m³_t);

P - é a porosidade total do solo (m³_p / m³_t);

F - é a fração da porosidade preenchida com água (m³_w / m³_t);

K - é o coeficiente de partição para o Rn, entre as fases ar e água (m³_a / m³_w), e

a, p, t e w - referem-se, respectivamente, a ar, porosidade, porosidade total, solo e água.

Teor e Distribuição do Ra, Granulometria e Emissão

SEMKOW (1990) estabeleceu correlações entre as concentrações total e superficial de Ra em um determinado material, sua granulometria e espessura e o poder de emissão de Rn desse material. Em grãos maiores que o alcance de recuo alfa, em que a distribuição do Ra é superficial, o poder de emissão é independente do tamanho dos grãos. O oposto é verdadeiro. Para uma distribuição uniforme de Ra através do volume dos grãos, o poder de emissão depende da porosidade dos grãos. Este autor considera que a alta emissão de Rn de grandes partículas resulta da distribuição preferencial de Ra em películas que capeiam os grãos, e do pequeno tamanho médio e alta densidade dos poros. Segundo FLEXSER et al. (1993), partículas coloidais menores que 0,3 μm geralmente são abundantes em solos, o que significa a existência de agregados com alta densidade de poros com tamanho médio da mesma ordem de grandeza do alcance de recuo do ^{222}Rn , ou seja, 0,035 μm . Este tipo de material contido nos solos, se contiver Ra, pode proporcionar emissão de Rn da ordem de 40 a 50%.

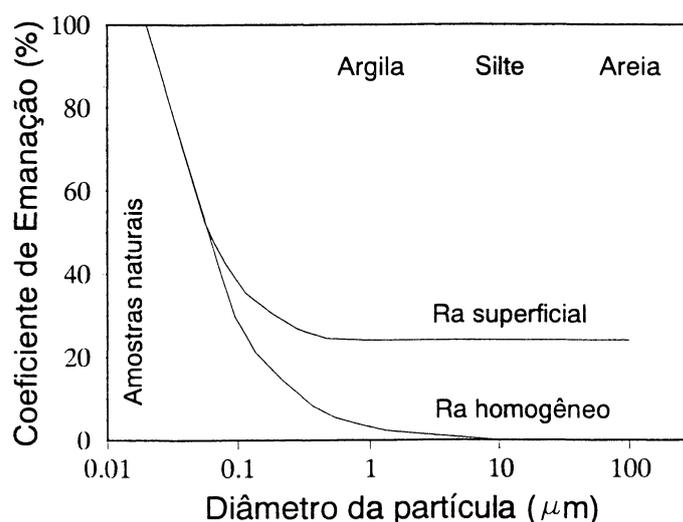
Verifica-se, então, que o teor, e, sobretudo, o padrão de distribuição do Ra nos grãos do solo estão entre os principais fatores que controlam a emissão do Rn. Se o Ra é homogeneamente distribuído nos grãos de materiais cristalinos, então os valores de emissão são muito pequenos ($< 0,01$) para grãos ou cristais maiores que 0,5 μm de diâmetro, pois poucos átomos de Ra estarão a uma distância dos poros correspondente ao intervalo do alcance de recuo alfa do Rn. Entretanto, os valores observados na prática estão comumente entre 0,1 e 0,3, o que significa que nas paisagens o Ra encontra-se enriquecido preferencialmente na parte superficial dos grãos, fracamente ligado aos seus hospedeiros. De modo geral a emissão varia de menos de 0,02 a mais de 0,5 em solos de granulometria fina. Ou seja, o U e Th (Ra) podem estar em pequenos minerais acessórios ou em películas na superfície dos minerais. Sua distribuição na superfície de materiais pedológicos é o resultado do intemperismo das rochas subjacentes, donde são redistribuídos (Capítulo 3).

GREEMAN e ROSE (1996), citam vários pesquisadores que obtiveram resultados positivos ao relacionar emissão de Rn e distribuição de Ra nos materiais estudados: STRASSMANN (1932) verificou que materiais orgânicos, que em geral tendem a adsorver U(Ra), exibem caracteristicamente altos coeficientes de emissão de Rn; DELWICHE (1958) removeu o Ra trocável de um solo e notou um decréscimo de 72 % na emissão do Rn; MEGUMI e MAMURO (1974) propuseram duas componentes para a distribuição do Ra em amostras de solo que estudaram. Uma distribuída através do volume e a outra

concentrada à superfície, responsável pela maior parcela da emissão de Rn. Ainda, GREEMAN et al. (1990), mostraram que uma significativa proporção de Ra nos solos ocorre em películas de matéria orgânica e concluíram que esta componente é responsável por altas contribuições ao coeficiente de emissão de Rn.

Assim, a maioria dos pesquisadores concorda que as altas taxas de emissão de Rn são devidas à distribuição do Ra próximo à superfície dos materiais portadores. O principal fator de transferência de radônio entre diferentes meios é a “área superficial específica” do material contendo os isótopos de Ra (BONOTTO; LIMA, 1995). Conseqüentemente, como demonstrado em vários estudos com rochas e solos, uma correlação direta entre o coeficiente de emissão do ^{222}Rn e/ou ^{220}Rn e tamanho das partículas ou granulometria, deve ser esperada somente nos materiais onde os isótopos de Ra estão uniformemente distribuídos. Ou seja, alto poder de emissão está associado com alta densidade de poros e distribuição superficial de Ra, e o baixo poder de emissão com a distribuição do Ra através do volume das partículas (Figura 22).

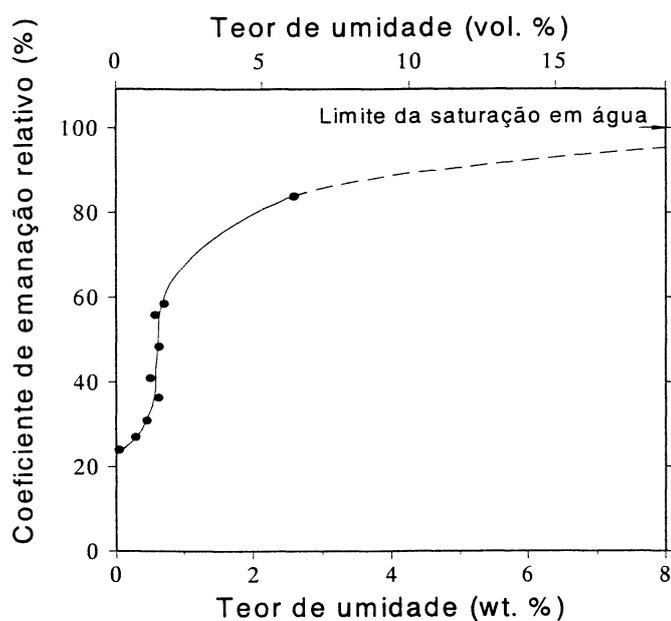
FIGURA 22 – COEFICIENTE DE EMANAÇÃO DE Rn, COM RELAÇÃO AO DIÂMETRO, PARA GRÃOS COM Ra HOMOGÊNEAMENTE DISTRIBUÍDO E PARA Ra EM PELÍCULAS SUPERFICIAIS DE ESPESSURA IGUAL AO ALCANCE DE RECUO DO Rn



FONTE: Extraída de GREEMAN e ROSE (1996)

do estado saturado, o coeficiente de emanação cai suavemente até que toda a água gravitacional é removida. Uma vez drenada a água dos grandes poros, e a água capilar começa a ser afetada, o coeficiente de emanação cai substancialmente. Finalmente, quando resta somente água adsorvida, verifica-se uma pequena variação negativa na curva da emanação com o total secamento do solo. Isto se explica pela pequena espessura da película de água adsorvida, insuficiente para o freamento e aprisionamento dos átomos de radônio recuados (NAZAROFF et al., 1988b).

FIGURA 24 – EFEITOS DA UMIDADE DO SOLO NO COEFICIENTE DE EMANAÇÃO DO ^{222}Rn PARA UMA AMOSTRA CONTENDO U



FONTE: Extraída de NAZAROFF et al. (1988b)

Verifica-se, então, que o teor e distribuição do Ra, a granulometria e a umidade do solo são fundamentais para o poder de emanação de um solo. Quanto menor é o tamanho das partículas maior é a superfície específica, e maior é o poder de emanação. Já a presença de umidade aumenta o poder de emanação, mas seu excesso pode bloquear os poros e impedir a migração do Rn no solo, afetando a sua exalação nas paisagens, situação que pode variar em resposta às mudanças climáticas em escala sazonal, diária ou mesmo horária, como será visto adiante.

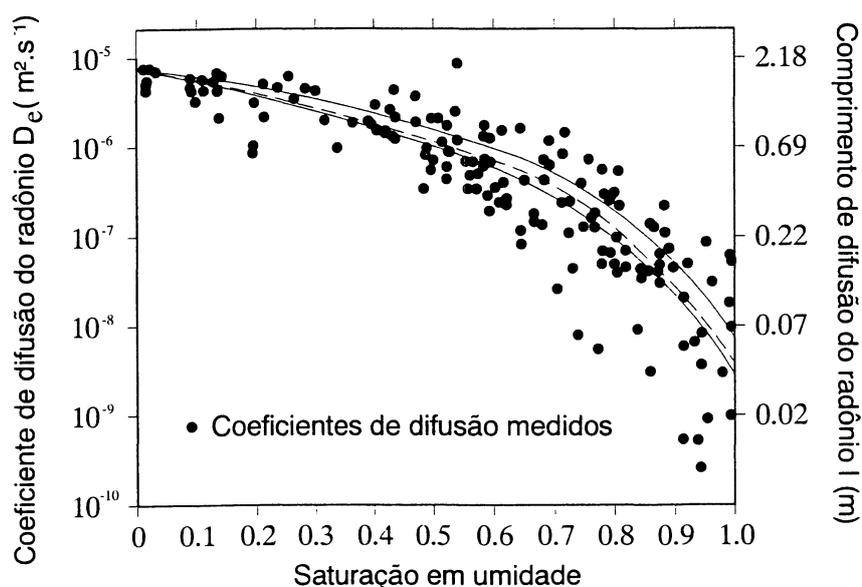
Migração do Rn no Solo e Exalação

De acordo com SEMKOW (1990), o conceito de emanção aplica-se aos grãos individuais ou pequenas amostras, enquanto taxa de exalação ou fluxo é uma medida natural da emanção do Rn no solo, dependente da configuração macroscópica do material. Em outras palavras, a emanção dos grãos é independente do movimento do Rn nos poros, enquanto exalação depende dessa migração. Conseqüentemente, a exalação é normalmente menor do que a emanção (BATES, 1980, citado por SEMKOW, 1990), pois durante a migração há perda de Rn por decaimento radioativo e diluição com o meio. ROGERS et al. (1989) e SCHERY e WHITTLESTONE (1990), também citados por SEMKOW (1990), demonstraram que o poder ou taxa de emanção é independente da adsorção, difusão e convecção da fase gasosa. Assim, o termo exalação é normalmente usado no contexto de macroescala, na liberação de Rn da superfície terrestre para a atmosfera.

Excluindo-se a remoção de Rn por decaimento radioativo, a sua migração através de um solo seco, ou com pouca umidade, ocorre por uma combinação dos processos de **difusão molecular e fluxo convectivo** (NAZAROFF et al., 1988b, GUNDERSEN et al., 1992). A difusão molecular depende da estrutura microscópica do material, constituindo-se num processo espontâneo de transporte de massa em determinado sistema físico-químico, por efeito de um gradiente de concentração. Convecção refere-se à circulação dentro de uma massa fluída, originada por diferenças de densidade ou de pressão. O conceito de difusão é consistente com os postulados da teoria cinética dos gases ideais, sendo traduzido pela primeira Lei de Fick. Fluxo convectivo é matematicamente representado pela Lei de Darcy, que estabelece relação entre a permeabilidade do solo e a velocidade aparente do fluxo convectivo de um fluído através dos poros, sob o efeito de um gradiente de pressão. Ou seja, a física de migração do Rn no solo envolve gradientes de concentração que condicionam a sua difusão, e gradientes de pressão que possibilitam o seu fluxo convectivo através dos vários compartimentos do **subsistema solo**, inserido no **sistema vertente**. A maioria dos pesquisadores concorda que difusão molecular é o processo de migração dominante em solos de baixa permeabilidade (abaixo de 10^{-7} cm²), como siltes e argilas, podendo-se desconsiderar, neste caso, o mecanismo de convecção. Por outro lado, o processo de fluxo convectivo tende a dominar em solos muito permeáveis (acima de 10^{-7} cm²), como areias e cascalhos. Então, o fluxo de Rn num solo qualquer depende da permeabilidade.

A permeabilidade de um solo está relacionada com as suas propriedades macroscópicas. Sua distribuição está relacionada com os tipos de solos e sua repartição nas diferentes paisagens de uma vertente, apresentando grandes variações espaciais, conforme discutido no Capítulo 2. Está entre as características físicas mais importantes condicionantes da migração de Rn no solo. Por este motivo deve ser um dos focos de qualquer estudo sobre a distribuição de Rn nas paisagens, sendo a escala das encostas a mais adequada para detectar as suas variações. Por outro lado, a umidade do solo, cuja distribuição também é influenciada pelas vertentes, interfere profundamente nas várias etapas de migração do Rn. Afeta intensamente a sua taxa de emissão e sua migração através do solo, refletindo-se, ao final, na taxa de exalação. Quando úmido, a taxa de emissão de Rn é maior, porém sua difusibilidade é menor, sendo negligenciável em solos saturados. Para baixas umidades dos solos a água ocorre aderida à superfície dos grãos minerais deixando livre os grandes poros. Quando próximo da saturação estes ficam preenchidos, o que ocasiona uma diminuição profunda na difusão do Rn (Figura 25). Verifica-se, pois, que a umidade interfere na permeabilidade dos solos ao fluxo de ar, o que leva a considerar o conceito de **permeabilidade relativa**, apresentado a seguir.

FIGURA 25 – EFEITOS DA UMIDADE DO SOLO NA DIFUSIBILIDADE DO Rn

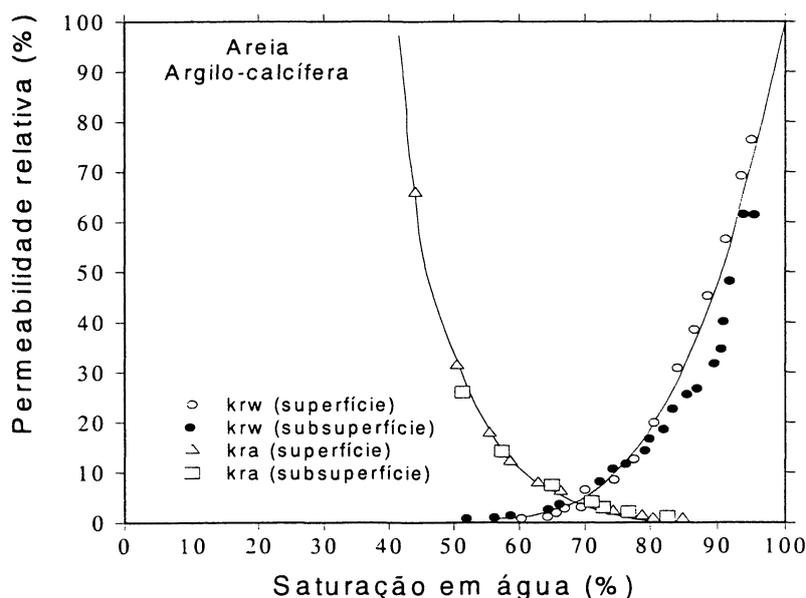


FONTE: Extraída de NAZAROFF et al. (1988b)

Permeabilidade Relativa

Anteriormente considerou-se a permeabilidade dos solos como fator determinante para a migração do Rn, sem considerar a presença de água nos poros como fator limitante. A água nos poros afeta a permeabilidade de um solo ao fluxo de ar. Esta não é afetada significativamente quando os teores de umidade situam-se abaixo da **capacidade de campo** do solo considerado. No entanto, à medida que o nível de umidade vai aumentando os grandes poros vão sendo preenchidos, o que ocasiona grande redução da permeabilidade ao fluxo de ar (Figura 26). Ou seja, o excesso de umidade bloqueia os poros do solo impedindo a migração do Rn. Vários estudos demonstraram que a permeabilidade de um solo a um dado fluxo de ar, quando a umidade é igual a capacidade de campo, é cerca de 0,6 / 0,8 daquela exibida pelo mesmo solo quando seco (NAZAROFF et al., *op. cit.*). Abaixo da capacidade de campo, a influência da umidade na permeabilidade dos solos ao fluxo de ar é maior em solos argilosos, devido à natureza, tamanho e distribuição dos poros desses materiais.

FIGURA 26 – PERMEABILIDADE RELATIVA DE UMA AREIA ARGILO-CALCÍFERA AO AR (K_{ra}) E À ÁGUA (k_{rw}) COMO FUNÇÃO DO SEU GRAU DE SATURAÇÃO EM ÁGUA

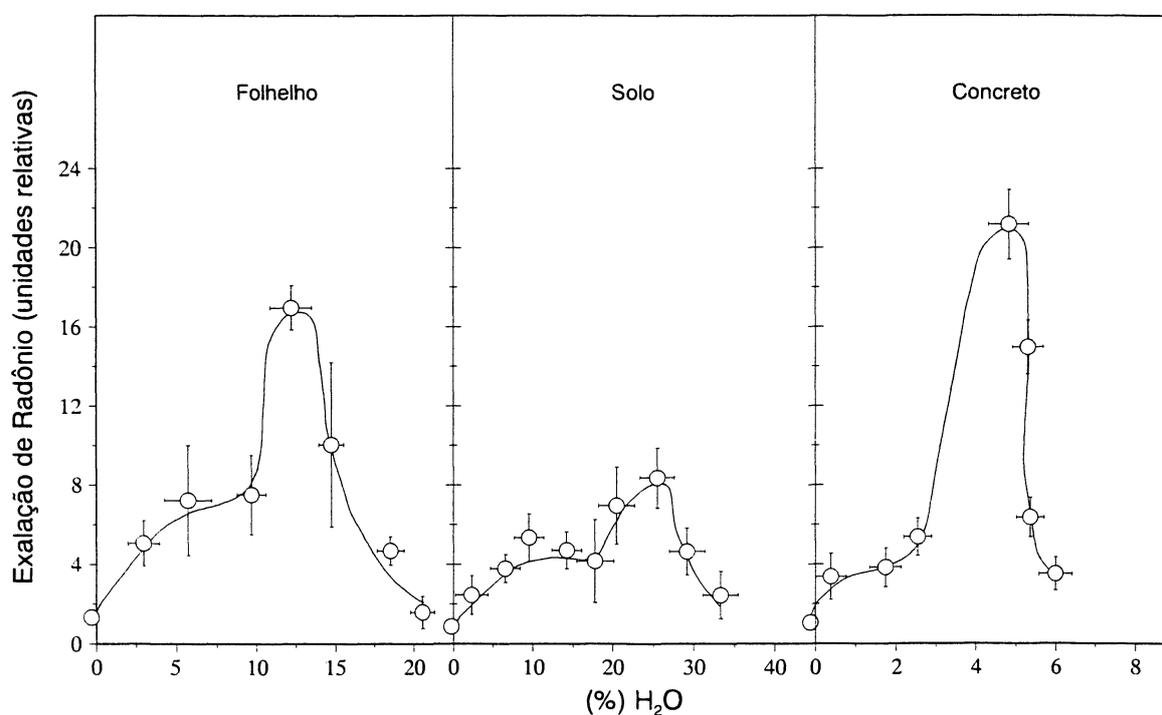


FONTE: Extraída de NAZAROFF et al. (1988b)

Como no ambiente tropical úmido, embora com importantes variações sazonais, a água comumente está presente no solo, a emanção e migração do radônio no solo e em

outros materiais, e como conseqüência a sua exalação, são muito dependentes dos níveis de umidade (Figura 27). Por isso, um dos nossos focos de estudo está colocado nos níveis de umidade dos diferentes horizontes do solo e suas variações sazonais, traduzidas pelo regime hídrico do aquífero freático por porosidade secundária, como um dos principais fatores condicionantes da distribuição do Rn nas paisagens. Na presença de água, a migração do Rn e da água estão associadas, seja por gravidade através dos grandes poros, situação típica das paisagens eluvial e transeluvial, onde o aquífero tem uma zona de aeração em geral bem desenvolvida, ou por capilaridade/evaporação, principalmente na paisagem supraqual. Nesta paisagem predominam áreas planas, em geral estagnadas, onde a evapotranspiração é o principal mecanismo de remoção de água do aquífero, uma vez que o nível freático e sua franja capilar estão próximas à superfície. A migração de Rn devido à difusão do vapor d'água, quando ambos estão misturados, é significativa.

FIGURA 27 – INFLUÊNCIA DO CONTEÚDO DE UMIDADE NA EXALAÇÃO DE Rn PARA AMOSTRAS DE FOLHELHO, SOLO E CONCRETO.



FONTE: Extraída de STRANDEN et al. (1984)

Finalizando, a concentração, mobilidade (emanação + migração) e exalação de Rn em uma determinada paisagem depende de vários fatores, entre eles a geometria do aquífero freático por porosidade e o posicionamento espacial do nível freático, o teor e o

modo de distribuição de Ra, a permoporosidade do solo e o seu teor de umidade. Destes fatores, a geometria, o teor e modo de distribuição do Ra e a permoporosidade dos solos, todos **“fatores estáticos”**; decorrem da evolução das paisagens, pela atuação dos processos supergênicos durante os tempos geológico e pedológico. Já o teor de umidade dos solos depende das propriedades do aquífero em si e, principalmente, dos regimes térmico e hídrico do clima. Em resposta às condicionantes dinâmicas do sistema vertente, a emanção e concentração do Rn no gás do solo, sua migração e exalação, podem variar em resposta às mudanças das condições climáticas em escala horária, diária e sazonal. Para eliminar influências sazonais secundárias, como variações de pressão e de temperatura, efeito dos ventos, etc., nos levantamentos das paisagens devem ser utilizados **detectores integrativos** de Rn, por um período de tempo não inferior a três meses (BINNS et al., 1995).

4.3.1.1 Conceituação matemática da emanção

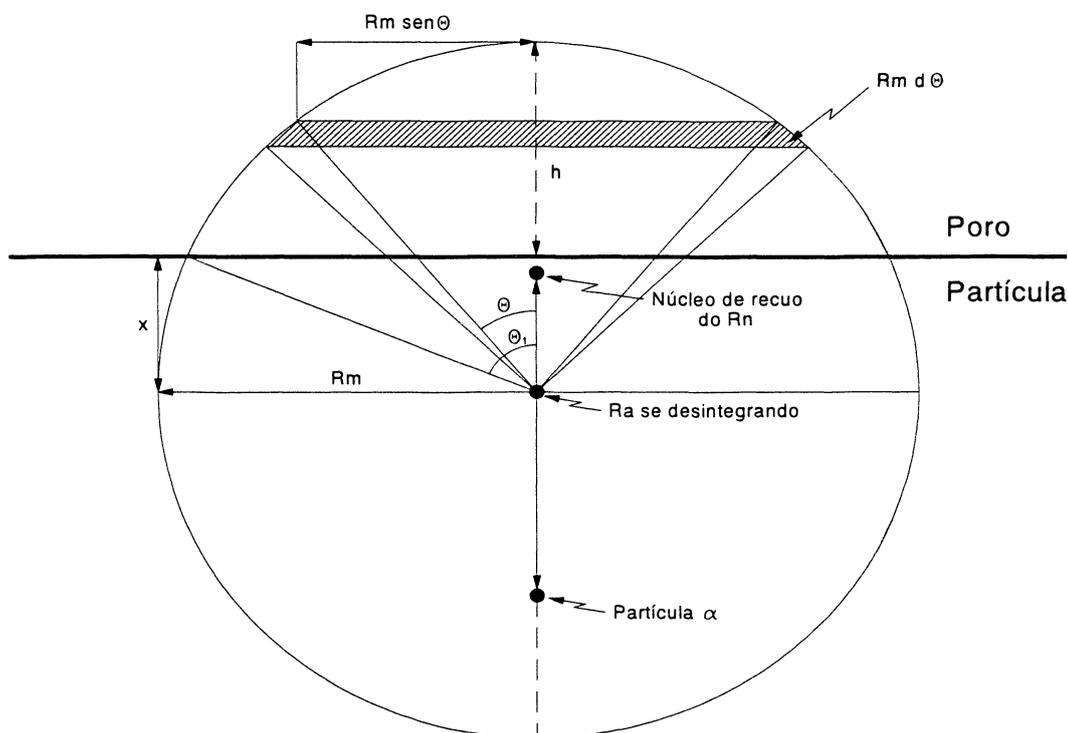
Como vimos, o coeficiente de emanção é composto por duas componentes principais. Uma devida ao recuo alfa do Rn e a outra devida à difusão dos átomos através da estrutura cristalina, ambas com valores dependentes da superfície específica dos materiais considerados. Quanto menor o diâmetro médio das partículas maior será a superfície específica de um material e o coeficiente de emanção. De acordo com BOSSUS (1984), à temperatura ambiente a maioria das rochas e solos tem coeficientes de emanção por difusão desprezíveis (entre 10^{-70} e $10^{-22} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$). Desta maneira, para efeito deste estudo, será considerada apenas a parcela devida ao recuo.

Considerando-se os átomos de rádio homogeneamente distribuídos no material e os de radônio sendo emitidos em todas as direções, com um alcance de recuo R_m , a probabilidade de escape $P(x)$, devido ao recuo R_m , de um átomo de radônio, formado a uma profundidade x da interface entre a superfície do material e um poro, é dada pelo quociente da área da calota com altura h e a área total da superfície da esfera de raio R_m , cujo resultado é (Figura 28):

$$P(x) = h/2R_m = (R_m - x) / 2R_m \quad (1)$$

Um átomo de radônio, ao entrar num poro poderá ter, ainda, uma quantidade de energia residual de recuo”, que determinará se o mesmo permanecerá no poro ou irá entrar

FIGURA 28 – PROBABILIDADE DE ESCAPE DE Rn DE UMA PARTÍCULA PARA UM PORO, DEVIDO AO SEU RECUE APÓS A DESINTEGRAÇÃO DO Ra, ONDE: Rm = ALCANCE MÉDIO DE RECUE DO Rn; X = A DISTÂNCIA DO NÚCLEO DE Ra ATÉ O PORO, E h = ALTURA DA CALOTA



FONTE: Baseada em BOSSUS (1984) e SEMKOW (1990)

na superfície oposta. Isto significa que o cálculo do coeficiente de emissão decorrente de $P(x)$ fornece o valor máximo, não considerando os átomos que atravessam o poro e se alojam nas partículas adjacentes. O coeficiente de emissão do Rn varia também com o conteúdo de umidade do solo e com o tamanho dos poros (d). Suponhamos, então, que a taxa de geração de Rn (G_v) num determinado volume é constante. O total de Rn formado por unidade de área será igual ao produto λC_{Ra} , e o total do Rn que permanece no volume será a integral de 0 a $d/2$ de $C(x)dx$. O total de Rn gerado no volume do cilindro será dado pela expressão $G_v 1\text{cm}^2 d/2$. Então a taxa de emissão do Rn para fora da superfície unitária do cilindro (E_s), será:

$$E_s = G_v 1\text{cm}^2 \frac{d}{2} - \lambda \int_0^{d/2} C(x) dx \quad (2)$$

A relação anterior permite considerar duas hipóteses:

1a. Hipótese. As dimensões do poro d são maiores do que o alcance R_m do radônio na água. Nesse caso, todo o radônio que conseguir sair da partícula não entrará em outra. Então tem-se que a integral de $C(x)dx$ é igual à integral de $G_v dx$ menos a integral de $P(x)G_v dx$. Resolvendo-se as integrais, de 0 a R_m , temos que :

$$E = G_v [(R_m - x) / 2R_m] \quad (3)$$

$$C(x) = G_v \frac{R_m + x}{2R_m} \quad (4)$$

Em função disso, calculamos a emanção total (E_t) de Rn para o poro, que é a integral de 0 a R_m de $P(x)G_v dx$. Substituindo $P(x)$ por $R_m - x / 2R_m$, na equação 1, temos que a integral de 0 a R_m de $(R_m - x) / 2R_m G_v dx$ resulta:

$$E_t = \frac{G_v}{4} R_m \quad (5)$$

A equação 5 traduz uma rocha radioanômala no estado inalterado, sem lixiviação. A taxa de geração de Rn, (G_v), considerada constante no item anterior, é variável em função do decaimento radioativo do precursor do Ra, produzindo o seu recuo, considerado a seguir:

2a. Hipótese. Vamos supor, que a exemplo do Rn, o Ra também obedece a uma lei de concentração semelhante, em função do seu recuo por ocasião da desintegração do seu pai (^{228}Th ou ^{230}Th). Desprezaremos as correções do cálculo de $P(x)$ quando G_v não é constante. Nestas condições, supondo-se que o alcance de recuo do Ra é igual ao do Rn, temos:

$$C_{Ra}(x) = G_v^{Ra} [(R_m + x) / (2R_m)] \quad (6)$$

Com isso tem-se que:

$$\int_0^{R_m} G_v^{Ra} [(R_m + x) / (2R_m)] dx = \int_0^{R_m} C(x) dx + \int_0^{R_m} E(x) dx$$

$$E = P(x) G_v^{Ra} [(R_m + x) / (2R_m)] \quad (\text{hipótese 2}) \quad (7)$$

Substituindo-se $P(x)$ pela equação 1 e resolvendo obtemos E , cuja integral de 0 a R_m fornece-nos E_t :

$$E = G_v^{Ra} [(R_m^2 - x^2) / (4R_m^2)] \quad (8)$$

$$E_t = (G_v^{Ra} / 6) R_m \quad (9)$$

Então, podemos concluir, comparando as equações 5 e 9, que o resultado da segunda hipótese indica que a emanção total (E_t) do Rn para o poro é menor quando o recuo do Ra é considerado. Por outro lado, a concentração do Ra na fase aquosa torna-se maior, o que se refletirá positivamente na concentração final de Rn nos poros.

4.4 RADÔNIO NAS PAISAGENS

Parte das rochas cristalinas, em particular os granitos, quando inalteradas contém elementos radioativos disseminados da ordem de alguns ppm a centenas de ppm, podendo atingir concentrações mais elevadas em condições especiais. Em tais circunstâncias, nenhum impacto, ou impactos pouco significativos, podem causar aos seres vivos nos locais onde ocorrem. Isto é verdadeiro na medida em que o radônio gerado no interior de uma rocha pouco permeável e em baixas proporções, não pode atingir a superfície, transformando-se por decaimento radioativo em polônio, que é metálico, e, assim, fica aprisionado no interior da rocha. No entanto, após intensa meteorização, durante os tempos geológico e pedológico, essas rochas adquirem altas porosidades e, devido a lixiviação e redistribuição dos elementos químicos presentes, níveis enriquecidos nos radionuclídeos U e Th (Ra) são gerados e espacialmente posicionados em associação com a água da superfície freática e a superfície das paisagens, mudando significativamente as condições iniciais (REBELO et al., 1997).

Para melhor caracterização das fontes e possibilidades de migração de Rn através dos solos em ambiente tropical úmido, o entendimento da redistribuição de U e Th (Ra) originários da rocha inalterada e sua fixação final associada com as fases pedogenéticas, durante a evolução das paisagens, é de fundamental importância. A exalação do Rn nas paisagens irá depender, além dos fatores mencionados, da existência de zonas suficientemente permeáveis que permitam a sua difusão / convecção ou transporte pelas águas freáticas. Distribuição espacial de U e Th (Ra) e da permoporosidade dos solos são fatores importantes para a determinação dos níveis finais de concentração e exalação de radônio num determinado ponto de uma paisagem.

Assim, a taxa de exalação de Rn num determinado ponto de uma paisagem depende, inicialmente, das taxas de geração do material contendo Ra e emissão para os poros. Na seqüência de eventos, as condições que possibilitam a permanência de Rn nos poros, ou sua migração através dos solos constituintes do aquífero freático, desde o local de origem até a interface com a atmosfera onde ocorre a exalação, é a segunda consideração importante. Transpondo estes conceitos para o ambiente natural, segundo REBELO et al., *op. cit.*, os processos mencionados dependem das características abaixo, que variam conforme as paisagens consideradas, o que será analisado a seguir:

-Presença de horizontes pedogenéticos enriquecidos em Ra (indicados pela concentração de U e Th);

- Modo de distribuição do Ra nos materiais, se na estrutura cristalina ou adsorvido em superfícies e imperfeições dos cristais (indicado pelas razões Us/Ut e Th/U);**
- Dimensão dos poros dos materiais contendo Ra (indicado pela granulometria);**
- Espessura e permeabilidade das coberturas residuais de alteração;**
- Relação dos horizontes radioanômalos com os tipos de solos, nível freático e a atual superfície do terreno;**
- Grau de umidade do ar dos poros, e**
- Intensidade e natureza dos processos hidrogeológicos controladores da circulação hídrica através dos diferentes segmentos do aquífero freático por porosidade secundária.**

4.4.1 Geração e Emissão de Rn nas Paisagens

A atuação concorrente dos diferentes processos supergênicos durante os tempos geológico e pedológico, culmina com a organização da paisagem em vales e vertentes, às quais se associam diferentes paisagens elementares, evidenciadas por uma série de propriedades. Num ponto qualquer a taxa de geração de radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn) depende do nível de concentração dos radionuclídeos U e Th (Ra) no ponto considerado. Como visto, diferentes concentrações desses radionuclídeos estão associados a cada tipo de solo, o que significa, para cada paisagem, diferentes taxas de geração de Rn. Por sua vez, a emissão de Rn depende da taxa de geração, do modo de distribuição do Ra nos hospedeiros, se em resistatos ou adsorvido em superfícies, da superfície específica do material hospedeiro e do nível de umidade dos poros do material, este controlado pela sazonalidade do clima e propriedades morfológicas do aquífero freático por porosidade secundária.

Do ponto de vista matemático, as demonstrações efetuadas no item 4.3.1.1, comprovam que a concentração do U na superfície dos materiais de alteração supergênica e a presença da água nos poros do material tem implicação direta na probabilidade de escape, $P(x)$, equação 1, que tenderá ao máximo. Os reflexos deste fenômeno alcançam os cálculos decorrentes de $P(x)$, como o coeficiente de emissão (E), emissão total (E_t) e concentração ($C(x)$), equações 3, 4 e 5. A emissão será significativamente aumentada e a concentração de radônio nas partículas do solo minimizada pela transferência crescente aos poros saturados de água, na zona freática. A parcela de Ra que por recuo diminui a emissão total de Rn dos materiais para os poros, equação 9, no entanto, também vai contribuir para o aumento dos teores de Ra e Rn diretamente na fase

aquosa. Assim, como consequência dos fenômenos de lixiviação e redistribuição do U (Ra), o Rn passa a ser gerado e emanado em maiores proporções, e com isso mais radônio atinge diretamente a água dos poros, aumentando sua concentração nesse meio, e, em condições apropriadas de migração, também a sua exalação.

Paisagem Eluvial (Latossolos)

A paisagem eluvial é o local típico de ocorrência de Latossolos. Nesta paisagem em geral os fluxos aquosos são verticais descendentes, através do horizonte B latossólico, com boa permoporosidade, e a zona de aeração do aquífero freático por porosidade secundária exibe aí sua máxima espessura. O ambiente geoquímico acima do nível freático é oxidante e o pH é ácido. Em geral as principais radioanomalias estão situadas no topo do horizonte B. Anomalias de menor intensidade, mas com maior proporção relativa de U livre, distribuem-se pelo corpo do referido horizonte, sob a influência da zona de oscilação do nível freático, condicionando ambientes menos oxidantes e menos ácidos em profundidade. No topo do horizonte B as anomalias são devidas, sobretudo, à acumulação de minerais resistatos contendo U e Th e compostos insolúveis de Th, e secundariamente U livre fixado por sesquióxidos de Fe e Al e argilas. São anomalias relativas ou residuais, de caráter dominante singenético. Comumente este tipo de concentração de radionuclídeos se caracteriza por baixa razão U_s/U_t e alta Th/U e emissões gama intensas, pois os minerais resistatos em geral encerram concentrações muito elevadas de U e Th.

Contudo, tendo em vista que a maior parte dos radionuclídeos está aprisionada em minerais resistatos, com estruturas cristalinas densas e fechadas, muito pouco contribuem para as taxas de emanção de Rn, o que, no entanto, ocorre a taxas mais elevadas ao longo do corpo do referido horizonte, em níveis mais profundos. Aí as anomalias tem maior proporção de U livre, adsorvido em argilas e colóides de Fe e Al e alguma matéria orgânica, o que resulta em mais Rn emanado, porém a grandes profundidades relativas. Ou seja, a geração de Rn no topo do B latossólico é alta, com uma participação do ^{220}Rn muito significativa, pela elevada presença de isótopos da cadeia do ^{232}Th , porém a emanção é baixa (Tabela 13).

Paisagem Transeluvial (Solos Podzólicos)

Nesta paisagem ocorrem preferencialmente Solos Podzólicos, que exibem horizontes A arenoso e permeável e B textural (Bt) de mais baixa permeabilidade. As diferenças texturais dos horizontes mencionados condicionam um subsistema aquífero freático

suspensão, onde os fluxos são predominantemente laterais, fortemente canalizados através dos horizontes A e E. O ambiente geoquímico é oxidante no horizonte A, gradando para redutor do topo do Bt para as partes mais profundas, onde também os níveis de pH são mais elevados. As anomalias de U e Th (Ra), por serem o retrabalhamento das associadas aos Latossolos, e condicionadas por um ambiente geoquímico mais favorável, exibem teores mais elevados e maior proporção de U livre em relação ao U total. Queluviação, hidromorfismo e e-iluviação durante a podzolização, mobilizam tanto o U associado aos sesquióxidos de Fe e Al quanto o resultante da destruição das argilas, bem como os minerais resistatos contendo U e Th, além de compostos insolúveis de Th. Disto resultam horizontes A e E arenosos completamente depletados nesses radionuclídeos, ou com fracas concentrações se os processos foram parciais, e um horizonte Bt enriquecido.

Na paisagem transeluvial as anomalias mais importantes de U e Th (Ra) situam-se principalmente no topo do horizonte B textural dos Solos Podzólicos. Comumente são as que apresentam as contagens gama mais elevadas em uma vertente, e caracterizam-se por razões U_s/U_t superior e Th/U inferior às mesmas razões nos Latossolos. Isto se explica pelo fato dos Solos Podzólicos, no ambiente climático considerado, terem se desenvolvido a partir de Latossolos pré-existentes, aos quais estão associados. Do processo de podzolização resultam anomalias com teores mais elevados em U_t , U_s , além do Th, que pode ser mobilizado em ambiente podzolizante. Anomalias de menor intensidade ocorrem disseminadas pelo corpo do referido horizonte. Por constituírem uma segunda geração de radioanomalias é natural esperar que a proporção de U adsorvido às superfícies das fases hospedeiras, em relação ao U contido em resistatos, seja maior que nas associadas aos Latossolos. Assim, no topo do Bt dos Solos Podzólicos a geração de Rn é muito alta e a emanção é alta (Tabela 13).

Paisagem Supraqual / Aqual (Solos Hidromórficos)

Tanto a paisagem eluvial como a transeluvial, durante sua história evolutiva, contribuem para o enriquecimento em U da paisagem supraqual através de fluxos laterais de soluções. Esta paisagem, e a aqual associada, situam-se nas partes mais deprimidas e com declividades muito baixas das vertentes, onde dominam solos de caráter hidromórfico. Nesta parte das vertentes a zona de aeração do aquífero é pouco espessa ou ausente, resultando em um nível freático aflorante ou a pequena profundidade. Os fluxos aquosos são predominantemente laterais na época das chuvas e verticais ascendentes, pela conjugação dos processos de capilaridade e evaporação, durante a época de estiagem. A zona de

transição entre esta paisagem e a anterior é o local onde o sistema aquífero freático principal da vertente e o subsistema suspenso estão interrelacionados. O ambiente geoquímico é redutor condicionado pela existência abundante de matéria orgânica (MO) e saturação freqüente dos solos, e o pH é em geral neutro a alcalino, podendo, no entanto, ser localmente muito ácido, influenciado pela presença de ácidos húmicos. Além da MO ocorrem fases argilosas e compostos de Fe com alta capacidade de troca, conjunto de fatores favoráveis à fixação do U, que chega em solução oriundo das paisagens de montante.

As anomalias radiométricas nos Solos Hidromórficos da paisagem supraqual são de caráter epigenético, predominantemente uraníferas, caracterizando-se por alta razão U_s/U_t , tendendo à unidade, e baixa Th/U. Em geral estão associadas aos horizontes A0 e A1 dos solos ricos em MO, pois o horizonte B comumente está ausente ou é pouco desenvolvido neste ambiente. A maior parte do U encontra-se adsorvido à superfície das fases hospedeiras, principalmente MO e argilas. Embora este tipo de anomalias não se caracterize por apresentar altas contagens gama, contribui significativamente para a taxa de emissão de Rn, tendo em vista a natureza de hospedagem do U. Nesta paisagem, associada aos solos hidromórficos, a geração é média e a emissão é muito alta (Tabela 13).

TABELA 13 – ESTIMATIVA DOS NÍVEIS RELATIVOS DE GERAÇÃO E EMANAÇÃO DE Rn EM SOLOS RESIDUAIS TROPICAIS ÚMIDOS EM DIFERENTES PAISAGENS DE UMA VERTENTE SOBRE ROCHA GRANÍTICA COM U E Th (Ra), CONSIDERANDO-SE O INTERVALO DE UMIDADE DOS SOLOS PRÓXIMO À CAPACIDADE DE CAMPO

PAISAGENS (Tipos de Solos)	GERAÇÃO DE RADÔNIO		EMANAÇÃO DE RADÔNIO	
	Intensidade	Controles Principais	Intensidade	Controles Principais
Eluvial (Latossolos)	Alta	Concentração de resistatos com U e Th (Ra) e de Th (Ra)	Baixa	U e Th (Ra) em estruturas minerais densas e fechadas
Transeluvial (Solos Podzólicos)	Muito alta	Retrabalhamento e reconcentração de U e Th (Ra) e de Th (Ra)	Alta	Parte do U e Th (Ra) adsorvido em superfícies
Supraqual (S. Hidromórficos)	Média	Concentração de U (Ra)	Muito Alta	U (Ra) adsorvido em superfícies

FONTE: O autor

4.4.2 Intervalos de Umidade, Migração e Exalação de Radônio nas Paisagens

Os gases contidos nos poros de um solo são uma mistura de gases atmosféricos e os originados nas rochas, regolito e solos, entre os quais o radônio. A partir das

radioanomalias em materiais pedogenéticos, o movimento do radônio gerado próximo à superfície é governado pela sua própria difusão / convecção e pelos movimentos da água do aquífero freático por porosidade. Além do teor e modo de distribuição do Ra nos materiais hospedeiros, a superfície específica, a permoporosidade e os níveis de umidade dos solos, são fundamentais para o poder de emanação, migração e exalação de Rn. Quanto menor for o tamanho das partículas, maior será o poder de emanação desse solo. A umidade não pode ser excessiva, pois saturando totalmente o solo não será possível a migração de radônio, nem pode ser insuficiente a ponto de diminuir drasticamente a taxa de emanação, condições que se refletirão negativamente na taxa de exalação.

Assim, os níveis de umidade dos solos, controlados pelo regime hídrico do aquífero freático, como vimos, são de extrema importância no ciclo superficial do Rn. Solos bem drenados, como os Latossolos e em parte os Solos Podzólicos, em geral contêm água nos pequenos poros e água e ar, em diferentes proporções, nos grandes poros. O transporte do radônio em solução aquosa através da permoporosidade dos solos pode ser muito mais rápido do que o movimento por difusão ou convecção. Caso tais movimentos estejam restritos ao aquífero freático, a distribuição do radônio pela água é governada quase inteiramente pela natureza e intensidade dos processos e fatores hidrogeológicos. Então, as condições climáticas e hidrogeológicas locais, e suas variações sazonais, tem papel preponderante na distribuição do radônio nas diferentes zonas do aquífero, relacionadas a cada uma das paisagens elementares diferenciadas em uma vertente.

Paisagem Eluvial (Latossolos)

A circulação de fluídos nos Latossolos da paisagem eluvial pode ocorrer através dos horizontes A, B e C com permeabilidades relativas bem desenvolvidas. Permitem uma boa drenagem e circulação de fluídos, e os fluxos se processam, principalmente, através de percolação vertical descendente até atingirem a superfície freática. A partir daí o fluxo é lateral no sentido das paisagens a jusante, em posições menos elevadas da vertente. Ressalte-se que fora da época das chuvas, na maioria das vezes o nível de umidade destes solos situa-se próximo à sua capacidade de campo, não havendo percolação. Neste caso a migração do Rn ocorre por difusão / convecção (Tabela 14).

Paisagem Transeluvial (Solos Podzólicos)

Nos Solos Podzólicos da paisagem transeluvial, o horizonte B textural é pouco permeável, e o fluxo de fluídos é predominantemente lateral através dos horizontes A, E e C, nos sentidos das paisagens supraqual e aqual. Nos horizontes A e E arenosos, que ocorrem na parte superficial das encostas da paisagem transeluvial, a percolação só é possível em épocas de “águas altas”. Em épocas em que os níveis de umidade são inferiores à capacidade de campo, a movimentação de fluídos só é possível por difusão e/ou convecção.

Na paisagem transeluvial, a presença na zona de aeração do aquífero de um perfil de solos com horizonte B textural bem desenvolvido impede o transporte vertical ascendente do radônio gerado abaixo desse horizonte. Neste caso o gás é impelido a mover-se lateralmente através do regolito. Mas, tendo em vista que as principais anomalias radioativas, fontes de radônio, situam-se no topo desse horizonte, a maior parte do radônio aí gerado atinge a atmosfera por difusão e/ou convecção através do horizonte A arenoso (Tabela 14).

Paisagem Supraqual/Aqual (Solos Hidromórficos)

Tendo em vista que os Solos Hidromórficos em geral são muito argilosos e associam-se com áreas planas e estagnadas, o principal movimento de fluídos provenientes do sistema freático, além do processo de difusão, inicia-se com a época de estiagem do clima. Ocorre através da combinação dos mecanismos de capilaridade e evaporação (Tabela 14), resultando em fluxos verticais ascendentes. Por outro lado, se os solos forem expansivos (esmectitas), freqüentemente secam e se quebram durante o período de estiagem, gerando fissuras relativamente profundas que aumentam a permeabilidade dos solos, constituindo caminhos adicionais para a migração de radônio.

Como base nos mecanismos apresentados, na Tabela 14 é possível simular as principais variações que podem ocorrer na emanção, migração e exalação de Rn, numa vertente caracterizada pela associação Latossolo - Solo Podzólico - Solo Hidromórfico, levando em conta as diferentes variações nas permoporosidades dos diferentes horizontes desses solos e a geometria do aquífero freático por porosidade secundária, fazendo variar os níveis de umidade dos solos, desde a saturação até a secura. Nesta simulação, a taxa de geração de radônio é considerada constante em cada uma das posições da vertente.

TABELA 14 – INFLUÊNCIA DO REGIME HÍDRICO DO AQUÍFERO FREÁTICO POR POROSIDADE SECUNDÁRIA NOS PROCESSOS DE EMANAÇÃO, MIGRAÇÃO E EXALAÇÃO DE Rn. APLICAÇÃO A PAISAGENS TROPICAIS ÚMIDAS SOBRE ROCHA GRANÍTICA, CARACTERIZADAS PELA ASSOCIAÇÃO LATOSSOLO – SOLO PODZÓLICO

NÍVEIS DE UMIDADE	EMANAÇÃO DE RADÔNIO	MIGRAÇÃO DE RADÔNIO			EXALAÇÃO DE RADÔNIO
		Percolação	Capilaridade e Evaporação	Difusão e Convecção	
Solo próximo à saturação	Máxima	Intensa	Mínima	Mínima	Mínima
Controles Principais	Condicionada pela saturação de todos os poros do solo	Migração de Rn através de águas percolantes	Processos muito pouco efetivos durante o período chuvoso	Grandes e pequenos poros impermeáveis ao fluxo de ar e Rn	Condicionada pela baixa taxa de migração
Solo na capacidade de campo	Intensa	Mínima	Intensa	Intensa	Intensa
Controles Principais	Atenuada pela ausência de umidade nos grandes poros	Não há transporte de Rn por águas percolantes	Processos muito efetivos durante a fase inicial da estiagem	Grandes poros permeáveis ao fluxo de ar e Rn	Condicionada pela emanação e migração intensas
Solo próximo à secura	Mínima	Nula	Mínima	Máxima	Mínima
Controles Principais	Devido à ausência de umidade nos grandes e pequenos poros	Não há transporte de Rn por águas percolantes	Processos pouco efetivos durante a fase aguda da estiagem	Grandes e pequenos poros permeáveis ao fluxo de ar e Rn	Condicionada por níveis mínimos de emanação

FONTE: O autor

Influência da Umidade dos Solos na Exalação de Rn

Da tabela 14 depreende-se que em intervalos de umidade próximo à saturação, a exalação a níveis mínimos deve ocorrer, sobretudo, através da encosta podzolizada da paisagem transeluvial, controlada principalmente pela drenagem da água de percolação, uma vez que, nesse regime, o aquífero tem a superfície freática elevada e suportada pelo horizonte B textural dos Solos Podzólicos, sendo a encosta arenosa o local preferencial de drenagem do sistema. Adicione-se a isso, que a percolação de águas através do sistema vertente capta radônio em diferentes horizontes das paisagens eluvial e transeluvial e o transportam, principalmente através do horizonte C, até a paisagem supraqual.

Quando os solos se encontram em níveis de umidade próximos à capacidade de campo, a exalação ocorre em níveis intensos na encosta e na zona dos Solos Hidromórficos, paisagens transeluvial e supraqual, respectivamente. No primeiro caso a migração é condicionada principalmente pela associação dos processos de difusão e convecção através dos horizontes A e E arenosos, que são permeáveis. No segundo caso, o fator predominante na migração do Rn é a conjugação dos fenômenos de capilaridade e

evaporação que, na paisagem supraqual e durante o período de estiagem, são muito efetivos e predominam.

Em solos próximos à secura, a emissão sendo mínima, também a exalação o será, em qualquer paisagem. Neste caso a migração do Rn é fundamentalmente controlada por difusão e convecção através dos grandes e pequenos poros, e a exalação deve se manifestar tanto na encosta, paisagem transeluvial, como na planície, paisagem supraqual. Na paisagem eluvial, a grande espessura do perfil de solos da zona de aeração do aquífero e a predominância de resistatos como hospedeiros de U e Th (Ra), condicionam baixos níveis de emissão dos horizontes radioanômalos (Tab. 13, p. 148). Em tal situação, a exalação de radônio, em todos os intervalos de umidade, deverá ser mínima.

4.4.3 Síntese Conclusiva

Medidas experimentais do coeficiente de emissão de rochas e solos, feitas por vários pesquisadores, mostraram que estes podem variar de 0,05 a 0,7 para solos (NAZAROFF et al., 1988b). Verificou-se que os coeficientes medidos são consideravelmente maiores do que os calculados a partir de modelos teóricos. A principal razão para as diferenças observadas entre os coeficientes medidos e os calculados, decorre do fato de que nos materiais pedogenéticos o Ra está concentrado preferencialmente na superfície das fases hospedeiras. Então, as taxas mais elevadas de emissão de Rn devem ocorrer onde as fases pedogenéticas de granulometria fina e de natureza coloidal são mais abundantes, tendo em vista a significativa fixação de U e Ra por essas fases.

Em solos bem drenados, típicos das paisagens eluvial e transeluvial, os valores para Rn são normalmente baixos no horizonte A e sua transição para o B, sendo os valores mais altos no topo do horizonte B. Os baixos valores de emissão para Rn naquele horizonte são provavelmente devido à carência de argilas com grande capacidade de sorção e óxidos de Fe contendo U e Th (Ra).

De acordo com MEGUMI e MAMURO (1974), nas paisagens a emissão do ^{220}Rn é geralmente menor que a do ^{222}Rn , não existindo significante correlação entre os dois. A meia - vida do ^{220}Rn é muito curta, 55 segundos, significando que a maior parcela do ^{220}Rn deve ser gerada muito próximo ou nos próprios locais de ocorrência do ^{232}Th nos solos. O isótopo de maior vida na cadeia desde o ^{232}Th até o ^{220}Rn é o ^{228}Ra , com tempo de meia - vida de 5,7 anos, muito curto do ponto de vista da escala geológica de tempo. Desta maneira o conteúdo do ^{232}Th de um solo é um bom indicador da taxa de produção do ^{220}Rn , o que difere significativamente do ^{222}Rn e seus precursores na cadeia do ^{238}U , muito

susceptíveis à lixiviação e migração geoquímicas, como visto no Capítulo 3. E, devido a isso, as associações com diferentes tipos de solos não seguem os mesmos padrões.

Em solos ricos em matéria orgânica (MO), a fase orgânica trocável dos solos em geral é a que fornece a parcela mais importante de Rn para o gás do solo, neste caso ^{222}Rn , vindo em seguida a fração silte - argila. Medidas de emissão de ^{222}Rn em amostras que tiveram MO e óxidos de Fe extraídos mostraram que a quase totalidade da emissão residual provinha das frações silte mais argila. A notável associação entre U e MO explica, em parte, o alto valor de emissão de ^{222}Rn em ambientes ricos em MO, situação típica da paisagem supraqual.

Assim, tendo em vista o apresentado, uma estimativa dos níveis de geração e emissão de Rn nos diferentes tipos de solos característicos das diferentes paisagens tropicais úmidas de uma vertente, são apresentados e sintetizados na Tabela 13, p. 148. Tendo em vista tal conjunto de fatores, e considerando o nível de umidade de todos os solos próximo as suas capacidades de campo, a geração de radônio é alta na paisagem eluvial, muito alta na transeluvial e média na supraqual. Por outro lado, a emissão é baixa na paisagem eluvial, alta na transeluvial e muito alta na supraqual.

Além dos fatos apresentados, o teor de umidade existente nos poros dos solos é uma condicionante muito importante da emissão e migração do radônio, refletindo-se na sua exalação. Como já discutido, a umidade no ar dos poros depende da sazonalidade do clima, que afeta diretamente o regime hídrico do aquífero freático por porosidade secundária. A água capilar aumenta a fração de emissão de radônio por absorver a sua energia de recuo. Entretanto, não interfere na resistência do solo ao fluxo de ar, uma vez que este se processa principalmente através dos grandes poros. Por outro lado, quando o solo está saturado o coeficiente de emissão de radônio é maior, porém a sua difusibilidade através da permeabilidade do solo é reduzida. Quando seco a difusão é facilitada, porém ocorre uma grande redução no coeficiente de emissão. Como a maior parte do transporte do radônio pela água se processa através de grandes poros, este é nulo quando o solo está seco e muito reduzido quando a água ocupa apenas os pequenos poros. Quando os espaços dos poros dos solos e regolito estiverem completamente preenchidos por água, como ocorre abaixo do nível freático, e houver fluxo lateral, o movimento do radônio processa-se em solução aquosa. Acima do nível freático, na zona de aeração, condição normal na paisagem eluvial e transeluvial, o movimento se processa por uma combinação de difusão / convecção e transporte pela água no sentido vertical e lateral descendente, no sentido da paisagem supraqual, onde a "mistura" será submetida aos processos de capilaridade/evaporação. Desta maneira, de modo geral, o radônio libera-se do solo

combinando emanação, difusão, convecção e transporte, fatores estes que podem variar com a posição nas paisagens e em resposta às mudanças climáticas, em escala sazonal, diária ou mesmo horária.

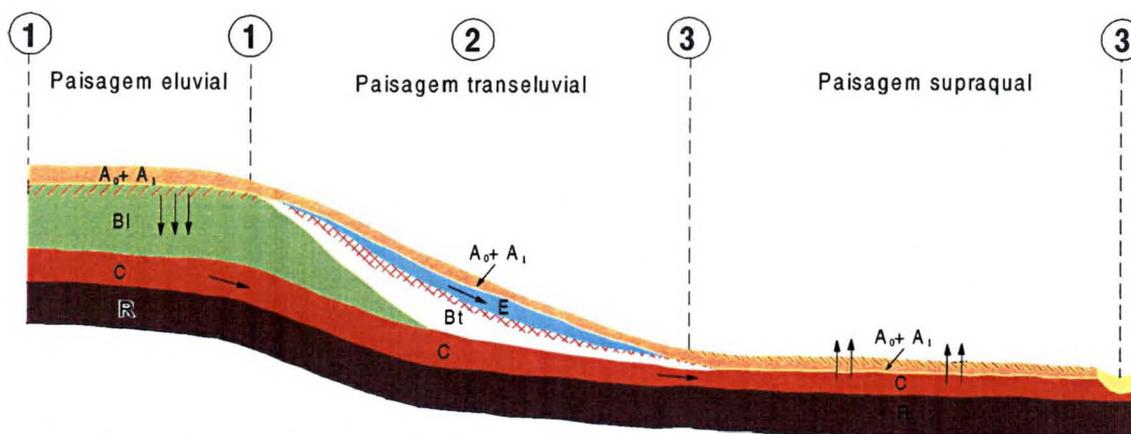
De modo geral, tendo em vista as considerações já feitas, as possibilidades de maior exalação de radônio, estão em áreas das paisagens supraqual e transeluvial. Tal favorabilidade decorre das características físicas dos níveis radioanômalo, aliadas aos padrões e intensidades das anomalias de U e Th (Ra) existentes nas paisagens mencionadas, bem como às relações espaciais dos referidos níveis com a superfície freática e topográfica. As manifestações de Rn nas paisagens supraqual e transeluvial são devidas, principalmente, ao isótopo ^{222}Rn . Em áreas da paisagem eluvial, mesmo com manifestações superficiais de anomalias gama intensas, devido ao acúmulo de minerais resistentes contendo altas concentrações de U e Th, e a compostos insolúveis de Th, os fluxos de radônio não são muito significativos. A grande espessura de solos, muitas vezes argilosos, e a profundidade relativamente alta da zona de oscilação do nível freático, onde devem ocorrer radioanomalias com maior proporção de U adsorvido, e a pequena taxa de emanação dos minerais resistentes com U e Th, constituem-se em fatores capazes de condicionar a baixa exalação do ^{222}Rn e ^{220}Rn . É, no entanto, a região onde o ^{220}Rn deve apresentar as manifestações mais significativas, tendo em vista a concentração de tório, seu precursor primordial, nos níveis superiores do perfil (topo do B). Ainda assim, devido ao seu diminuto tempo de meia vida, devem ser esperados fracos fluxos deste radioisótopo nessa paisagem.

Quanto à contaminação das águas freáticas, as possibilidades são as mesmas em qualquer uma das paisagens analisadas. Ou seja, águas freáticas em áreas graníticas fortemente intemperizadas tem grande probabilidade de estar contaminadas por U, Ra e Rn, independentemente do tipo de paisagem onde se encontrem.

Face ao exposto, numa vertente modelada em clima tropical úmido sobre rocha granítica contendo os radionuclídeos U e Th, e revestida de solos residuais, a paisagem com a maior probabilidade de ocorrência dos fluxos mais elevados de Rn é a paisagem supraqual, e a com menor probabilidade a paisagem eluvial. A paisagem transeluvial constitui-se na transição entre as paisagens mencionadas. Assim, atribuindo-se nível de risco 1 à paisagem eluvial, com relação à intensidade dos fluxos de Rn, à parte mediana da paisagem transeluvial deve ser atribuído 2 e à paisagem supraqual nível 3 (Figura 29).

No entanto, considerando-se a latolização e podzolização como as principais fases pedogenéticas condicionantes da mobilização de U entre as paisagens, é durante a latolização que ocorre a principal contribuição de soluções uraníferas para a paisagem

FIGURA 29 – RELAÇÕES ENTRE SISTEMA DE TRANSFORMAÇÃO LATOSSOLO – SOLO PODZÓLICO, PAISAGENS GEOQUÍMICAS, PADRÕES DE RADIOANOMALIAS E INTENSIDADES RELATIVAS DE EXALAÇÃO DE R_n , SOBRE ROCHA GRANÍTICA EM AMBIENTE TROPICAL ÚMIDO



PADRÕES DE ANOMALIAS DE U e Th (R_a) E PAISAGENS GEOQUÍMICAS



Anomalias em Latossolo na paisagem eluvial



Anomalias em Solo Podzólico na paisagem transeluvial



Anomalias em Solo Hidromórfico na paisagem supraqual



NÍVEIS CRESCENTES DE EXALAÇÃO DE R_n



Aluviões recentes

A_0 , A_1 , E, Bt, C, R Horizontes dos perfis de solos



Circulação da água

Obs.: Sem escala

FONTE: O autor

supraqual, onde o U é fixado principalmente pela matéria orgânica e argilas dos solos hidromórficos. Isto porque os processos desta fase, mais antiga que 1 Ma, atuaram sobre áreas mais extensas e por um período maior de tempo, quando comparados com os da podzolização. Estes, com idades entre 100.000 e 500.000 anos, embora tenham retrabalhado as pré-concentrações de radionuclídeos dos Latossolos e condicionado processos de lixiviação mais intensos, incluindo e-iluviação de argilas, óxidos e resistatos contendo U e Th, no entanto afetaram áreas bem mais restritas e por períodos de tempo menores. Por outro lado, os ambientes geoquímicos condicionantes e aqueles desenvolvidos durante a podzolização são de expressão areal muito restrita e confinados à

paisagem transeluvial. Por todos esses fatos, os radionuclídeos remobilizados do horizonte B latossólico, seja em solução iônica, no caso do U, ou por e-iluviação de compostos de Th e resistatos contendo U e Th, sofreram curtos deslocamentos, predominantemente do horizonte E para o B textural, não se configurando diferenciação geoquímica apreciável. Por isso, do ponto de vista do equilíbrio radioativo, os fatos apresentados permitem considerar o “sistema podzolizado”, nos limites da paisagem transeluvial, como um sistema fechado. Em tal situação não há desequilíbrio radioativo considerável entre os radionuclídeos da série do ^{238}U a ser considerado nesta paisagem. A parcela de U em solução que ultrapassa os limites da referida paisagem, tendo em vista a sua configuração morfológica (vide Figura 10, p. 56), é fortemente canalizada através dos horizontes E e A dos Solos Podzólicos para a atual rede de drenagem da paisagem supraqual, onde pode ser fixada, em todo ou em parte, pelos sedimentos de fundo e aqueles nas adjacências da rede de drenagem. Assim, o U fixado nos Solos Hidromórficos durante a latolização, devido aos seu tempo de residência superior a 1 Ma, pode ser considerado aproximadamente em equilíbrio radioativo secular (vide Anexo 02). Já os membros da cadeia de decaimento radioativo do U depositado durante a podzolização, entre 100.000 a 500.000 anos, ainda não atingiram o referido equilíbrio. A parcela de ^{226}Ra gerado por decaimento após 500.000 anos da deposição do ^{238}U , é aproximadamente 60,46% da quantidade que existiria no equilíbrio radioativo secular. Similarmente para 100.000 anos teríamos apenas 7% (vide Anexo 02). Nos locais em que se verifica o desequilíbrio radioativo mencionado, a geração e, por conseguinte a exalação de Rn, será afetada na mesma proporção, o que localmente modifica a hierarquização dos níveis de risco apresentados.

Finalizando, os fatos e conceitos até aqui descritos permitiram entender os mecanismos que condicionam a existência de diferentes taxas de exalação de radônio em pontos específicos de paisagens sobre uma mesma rocha. Isto, aliado a outros fatores, pode explicar os altos níveis de Rn no interior de residências, mesmo aquelas situadas em locais onde o substrato geológico é constituído por rochas com teores normais em radionuclídeos. Convém ressaltar, entretanto, tendo em vista os produtos obtidos nesta pesquisa, que isto é particularmente verdadeiro em regiões de clima quente e úmido.

5 RESULTADOS E DISCUSSÃO

5.1 RESULTADOS

Fluxos intensos de radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn) em paisagens tropicais úmidas desenvolvidas em vertentes sobre rochas graníticas, mesmo as com teores normais e homoganeamente distribuídos de U e Th (Ra), podem ocorrer como resultado da interação do conjunto de elementos constituintes dessas paisagens, e elementos do clima atual, sobretudo o seu regime hídrico. A configuração e organização das referidas paisagens, é o resultado da atuação dos processos supergênicos de alteração durante os tempos geológico e pedológico. Entre outros produtos, estão perfis de alteração com horizontes de solo enriquecidos em U e Th (Ra) e o aquífero freático por porosidade secundária, sistema através do qual o radônio alcança a atmosfera. Esses são elementos fundamentais que definem e delimitam as intensidades dos processos radioativos de geração, emissão e migração, controlando a exalação de radônio nas paisagens consideradas. Estas taxas são significativamente mais elevadas comparativamente às mesmas taxas na rocha inalterada, o que decorre das transformações supergênicas mencionadas.

Solos e Geoformas

A noção de paisagens elementares em uma vertente é de fundamental importância na análise ambiental nos trópicos úmidos. Com base nos conceitos de POLYNOV (1937, 1951) e de GLAZOVSKAYA (1961), citados por FORTESCUE (1980), desde o divisor de águas de uma unidade hidrográfica até o eixo do seu coletor principal, podem ser caracterizadas as paisagens **eluvial, transeluvial, supraqual e aqual**. Independentemente dos seus atributos geoquímicos, a cada uma destas paisagens estão associados diferentes tipos de modelado, classes e espessuras de solos e suas permoporosidades, diferentes segmentos do aquífero freático por porosidade secundária, respectivas configurações e níveis de umidade, e anomalias de U e Th (Ra) com diferentes intensidades e características.

No ambiente climático considerado, é durante a fase pedogenética do intemperismo químico que as paisagens de uma vertente atingem sua máxima evolução, como consequência da atuação dos processos supergênicos. É nessa fase que os principais elementos geradores e controladores do ciclo superficial do Rn atingem sua máxima definição, organização e intensidade. Neste ambiente, isto é particularmente verdadeiro para

coberturas residuais espessas e diferenciadas sobre rochas graníticas. Sob tais condições, as mencionadas coberturas são representadas principalmente pela associação Latossolo - Solo Podzólico, o que caracteriza uma fase pedogenética mais recente, transformando os Latossolos em Solos Podzólicos, constituindo um sistema pedológico de transformação no conceito de BOULET et al. (1993). Juntos, Latossolos e Solos Podzólicos constituem mais de 80% da ocorrência de todas as coberturas residuais brasileiras. Em tal sistema, os Latossolos ocorrem nas superfícies mais estáveis, partes mais elevadas das vertentes com declividades entre 0 e 8%, enquanto os Solos Podzólicos dominam nas altitudes intermediárias, em superfícies mais jovens onde predominam declividades entre 8 e 45%. Embora vinculados ao sistema vertente como um todo, os produtos decorrentes da podzolização estão contidos, ***grosso modo***, nos limites da paisagem transeluvial. Nesta paisagem verifica-se um forte controle dos parâmetros locais do meio-físico sobre a configuração geométrica e distribuição espacial dos perfis de solos e suas propriedades físicas, específicos para a unidade de drenagem onde ocorrem (Figuras 09 e 10, p. 54 e 56).

Como praticamente inexitem datações absolutas das fases pedogenéticas mencionadas, com base em extrapolações e em evidências indiretas, apresentadas por inúmeros autores, nesta pesquisa, para todos os efeitos, considera-se uma idade mínima de aproximadamente um milhão de anos (1 Ma) para os Latossolos, desde o momento em que as principais propriedades pedológicas de um perfil bem desenvolvido, tenham atingido o equilíbrio dinâmico. Similarmente, entre 100.000 e 500.000 anos para os Solos Podzólicos. Estas referências cronológicas são básicas para se avaliar o grau de desequilíbrio radioativo existente entre os diferentes membros da cadeia de decaimento radioativo do ^{238}U , em cada uma das paisagens analisadas, considerando-se essas fases pedológicas como as principais condicionantes da migração do U durante a evolução das paisagens.

Aqüífero Freático por Porosidade Secundária

Sob um mesmo tipo climático, uma mesma rocha em várias posições na vertente, com diferentes altitudes, relevos e declividades, resulta em solos diversos, ou seja, as propriedades do solo, principalmente sua permoporosidade, variam lateralmente em função da sua posição na topografia. As declividades afetam o escoamento superficial refletindo-se na formação dos solos e no seus níveis de umidade.

O aquífero freático por porosidade secundária existente na parte superficial do sistema vertente, ausente no início da alteração supergênica, atinge sua máxima evolução durante a fase pedogenética do intemperismo químico. Sua configuração externa, organização e propriedades físicas internas são as mesmas dos elementos das paisagens onde ocorre. Sua zona de aeração é mais espessa e permeável na paisagem eluvial, representada principalmente pelo horizonte B dos Latossolos, tornando-se mais delgada, ou mesmo desaparecendo, na paisagem supraqual, onde o nível freático aflora ou está muito próximo da superfície. Na paisagem transeluvial, a podzolização dos Latossolos leva ao desenvolvimento de um subsistema aquífero suspenso, com elevado nível de independência do aquífero principal. Esses aquíferos apresentam fluxos e regimes hídricos diferentes, principalmente durante as épocas de estiagem, podendo, no entanto, operar em conjunto durante a estação das chuvas. O gradiente hidráulico elevado do aquífero suspenso, suportado por um horizonte B inclinado e muito pouco permeável, condiciona fluxos laterais fortemente canalizados através dos horizontes A e E, essencialmente arenosos e com boa permeabilidade. Excetuando-se o regime das precipitações, que é uma característica do macroambiente climático, os demais parâmetros do aquífero são específicos para as diferentes paisagens do “sistema vertente”, ressaltando a importância relativa de cada um dos vários processos hidrogeológicos no ciclo do Rn.

Ambiente Geoquímico e Natureza das Concentrações de U e Th (Ra)

O tipo de rocha e a posição no relevo, quando se trabalha na escala das vertentes, são os principais fatores condicionantes do *ambiente geoquímico superficial*. As características de tal ambiente são de fundamental importância quando se quer entender a redistribuição na paisagem de elementos-traço metálicos a partir da rocha original, inclusive o U e o Th (Ra), quando esta é submetida a importantes alterações pedogenéticas. A mobilidade dos metais - traço a nível do cristal pode ser deduzida de aspectos teóricos, mas a sua efetiva mobilidade nas diferentes paisagens depende das propriedades do ambiente geoquímico estabelecido em cada uma delas, como consequência da atuação dos processos supergênicos, levando à formação de radioanomalias de diferentes naturezas, intensidades e características.

A abundância absoluta de U e Th (Ra) de uma rocha intrusiva varia de acordo com sua diferenciação magmática, numa relação direta com o conteúdo de sílica e alcalis. Em granitos, litologias enfocadas nesta pesquisa, é da ordem de 4 ppm de U e 12 a 16 ppm de Th, em geral distribuídos por diferentes fases minerais, sendo a razão Th/U ao redor de 4. A

distribuição de U em granitos pode ser classificada (TIEH et al., 1980, SPEER et al., 1981, citado por GUTHRIE; KLEEMAN, 1986) como U **background**, U resistato, e U intersticial. O U **background** associa-se aos principais minerais formadores de rochas, e sua proporção no total da rocha é mínima, ocorrendo o mesmo com o Th. A contribuição mais importante é do U resistato, contido em minerais acessórios, juntamente com o Th. Em muitos granitos, minerais acessórios, em grande parte resistentes ao intemperismo, como zircão, monazita, esfero, allanita etc., contêm mais de 50 %, podendo atingir mais de 85 % de todo o U (DICKSON; SCOTT, 1997), assim como contêm a maior parte do Th (Tabela 6, p. 69). Já o U intersticial associa-se às fases intersticiais nos últimos estágios da alteração deutérica, e também no início do intemperismo. Sua participação é variável, porém mais significativa que a do U **background**.

A constituição de radioanomalias nos materiais de alteração, inicialmente depende do tipo de rocha, das características das fases hospedeiras do U e do Th (Ra) e do vigor do relevo exibido pelo corpo rochoso sobre o qual se desenvolverão as vertentes. Porém, a intensidade e características geoquímicas finais dessas anomalias dependem do tipo e intensidade da evolução morfopedogenética sofrida pelas paisagens, comandadas pela evolução do ambiente geoquímico relacionado. Tal evolução é caracterizada por diferentes arranjos, em cada paisagem elementar, dos parâmetros físicos e químicos do ambiente, que variam espacialmente segundo uma mesma tendência, tanto no sentido vertical descendente dos perfis de alteração como na horizontal, das partes mais elevadas para as mais deprimidas das vertentes.

Após análise, utilizando-se os conceitos geoquímicos de paisagens elementares associados aos de abundância, migração, fluxos, gradientes, barreiras, história geoquímica e classificação geoquímica das paisagens, verificou-se que durante a evolução das paisagens desenvolvidas sobre um corpo granítico contendo U e Th (Ra), o Th tende a concentrar-se principalmente na parte superior da paisagem eluvial e o U móvel é mobilizado para a solução do solo, ficando, no entanto, sujeito às condições de Eh, pH, presença ou ausência de elementos tipomórficos e dos fluxos de água subterrânea, resultando em diferentes concentrações, ou abundâncias, em diferentes materiais das diferentes paisagens. Ou seja, durante o intemperismo químico / pedogênese, os processos geoquímicos superficiais fazem com que uma parte do U seja liberada e fixada, principalmente no horizonte B latossólico do perfil de alteração da paisagem eluvial, juntamente com resistatos contendo U e Th e compostos insolúveis de Th, onde ocorrerá um enriquecimento relativo, controlado, principalmente, pelos sesquióxidos de Fe e Al, e argilas, comuns nesta paisagem (ADAMS; RICHARDSON, 1960; SAMAMA, 1971). Nesta

posição, acima da zona de oscilação do nível freático, o ambiente geoquímico é oxidante e uma parte do U livre migra como UO_2^{2+} , principal forma de U em águas ácidas, sendo conduzido para níveis mais profundos do perfil de solos, e sob o B textural dos Solos Podzólicos no sentido das paisagens supraqual e aqual, onde pode ser concentrado se o ambiente geoquímico for favorável. Em fase pedogenética posterior, a podzolização dos Latossolos imporá uma nova redistribuição aos radionuclídeos, situação em que o Th também pode ser mobilizado.

Considerando-se que, na zona climática enfocada, o ambiente geoquímico em geral é oxidante acima do nível freático, os principais parâmetros cuja combinação caracteriza o ambiente geoquímico superficial de cada paisagem são o pH, teor de matéria orgânica (% MO), capacidade de troca dos materiais presentes (mE/100 g), composição mecânica (% de areia, silte e argila), sílica livre (% SiO_2), ferro livre (% Fe_2O_3), alumínio livre (% Al_2O_3) e mineralogia de argilas. Dentre todos, uma vez que o Eh é constante, o pH evidencia-se como o elemento mais importante, refletindo-se na diferenciação dos solos e no modelado das paisagens. Ao controlar a mobilidade do Fe, Al, e Si, elementos tipomórficos, indiretamente controla a intensidade e características geoquímicas da anomalias de U e Th (Ra), pois aqueles elementos em grande parte influenciam na mobilidade destes radionuclídeos no ambiente superficial.

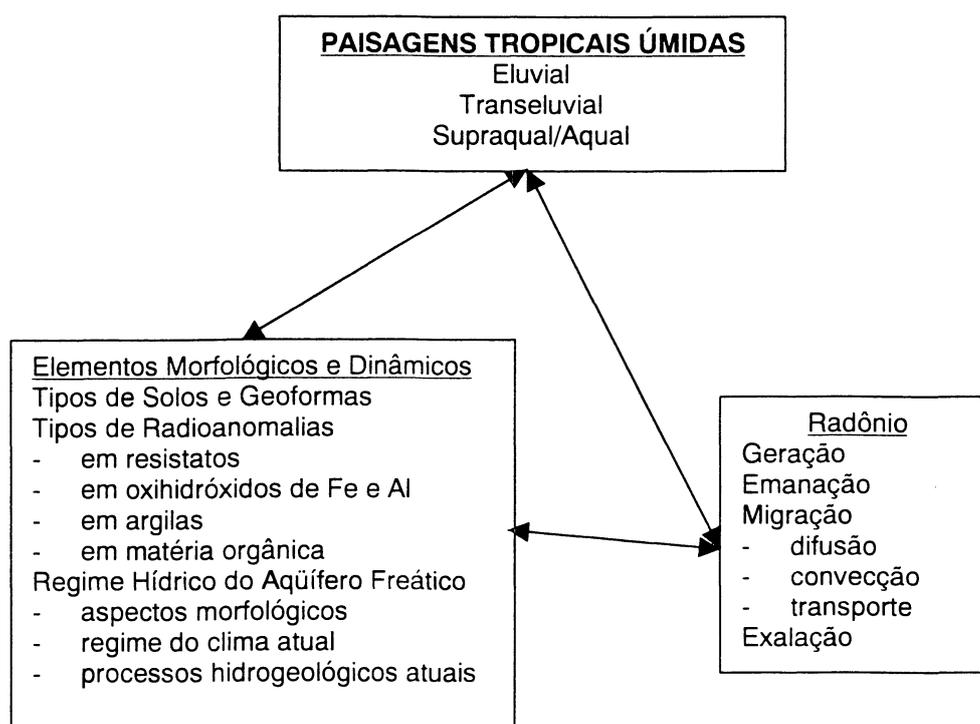
A transição entre diferentes paisagens, por um lado, e entre diferentes horizontes de um perfil de solos, por outro, podem incluir gradientes e/ou barreiras geoquímicas, decorrentes de processos de transformação. O resultado é a precipitação nesses locais de minerais neoformados ou deposição de partículas em suspensão, resultando num "**front**" de acumulação ou iluviação. As acumulações podem ser relativas, pela eliminação de outros acompanhantes e absolutas, pelo preenchimento de vazios. As acumulações relativas em geral ocorrem "**in situ**", com a concentração de elementos pouco móveis no ambiente pedogeoquímico formado, como o Fe e Al, o que é mais comum nos horizontes superiores da paisagem eluvial. Acumulações absolutas ocorrem devido à transferência de elementos de um horizonte superior para um inferior. Quando as transferências são laterais os elementos envolvidos alimentam os aquíferos superficiais, acabando por fixar-se nas porções mais inferiores das encostas, associados às fases argilo-orgânicas, comuns na paisagem supraqual, ou perdidos para a rede de drenagem.

Com base no exposto, as acumulações de U e Th (Ra) nos horizonte B dos Latossolos são de natureza residual. São concentrações relativas devidas à eliminação de outros constituintes. No horizonte B dos Solos Podzólicos, as concentrações são em parte relativas e em parte absolutas, devidas à migração de parte dos radioelementos

mencionados, seja em solução e/ou e-iluviação. No caso do horizonte A dos Solos Hidromórficos a maior parte das concentrações são absolutas, predominantemente uraníferas, e são devidas às migrações de soluções provenientes das outras paisagens. Considerando-se as principais radioanomalias no topo do horizonte B dos Latossolos, Solos Podzólicos e A dos Solos Hidromórficos, respectivamente nas paisagens eluvial, transeluvial e supraqual, estas podem ser caracterizadas pelas razões Th/U e Us/Ut. Na primeira situação as radioanomalias devem apresentar razões Th/U mais elevadas e Us/Ut menos elevadas das três situações relatadas. No outro extremo, nos Solos Hidromórficos, as razões Th/U em geral são muito baixas, e Us/Ut devem ser as mais elevadas, tendendo à unidade. Na paisagem transeluvial, no topo do horizonte B dos Solos Podzólicos, devem ser esperados resultados intermediários.

Assim, a atuação concorrente dos diferentes processos supergênicos culmina com a organização da paisagem em vales e vertentes, às quais se associam diferentes paisagens elementares, “sistema vertente”, evidenciado por uma série de características. Este conjunto organizado de fatores, suas inter-relações (Quadro 1) e a natureza da sua interação com o

QUADRO 1 – ELEMENTOS MORFOLÓGICOS E DINÂMICOS DAS PAISAGENS TROPICAIS ÚMIDAS QUE AFETAM OS PROCESSOS DE GERAÇÃO, EMANAÇÃO, MIGRAÇÃO E EXALAÇÃO DE RADÔNIO



FONTE: O autor

meio externo e os processos radioativos decorrentes da presença nas paisagens dos radionuclídeos das cadeias do ^{238}U e do ^{232}Th , é que efetivamente controla o ciclo superficial do radônio em cada uma dessas paisagens, deixando aos fatores litoestruturais papel coadjuvante.

Essas são as condições básicas que contribuem para a formação de diferentes taxas de exalação de Rn em diferentes paisagens desenvolvidas sobre um mesmo corpo rochoso. Partindo-se dos resultados gerais apresentados, a seguir serão destacados os elementos mais importantes no controle do ciclo superficial do Rn em cada uma das paisagens de uma vertente. Numa visão sistêmica e tridimensional, serão evidenciados dados e relações referentes às paisagens geoquímicas elementares, incluindo as características do aquífero freático por porosidade secundária e seu regime hídrico atual. Ressalte-se que tal tipo de informações, e nos detalhes necessários, só podem ser obtidas através de pesquisas cuja escala espacial seja compatível com a dimensão das vertentes, e com enfoque na escala pedológica do tempo.

Paisagem Eluvial

Nesta paisagem em geral os fluxos aquosos são verticais descendentes, através do horizonte B latossólico com boa permoporosidade, e a zona de aeração do aquífero exibe sua máxima espessura. O ambiente geoquímico acima do nível freático é francamente oxidante e o pH é ácido. As anomalias de U e Th (Ra) que aí ocorrem, em geral são devidas a minerais resistatos contendo U e Th (Ra), compostos insolúveis de Th, e U livre fixado por sesquióxidos de Fe e Al, argilas e pouca matéria orgânica. Caracterizam-se por baixa relação U_s/U_t e alta Th/U. Em geral as principais anomalias estão situadas no topo do horizonte B latossólico, e as de menor intensidade, mas com maior proporção relativa de U livre, em geral fixado por adsorção, distribuem-se pelo corpo do referido horizonte, sob a influência da zona de oscilação do nível freático condicionando ambientes menos oxidantes e menos ácidos e fases argilosas com maior proporção de estruturas 2:1 (argilas tipo montmorillonita) em profundidade. As principais concentrações são relativas, de natureza residual pela eliminação dos outros constituintes.

Paisagem Transeluvial

Aqui os fluxos aquosos subterrâneos mais superficiais são predominantemente laterais, fortemente canalizados através dos horizontes A e E dos Solos Podzólicos. O

ambiente geoquímico é oxidante nos horizontes A e E, gradando para redutor do topo do Bt para as partes mais profundas, onde são maiores os níveis de pH. As anomalias de U e Th (Ra), por serem o retrabalhamento das associadas aos Latossolos, pela podzolização, e agora fixadas em um ambiente geoquímico mais favorável, apesar de qualitativamente exibirem as mesmas fases hospedeiras e compostos orgânicos, apresentam teores mais elevados e maior proporção de U livre em relação ao total. Queluviação de Fe e Al e eluviação-iluviação de material argiloso e carbonoso, conduzem à mobilização tanto do U derivado da destruição dos sesquióxidos de Fe e Al como das argilas, bem como os minerais resíduos contendo U e Th e compostos de Th, resultando num horizonte A e E arenosos depletados nesses radionuclídeos, ou com fracas concentrações se os processos forem parciais, e um horizonte B enriquecido. As anomalias caracterizam-se por U_s/U_t superior e Th/U inferior às mesmas razões nos Latossolos, e o seu posicionamento principal é no topo do horizonte B textural (Bt) e, secundariamente, distribuem-se ao longo deste horizonte. O enriquecimento das anomalias é progressivamente maior no sentido da paisagem supraqual. As concentrações são em parte relativas e em parte absolutas, devidas à migração de parte dos radionuclídeos mencionados, seja em solução ou através dos processos de e-iluviação.

Paisagem Supraqual (Aqual)

Tanto a paisagem eluvial como a transeluvial durante sua história evolutiva contribuem, através de fluxos laterais, para o enriquecimento em U da paisagem supraqual. Esta, e a aqual associada, situa-se nas partes mais deprimidas e com declividades muito baixas ou nulas das vertentes, onde dominam solos de caráter hidromórfico. Nesta área a zona de aeração do aquífero é pouco espessa ou ausente, e o nível freático aflora ou está a pequena profundidade. Os fluxos são predominantemente laterais na época das chuvas e verticais ascendentes, pela conjugação dos processos de capilaridade e evaporação, durante a época de estiagem. A zona de transição desta paisagem para a transeluvial é o local onde o sistema aquífero freático principal da vertente e o subsistema suspenso estão interrelacionados. O ambiente geoquímico é francamente redutor pela saturação freqüente dos solos e existência abundante de matéria orgânica (MO), e o pH é em geral neutro a alcalino, podendo, no entanto, ser ácido influenciado pela presença de ácidos húmicos. Além da MO ocorrem fases argilosas e compostos de Fe com alta capacidade de troca catiônica, conjunto de fatores favoráveis à fixação do U, que chega em solução oriundo das outras paisagens. As anomalias desta paisagem são essencialmente uraníferas, associadas

aos horizontes A0 e A1 e com a maior parte do U fixado por adsorção, resultando numa alta relação U_s/U_t , tendendo à unidade, e baixa de Th/U . As concentrações são de natureza predominantemente absoluta, tendo em vista o aporte de U de outras paisagens.

Radônio nas Paisagens

Geração e Emissão de Rn

A taxa de geração de radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn) depende do nível de concentração dos radionuclídeos U e Th (R_a) no ponto considerado. Como vimos diferentes concentrações desses radionuclídeos estão associadas a cada tipo de solo, o que significa, para cada paisagem, diferentes taxas de geração de Rn. As maiores taxas, pela ordem, devem ocorrer nas paisagens transeluvial, eluvial e supraqual. Por outro lado, a emissão de Rn depende da taxa de geração, do modo de distribuição do R_a nos hospedeiros, se em resistatos ou adsorvido em superfícies, da superfície específica do material hospedeiro (granulometria) e do nível de umidade dos poros do material, este controlado pela sazonalidade do clima e propriedades morfológicas do aquífero (vide Tabela 13, p. 148)

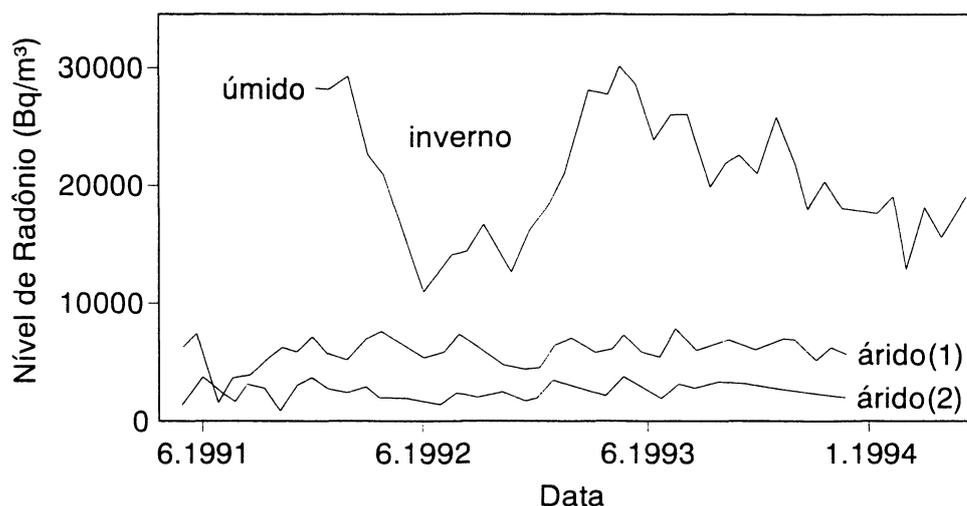
Então, tendo em vista tal conjunto de fatores, e considerando o nível de umidade de todos os solos próximo às suas capacidades de campo, a emissão, em termos relativos, é baixa na paisagem eluvial, alta na transeluvial e muito alta na supraqual. É na paisagem eluvial onde o isótopo ^{220}Rn , gerado na cadeia do ^{232}Th se manifesta com maior intensidade. Por sua vez, o ^{222}Rn tem as suas maiores taxas de emissão na paisagem supraqual, enquanto na paisagem transeluvial os dois radioisótopos tem contribuições significativas.

Migração e Exalação de Rn

No ambiente tropical úmido a água comumente está presente no solo, afetando profundamente o ciclo do Rn em tal meio. Favorece a sua taxa de emissão mas interfere na permeabilidade dos solos ao fluxo de ar, afetando a sua difusibilidade e convecção, que são negligenciáveis em solos saturados, refletindo-se, ao final, na taxa de exalação nas paisagens. Solos com níveis de umidade acima da capacidade de campo tem parcelas consideráveis de Rn transportadas pela água, seja por gravidade através dos grandes poros, caso dos Latossolos e Solos Podzólicos, seja por uma combinação dos processos hidrogeológicos de ascensão capilar e evaporação através dos solos argilosos da paisagem supraqual. Nesta paisagem a migração ascendente de Rn em maiores proporções, e sua

exalação, ocorre após o fim das chuvas, com o início da evaporação. Em épocas de chuva, com os solos saturados, é improvável qualquer manifestação superficial intensa de Rn em qualquer paisagem, conforme comprovam dados de SHIRAV e VULKAN (1997), Figura 30, que ilustra quedas acentuadas nos níveis de exalação de Rn em territórios úmidos de Israel durante os períodos de intensas precipitações.

FIGURA 30 – VARIÇÕES SAZONAIS DOS NÍVEIS DE Rn EM TERRITÓRIOS ÚMIDOS E ÁRIDOS DE ISRAEL



FONTE: Extraída de SHIRAV e VULKAN (1997)

Síntese Conclusiva

Como visto, em ambiente climático tropical úmido, a transformação, pela atuação dos processos supergênicos, de rochas com teores normais e bem distribuídos nos radionuclídeos U e Th (Ra), resulta em materiais de alteração com taxas de geração, emanação, migração e exalação de radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn) consideravelmente mais elevadas que as medidas nas rochas inalteradas. Isto decorre do fato de que durante as transformações mencionadas, a concentração e hospedagem inicial do U e do Th (Ra), no caso de granitos, principalmente em minerais acessórios, em grande parte resistatos, são profundamente modificadas. Estas modificações resultam em concentrações anômalas associadas com os solos residuais nas paisagens, com maior proporção de U livre e adsorvido às novas fases hospedeiras, conforme mecanismos geoquímicos já descritos. Maiores concentrações de U e Th (Ra) significam maiores taxas de geração de Rn. Por

outro lado, maior proporção de U livre adsorvido às superfícies dos hospedeiros e a presença de água nos poros dos solos, são fatores favoráveis à potencialização da taxa de emanção. Finalmente, tendo em vista que os materiais secundários, permoporosos e enriquecidos em Ra, estão próximos à superfície dos terrenos, a migração do radônio, seja por difusão, convecção ou transporte pela água freática, é facilitada.

Assim, o “sistema vertente” é o suporte morfológico para a atuação, em tempo presente, dos processos radioativos envolvendo os radionuclídeos das séries do ^{238}U e ^{232}Th , redistribuídos durante os tempos geológico e pedológico, principalmente Ra e Rn. A atuação de tais processos, e o atual regime hídrico do aquífero freático, condicionando os níveis de umidade no solo, determinam as taxas de geração, emanção, migração e exalação de Rn nas diversas paisagens. Numa vertente modelada em clima tropical úmido sobre rochas graníticas contendo os radionuclídeos U e Th, e revestida de solos residuais, as paisagens com probabilidades maiores de ocorrência de fluxos de Rn mais elevados são as paisagens supraqual e transeluvial, e a com menor probabilidade a paisagem eluvial. Assim, conforme ilustrado na Figura 29 (p. 155), atribuindo-se nível 1 de risco à paisagem eluvial, com relação à intensidade crescente dos fluxos de Rn, à parte mediana da paisagem transeluvial deve ser atribuído 2 e à paisagem supraqual nível 3, ressalvadas situações específicas, geograficamente localizadas, onde a paisagem transeluvial pode superar a paisagem supraqual, devido ao grau de desequilíbrio radioativo que pode existir na série do ^{238}U , tendo em vista a idade de seu depósito nesta última paisagem, entre 100.000 e 500.000 anos.

5.2 DISCUSSÃO

Em ambiente tropical úmido, os processos de intemperismo são seguidos pelos processos pedogenéticos, de tal maneira que os processos de decomposição da rocha e os da formação de solos ocorrem simultaneamente. O intemperismo gera o regolito, preparando o caminho para a formação de solos. Sob tal ponto de vista, a formação dos solos pode ser considerada como um estágio avançado do intemperismo, ou seja, a pedogênese é o intemperismo em sua máxima eficiência. Durante a pedogênese as transformações não mais são isovolumétricas, e todo o volume mais superior do regolito é atacado e transformado em solos, com a máxima liberação e reorganização dos elementos químicos contidos nos minerais primários ainda existentes. Parte desses elementos é consumida nas neofomações mineralógicas, outra parte pode ficar retida no próprio perfil, principalmente por adsorção, e a parte restante é lixiviada pelas águas percolantes e, assim, redistribuída nas paisagens ou eliminada do sistema. É, portanto, na fase pedogenética que a dispersão superficial de elementos químicos alcança a sua máxima intensidade. No caso do U este fato tem sido comprovado por estudos de vários autores, inclusive por dados cronológicos, como veremos mais adiante.

Em estudos nas paisagens elementares sobre um mesmo corpo rochoso, os fatores de formação de solos, clima e vegetação, agentes ativos, e o tempo, podem ser considerados constantes, pois em áreas relativamente pequenas, de ocorrência de uma mesma unidade litoestratigráfica, clima, vegetação e história geológica são comuns, salvo condições especiais. Neste caso, então, os principais fatores de formação de solos, que são relevantes nos estudos de paisagens, na escala das vertentes de uma bacia de drenagem, são a intensidade do relevo e o tipo de rocha, o que está de acordo com o conceito de catenas e com resultados obtidos na zona tropical úmida por grande número de geocientistas mundiais.

Relevo

No caso de paisagens sobre uma mesma unidade litológica, o relevo, devido a sua importância na formação e distribuição dos solos e no condicionamento das geoformas, é a variável que deve ser enfocada. Uma bacia hidrográfica drenando um mesmo corpo rochoso, em geral, apresenta diferentes geoformas, espessuras e tipos de solos, conforme a região que se considere dentro da bacia. Verifica-se que próximo às nascentes as declividades são mais fortes e os solos pouco espessos, em geral litólicos. Mais a jusante,

em áreas de menores declividades, os solos são mais espessos e diferenciados. A variação do relevo, além de influenciar os tipos de geoformas, tem grande influência na repartição das águas superficiais, determinando a taxa de infiltração e de “*run off*”, o que irá se refletir nos tipos e espessuras de solos e na distribuição da umidade ao longo da vertente.

É pelos fatos apresentados que são comuns afloramentos rochosos e solos litólicos, com mais baixa umidade, nas porções mais elevadas do terreno, associados com tributários de menor ordem, e perfis de solos mais desenvolvidos e diferenciados nas partes menos elevadas da bacia, associados com tributários de maior ordem. Assim, o relevo, controlando as geoformas, tipos e intensidades dos processos pedogenéticos, tem o controle do tipo e espessura de solos que se formam sobre um mesmo tipo de rocha, o que irá se refletir no volume de elementos liberados e intensidade de sua migração no perfil e nas paisagens (GRANIER, 1973), e nos tipos e intensidades das anomalias de U e Th (Ra) associadas.

Tipo de Rocha

Para uma mesma classe de relevo, diferentes tipos de rochas condicionam a atuação de diferentes tipos e intensidades de processos morfogenéticos e pedogenéticos, resultando em diferentes geoformas, tipos de solos e sua espessura nos perfis e diferentes tipos de anomalias de metais. Por exemplo, rochas básicas, apesar de terem a alteração intempérica facilitada, devido à natureza de seus minerais, terão como produto solos pouco espessos, argilosos, de baixa porosidade e permeabilidade, permitindo uma circulação de água pouco intensa. Como consequência da fraca percolação das águas há um bloqueio da lixiviação, tornando difícil a exportação dos elementos dissolvidos. Tais tipos de solos, em geral, são mais básicos e apresentam uma tendência turfosa anaeróbica. O perfil argiloso é mais rico em montmorillonita e a presença de óxidos de ferro é maior. No caso de rochas ácidas, embora a alteração seja mais difícil e lenta, os solos resultantes são de alta porosidade e permeabilidade, o que permite uma circulação de água rápida e intensa. Os solos são “arenosos” e mais espessos, permitindo uma fácil exportação dos elementos liberados pela pedogênese. Isto torna os solos mais ácidos e o ambiente mais oxidante, condicionando o domínio da caolinita entre os minerais argilosos, e uma menor presença de óxidos de Fe em relação ao caso anterior. A natureza da rocha original, processos de alteração atuantes e o perfil resultante é fundamental para se entender a natureza e intensidade dos enriquecimentos ou empobrecimentos ocorridos durante a atuação dos processos de alteração.

Como consequência dos processos e mecanismos citados são geradas diferentes paisagens, que no caso das rochas básicas apresentam vertentes mais suaves. As paisagens sobre rochas ácidas podem apresentar vertentes bem mais íngremes, como os morros meia-laranja, muito comuns sobre granitos e gnaisses. Devido a isso, os perfis sobre rochas ácidas tem uma tendência muito grande à podzolização dos horizontes mais superiores, o que não ocorre com a mesma intensidade sobre rochas básicas, que geram ambientes insuficientemente ácidos para o desenvolvimento de tal processo, havendo, neste último caso, predomínio da latolização. Estes são conceitos clássicos da geomorfologia climática, muito bem destacados em TRICART (1965), entre vários outros autores.

Sistema Pedológico de Transformação

A utilização do conceito “Sistema Pedológico de Transformação” é de fundamental importância para o bom entendimento da marcha evolutiva das paisagens elementares, quer nos aspectos morfopedológicos, geoquímicos ou hidrogeológicos. Tal concepção fundamenta-se nos conceitos de catenas e de toposseqüência e começou a difundir-se a partir da segunda metade da década de 60, através dos trabalhos desenvolvidos na África por pedólogos da ORSTOM (*Office de la Recherche Scientifique et Technique Outre-Mer*), pela necessidade de se estudarem as transformações pedogenéticas de forma contínua no espaço e no tempo. Desde então, são inúmeros os autores que implícita ou explicitamente tem abordado este conceito em pesquisas pedogenéticas, entre os quais não poderíamos deixar de citar TRICART (1965), BARROS (1985), LUCAS e CHAUVEL (1992), BOULET et al. (1993), RUELLAM e DOSSO (1993), SANTOS (1995) e SILVA et al. (1995). Ainda, BOCQUIER (1973) e BOULET (1978), citados por SALOMÃO (1994), LEPSH et al. (1977 a, b), QUEIROZ et al. (1981), MONIZ e BUOL (1982), MONIZ et al (1982 e 1984), CASTRO (1989) e VIDAL-TORRADO (1994), citados por MONIZ (1996), e LEPSH e BUOL (1976), QUEIROZ NETO et al. (1980), MIKLÓS (1992) e VIDAL-TORRADO e LEPSH (1993), citados por VIDAL-TORRADO (1999). Com base em tal conceito é possível caracterizar nas paisagens, caso exista, o registro de uma segunda fase pedogenética com diferenciação lateral, de expressão geográfica limitada à paisagem transeluvial, gerada pelo retrabalhamento dos sistemas iniciais, estes com diferenciação essencialmente vertical e de maior expressão geográfica. Trata-se, portanto, de uma abordagem superior em relação à tradicional, com base em perfis verticais de solos, porém ainda encerra divergências importantes, sendo, então, um tema ainda em evolução (vide p. 57).

Sistemas pedológicos de transformação foram evidenciados através de estudos detalhados no Platô de Marília, estado de São Paulo, por CASTRO (1989) e PELLERIN e QUEIROZ NETO (1992), citados por SANTOS (1995). Nessa área, o horizonte B textural (Bt), com estrutura poliédrica e o horizonte arenoso de superfície (E), apresentam uma configuração espacial concordante com a topografia atual, diferentemente do B latossólico. Os citados autores constataram que o horizonte latossólico é o registro de uma pedogênese inicial, anterior ao entalhamento atual das vertentes, enquanto os horizontes Bt e E evoluíram simultaneamente com a modelagem recente das vertentes. Tais processos, devido ao controle imposto pelo meio-físico local, tem importantes reflexos na dispersão geoquímica superficial de elementos, o que pode levar à formação de uma segunda geração de anomalias pedogenéticas de U e Th (Ra) mais intensas e com maior proporção de U adsorvido às fases hospedeiras, porém de extensão mais restrita. Os reflexos das transformações também alcançam a morfologia e propriedades internas do aquífero freático por porosidade secundária, desenhando um subsistema suspenso. As implicações mencionadas, como pode ser facilmente depreendido, são de extrema importância para a elaboração de modelos previsionais envolvendo o ciclo do radônio nas paisagens elementares.

Aquíferos

Tipo de rocha e relevo, em última análise, são os fatores principais que também irão determinar as propriedades físicas dos solos, entre elas **porosidade e permeabilidade** secundárias, condicionando a implantação, evolução e geometria final do sistema aquífero freático por porosidade secundária. À medida que os perfis de solos vão se formando e diferenciando, também vai sendo construído e definido o aquífero freático por porosidade, antes inexistente, que juntamente com o aquífero fissural, se existente, formam o sistema hidrogeológico relacionado às paisagens.

Estas são condições fundamentais para que haja lixiviação e canalização dos fluxos carreadores dos elementos disponíveis nas rochas, regolito e solução do solo, possibilitando a sua redistribuição nos perfis de alteração e nas diferentes paisagens. Com outras variáveis constantes, é o regime hídrico do aquífero freático por porosidade o principal responsável pelas variações sazonais nas taxas de exalação de radônio nas paisagens elementares, uma vez que o nível de umidade no solo tem papel importante em todo o ciclo superficial do radônio, exceto a geração.

Geoquímica

O ataque às rochas e a mobilização dos elementos ocorre desde o início do intemperismo, que pode durar milhões de anos. Mas é efetivamente durante a fase pedogenética, últimas dezenas a centenas de milhares de anos, que os processos de alteração superficial são mais intensos e efetivos. Então, relevo e tipo de rocha são os principais fatores controladores do dinamismo das paisagens em áreas restritas. Esta escala de estudo é a mais adequada para o estabelecimento de padrões geoquímicos superficiais consistentes de dispersão, sendo materializada pelas vertentes das bacias de drenagem, desenvolvidas sobre um mesmo tipo litológico. Tal conhecimento tem sido utilizado com grande intensidade por geoquímicos russos, conforme historiado no Capítulo Meios e Métodos. Da mesma forma, é o pano de fundo de importantes estudos geoquímicos e pedológicos efetuados nos trópicos úmidos de vários continentes por inúmeros cientistas franceses. Mais recentemente este conhecimento tem sido utilizado, com muita propriedade, por cientistas australianos, interrelacionando-o com levantamentos gamaespectrométricos para aplicação a estudos do meio-físico e prospecção mineral, principalmente, DICKSON et al. (1996); DICKSON e SCOTT (1997) e WILFORD et al. (1997).

Anomalias de U e Th (Ra) em solo residual relacionadas a alteração de depósitos subaflorantes desses radionuclídeos, ou a elementos estruturais do meio físico, normalmente têm pequena expressão em termos de área, por terem, pelo menos, uma dimensão muito reduzida. Ao contrário, anomalias resultantes dos processos intempéricos / pedológicos das rochas, sobretudo as de alto **background** em U Th (Ra), podem gerar anomalias de considerável intensidade, e ocupar expressivas áreas das paisagens, se as alterações forem intensas. Em alterações pouco espessas a ocorrência e intensidade deste tipo de **anomalias** têm pouca expressão. Alterações pedogenéticas possantes podem, devido a modificações de volume, condicionar a materialização de níveis com concentrações relativas elevadas, mesmo sem o deslocamento dos elementos, fato comum para elementos como Fe, Al, Mn e Ti (SAMAMA, 1971, GRANIER, 1973, ROSE et al., 1979) e acumulações superficiais de minerais resistatos portadores de U e Th (Ra), compostos insolúveis de Th, além de U e Th (Ra) adsorvido em óxidos metálicos e argilas.

No ambiente pedogenético, o urânio se encontra principalmente em solução verdadeira complexado na forma de cátions (ou ânions dependendo do pH da água). Em geral anomalias uraníferas sucessivas podem situar-se nas proximidades do nível hidrostático, como anomalias de vertente ou de ruptura de talude (GRANIER, *op. cit.*). Dados cronológicos demonstram que importantes aportes de U, em jazimentos de U do

Plateau do Colorado, USA, ocorreram nas últimas dezenas a centenas de milhares de anos (ADLER, 1962). Resultados semelhantes foram encontrados por BONOTTO (1994) em estudos de duas áreas no Morro do Ferro, Estado de Minas Gerais, Brasil. Nestes casos, a mobilização das soluções uraníferas ocorreu em intervalos de tempo compatíveis com o necessário para a formação de inúmeros perfis de solos. Estes dados corroboram a relação entre pedogênese e aporte de metais em solução, indicando que a pedogênese é uma importante fase na redistribuição superficial de elementos, geradora de soluções mineralizantes, que em ambientes adequados podem constituir ocorrências ou mesmo depósitos secundários significativos de metais, dentre os quais os de U são casos clássicos.

Como é sabido, as rochas ácidas tem maior **background** nos radionuclídeos U e Th (Ra) que as rochas básicas. Porém, como consequência de fatores já abordados, os solos derivados das rochas ácidas tem, em geral, uma taxa de concentração em U e Th (Ra) inferior à dos solos derivados de rochas básicas. Além do contido em minerais resistatos, que permanecem no perfil, e uma pequena parte que pode estar fixada pelas argilas e óxidos metálicos presentes, boa parte do **urânio solúvel** é exportada para as partes mais profundas do perfil e/ou para as paisagens adjacentes, onde pode ser fixada ou não. Em áreas bem drenadas, traduzidas aqui pelas paisagens eluvial e transeluvial, a maioria dos autores concorda que existem perdas entre 20 e 30% do total de U contido em rochas ácidas, durante o intemperismo / pedogênese em clima tropical úmido. No caso dos solos sobre rochas básicas, litologias normalmente com teores muito baixos nos radionuclídeos U e Th (Ra), além da presença dos minerais resistatos, há uma forte proporção de U fixada pelos óxidos e pelas argilas, com destaque para a montmorillonita, de maior poder de adsorção. Solos sobre rochas básicas têm maiores taxas de enriquecimento que aqueles sobre rochas ácidas, podendo mostrar enriquecimentos com teores de cerca de 3 a 4 vezes com relação à rocha original, o que significa que somente uma parcela reduzida dos radionuclídeos é exportada. Ainda assim, tendo em vista o **background** mais elevado nos radionuclídeos U e Th (Ra) das rochas ácidas, estas resultam em produtos de alteração com teores finais mais elevados (DICKSON et al., 1996, DICKSON; SCOTT, 1997 e WILFORD et al., 1997).

A questão do enriquecimento de perfis de alteração em U e Th (Ra) em clima tropical úmido, partindo-se de rochas inalteradas com teores normais e uniformemente distribuídos nesses radionuclídeos, é uma questão relativamente bem estudada a nível mundial e dispõe de vasta literatura científica. Muito embora os estudos existentes enfatizem as diferenciações verticais nos perfis, a maioria dos resultados obtidos, sejam teóricos, laboratoriais ou de campo, sobre esta questão específica, principalmente sobre rochas

graníticas, convergem. Tal fato permite afirmar que em ambiente tropical úmido, de modo geral, as coberturas residuais sobre rochas portadoras de U e Th (Ra) exibem concentrações superficiais mais elevadas que as rochas que lhe deram origem. Em tais perfis, as principais anomalias mais freqüentemente estão situadas no topo do horizonte B dos solos. Nessa linha podemos citar os trabalhos de VINOGRADOV (1959), ADAMS e RICHARDSON (1960), SAMAMA (1971), RAGLAND et al. (1967), TIEH et al. (1980), GUTHRIE e KLEEMAN (1986), PINTO-COELHO (1986), além dos estudos aplicados a granitos australianos por DICKSON et al (1996), DICKSON e SCOTT (1997) e WILFORD et al. (1997).

Assim, além da intensidade e natureza dos teores originais em U e Th (Ra) dos diferentes tipos de rochas, a natureza do perfil argiloso e o nível de presença principalmente de óxidos de Fe e Al, aliado a uma tendência para ambiente redutor e natureza das argilas, a capacidade de fixação de elementos menores é maior no contexto de rochas básicas que no de rochas ácidas. No entanto, o maior **background** em U e Th (Ra) das rochas ácidas, aliado ao fato de que durante os processos de intemperismo e pedogênese estas sofrem maior variação de densidade que as rochas básicas, resulta num maior nível final de enriquecimento relativo de U e Th (Ra) nos perfis de solos das rochas ácidas. As razões Th/U e Us/Ut podem caracterizar tais radioanomalias nos diversos ambientes geoquímicos das diferentes paisagens. Tais razões refletem as parcelas móveis e fixas desses radionuclídeos, possibilitando inferências a respeito das suas fases hospedeiras, de maneira adequada e prática, e por esse motivo tem sido mundialmente utilizadas, como pode ser constatado, entre outros, em VINOGRADOV (1959) e ROSE et al. (1979). VINOGRADOV, *op. cit.*, relata que a maior relação Th/U no ambiente superficial é encontrada freqüentemente no horizonte A dos solos podzolizados, tendo em vista a extrema lixiviação sofrida pelo U em tal ambiente, e que as relações mais baixas são encontradas em locais com enriquecimentos em U. Por outro lado ADAMS e RICHARDSON (1960) e SAMAMA (1971) apresentam dados de Th/U maiores em perfis lateríticos que nas rochas inalteradas, o que demonstra a maior mobilidade do U em relação ao Th nesse ambiente.

Radônio nas Paisagens

Este estudo sobre radônio nas paisagens elementares foi baseado em dados, conceitos e modelos existentes na literatura científica nacional e internacional pertinente. Constatou-se que nenhum dos trabalhos consultados aborda o Rn com enfoque nas

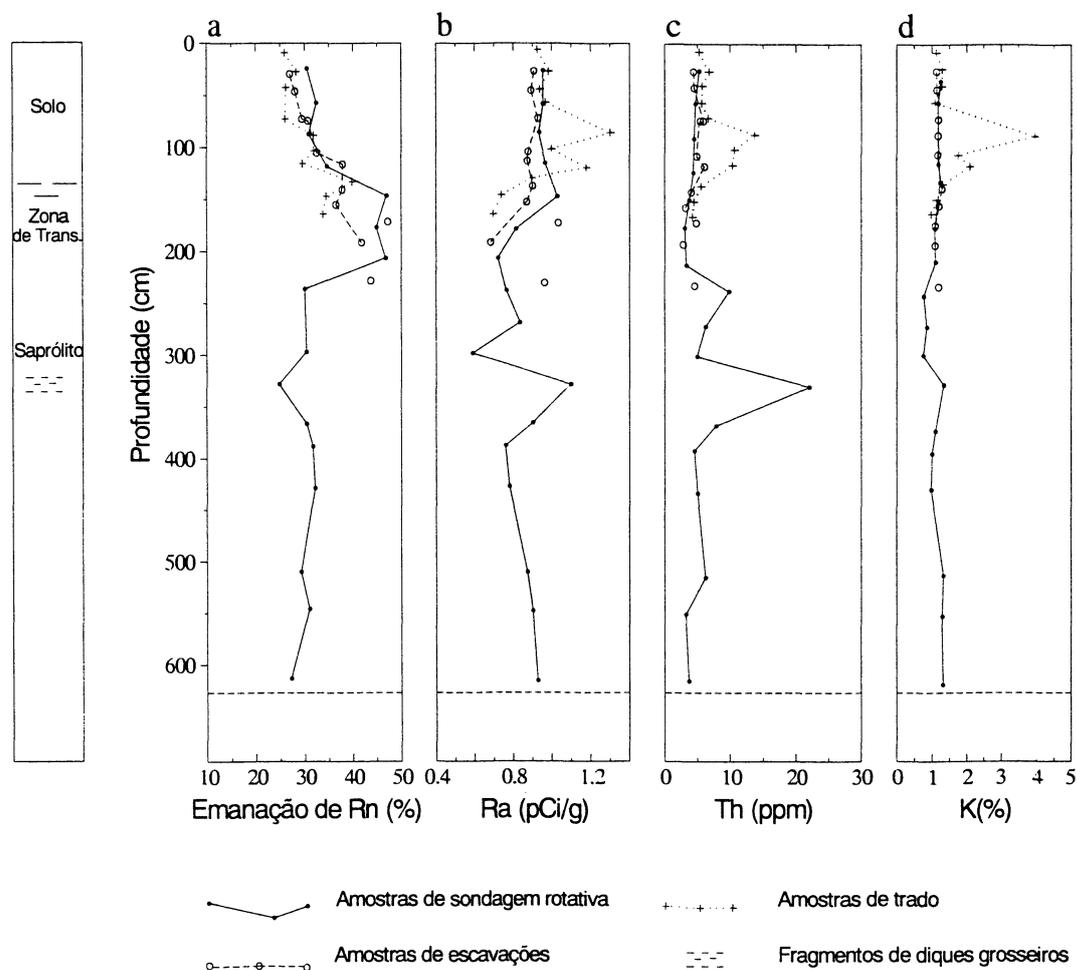
paisagens elementares, objetivando obter uma visão tridimensional da sua distribuição. Os principais estudos existentes (AKERBLOM et al., 1984, NERO; NAZAROFF, 1984, NAZAROFF et al., 1988b, NERO, 1988, GUNDERSEN et al., 1992, PURTSCHELLER et al., 1995, HUDAK, 1996, SILVA; MENDES., 1996, CHOUBEY; RAMOLA, 1997, SHIRAV; VULKAN, 1997, APTE et al., 1999, entre outros), foram executados em escala regional e utilizaram, principalmente, dados litoestruturais para a modelagem, sem considerar os elementos das paisagens que, aliás, só podem ser adequadamente compreendidos na escala das vertentes. A maior parte dos levantamentos de Rn executados pelos autores citados foi dimensionada em escala regional, com base em fundamentos litoestruturais, consubstanciados por dados radiométricos, estatísticos e das principais características dos solos. Muitas vezes formando modelos ou matrizes previsionais sem consistência sistêmica, tendo em vista a heterogeneidade da significância escalar crono-espacial dos parâmetros utilizados. Por outro lado, sabe-se que os principais conceitos sobre os processos que delimitam o ciclo completo do Rn, das rochas e solos até a atmosfera, reconhecidamente, geração, emanação, migração e exalação, decorrem de estudos de laboratório efetuados em diferentes épocas por diferentes autores (MEGUMI; MAMURO, 1974; BOSSUS, 1984; SEMKOW, 1990, entre outros), sobre amostras originárias das mais variadas áreas e países. Apesar de tal histórico, em estudos previsionais de Rn, estes conceitos devem ser usados em sua totalidade e de maneira integrada. Constatou-se, no entanto, que a maioria dos trabalhos existentes apenas faz utilização parcial desse conjunto de conceitos. Por vezes o foco é a geração, outras vezes é a emanação, ou migração e exalação, e assim por diante.

Como visto, muito embora a literatura existente relacionando Rn com elementos litoestruturais do meio-físico seja relativamente muito difundida, o mesmo não pode se afirmar sobre estudos que estabelecem relações genéticas entre perfis de solos e níveis de Rn. Dentre os poucos trabalhos existentes sob tal enfoque, destacamos os de FLEXSER et al (1993) e GREEMAN e ROSE (1996). Nos dois casos são estabelecidas relações entre os níveis da concentração e modo de distribuição de U, Th e Ra associados às fases pedogenéticas dos diferentes horizontes dos perfis de solos, e as intensidades de Rn resultantes, mais especificamente as respectivas taxas de emanação. Os estudos foram efetuados em vários perfis de solos, do oeste e leste dos EUA, no entanto, conduzidos por uma visão verticalista da diferenciação pedogenética e dissociados das paisagens circundantes.

FLEXSER et al., *op. cit.*, concluíram que as principais taxas de emanação de Rn estão associadas com fases pedogenéticas secundárias portadoras de U, Th e Ra (Figura

31). Por outro lado, enfatizam os processos de e-iluviação como mecanismos de transporte e reorganização de materiais de alteração no interior do perfil de solos. Por sua vez,

FIGURA 31 – ABUNDÂNCIA DE RADIOELEMENTOS E TAXAS DE EMANAÇÃO DE Rn EM AMOSTRAS DE SOLO DE GRANITO, CALIFÓRNIA, USA

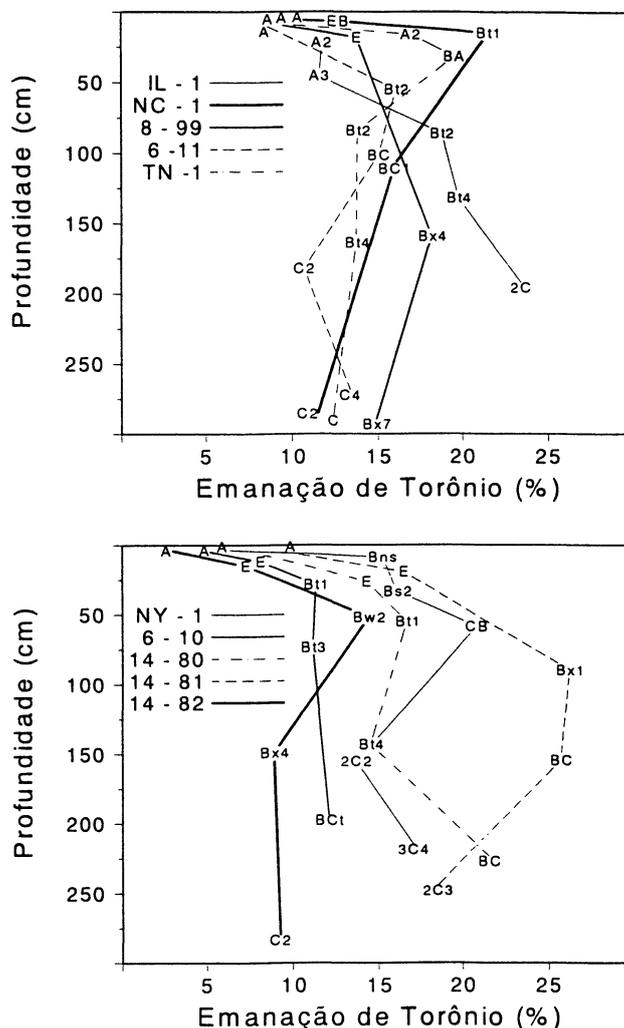


FONTE: Extraída de FLEXSER et al. (1993)

GREEMAN e ROSE (1996), enfocam o coeficiente de emanção dos solos, constatando que os valores de Rn (^{222}Rn e ^{220}Rn) em perfis de solos residuais são comumente baixos nos horizontes pedológicos A e E, e que os maiores valores situam-se no topo do horizonte B (Figura 32; Tabela 15), principalmente quando este é de natureza argilosa (Bt). Isto comprova que nos solos os radionuclídeos U, Th e Ra exibem aumento de concentrações principalmente nas fases de granulometria mais fina, argilas e siltes, na matéria orgânica e óxidos de Fe e Al (Tabela 15), não havendo desequilíbrio radioativo significativo entre

esses radionuclídeos e o Rn quando no ambiente geoquímico superficial estão presentes as fases pedogenéticas mencionadas.

FIGURA 32 – VARIAÇÃO DOS COEFICIENTES DE EMANAÇÃO DO ^{220}Rn COM A PROFUNDIDADE, EM VÁRIOS PERFIS DE SOLOS DO NORDESTE DOS ESTADOS UNIDOS DA AMÉRICA



FONTE: Extraída de GREEMAN e ROSE (1996)

Também ficou comprovado que as taxas de ^{222}Rn são geralmente maiores que as de ^{220}Rn , o que está de acordo com as propriedades nucleares destes radionuclídeos e com as características geoquímicas dos seus antecessores na cadeia de decaimento do ^{238}U e ^{232}Th , como, aliás, já haviam constatado MEGUMI e MAMURO (1974), entre outros. No entanto, nos estudos mencionados, inferências a respeito de possíveis taxas de exalação nas paisagens, e, também, de dados sobre os teores de U e Th (Ra) na rocha inalterada,

bem como os níveis de umidade dos solos, não são disponibilizados, além de somente existir um perfil de solos sobre um mesmo corpo rochoso, fatos que impossibilitam uma análise evolutiva tridimensional das grandezas abordadas. Por outro lado, os estudos destes autores evidenciam que em solos pouco evoluídos não se verificam contrastes acentuados nas concentrações de argila, óxidos de Fe e Al, U, Th, Ra e Rn. Quando a diferenciação é evidente, ao contrário, estes estão refletidos em todos os parâmetros mencionados (Tabela 15).

TABELA 15 – COEFICIENTES DE EMANAÇÃO DE Rn EM DIFERENTES HORIZONTES DE UM ULTISSOLO RESIDUAL SOBRE UM GRANITO DA CAROLINA DO NORTE, USA, E TEORES EM ARGILA, CARBONO ORGÂNICO, ÓXIDO DE Fe, U, Th E Ra

Amostra	Horiz.	Profund. (cm)	Argila (wt %)	Carbono Org. (wt%)	Óxido de Ferro (wt%)	U (ppm)	Th (ppm)	Ra (mBq/g)	E _{Rn} (%)	E _{Tn} (%)
NC-1-2	A	0-3	7,7	1,00	0,58	3,8	4,1	54	12±1	11±1
NC-1-3	E	3-10	9,2	0,41	0,76	4,6	5,2	62	12±1	12±1
NC-1-4	EB	10-18	8,8	0,46	0,72	4,7	5,9	66	14±1	13±1
NC-1-5	Bt1	18-43	45,0	0,19	3,4	7,1	23,0	99	19±1	21±1
NC-1-6	Bt2	43-69	38,0	0,13	3,0	7,0	25,0	101	16±1	16±1
NC-1-8	BC1	89-130	20,0	0,01	1,8	7,4	21,0	104	16±1	16±1
NC1-11	C2	297-361	3,2	0,12	0,53	7,6	16,0	117	12±1	12±1
Média	-	-	28,0	-	-	7,1	20,0	101	15	15

FONTE: Extraída de GREEMAN e ROSE (1996)

Assim, de grande impacto nesta pesquisa, quanto aos resultados dos autores supracitados, são os dados mostrados pelos perfis individuais, onde as maiores intensidades de concentrações de U, Th, Ra e Rn estão associadas ao horizonte B da grande maioria dos perfis de solos residuais (Figura 32; Tabela 15). Estes resultados corroboram a premissa estabelecida nesta pesquisa, que, salvo condições especiais de natureza localizada, envolvendo desequilíbrio radioativo, é vantajoso utilizar-se o U e Th como indicadores da distribuição do Ra nas paisagens. Afora o mencionado, que mais tem a ver com enfoques e objetivos, a principal lacuna constatada em termos de nível de conhecimento científico, diz respeito ao U e Th (Ra) das rochas e sua redistribuição durante a evolução das paisagens. Tal alteração distributiva não se processa isoladamente, mas de forma concorrente com os resultados de um conjunto de processos que modela as paisagens, forma os solos e constroi o aquífero freático por porosidade secundária, todos elementos associados e com papel importante no ciclo do Rn no solo, o que pode ser aquilatado no parágrafo seguinte.

Um dado fundamental usado nos estudos sobre Rn num determinado local ou região, é a concentração de Ra obtida por derivação de dados de eU e/ou eTh extraídos de levantamentos gamaespectrométricos, aéreos ou terrestres, conforme pode ser constatado,

entre outros, em AKERBLOM et al. (1984), NERO e NAZAROFF (1984), GUNDERSEN et al. (1992) e APTE et al. (1999). Nos estudos de Rn estes dados têm sido usados em bruto, sendo relacionados diretamente com as rochas subjacentes, e não com as suas coberturas residuais, cuja evolução, em ambiente tropical úmido, leva a uma redistribuição profunda do U e do Th (Ra). Deste processo resultam novos padrões de distribuição dos radionuclídeos, inclusive gerando radioanomalias, muito diferentes daqueles da rocha original (ADAMS; RICHARDSON, 1960, SAMAMA, 1971, GRANIER, 1973, ROSE et al., 1979, FERRAIOLI; FERREIRA, 1987, FORTESCUE, 1980, TIEH et al., 1980, GUTHRIE; KLEEMAN, 1986, CARVALHO, 1995, entre outros). As mencionadas coberturas são as verdadeiras fontes das emissões gama, como demonstram com muita propriedade SILVA (1994), DICKSON et al. (1996), DICKSON e SCOTT (1997), WILFORD et al. (1997) E SOUZA (1998).

Estabelecer uma relação direta entre a concentração de Ra, assim obtida, e possíveis fluxos de Rn no solo, pode levar a erros consideráveis a nível das paisagens. De fato, em geral, as anomalias gama mais facilmente detectáveis pela sua posição topográfica elevada, afloramento e intensidade, ocorrem na paisagem eluvial. Estas anomalias na posição indicada, como vimos, têm uma contribuição muito acentuada às emissões gama de minerais resistatos, ricos em U e Th (Ra), os quais, no entanto, não contribuem significativamente para as taxas de emissão de Rn, tendo em vista as suas estruturas mineralógicas densas e fechadas. Fato semelhante está bem ilustrado na constatação feita por SILVA e MENDES (1996), com a conclusão das pesquisas sobre a radioatividade de Monte Alegre, Estado do Pará, Brasil. Em certo momento estes autores afirmam: **“Não necessariamente, anomalias gama correspondem a anomalias alfa e vice-versa”**. Ao contrário, níveis enriquecidos em U e Th (Ra), na maioria das vezes cobertos por areias quartzozas e, por isso não resultam em anomalias gama intensas, ocorrem na paisagem transeluvial. Nesta situação, devido a sua intensidade e permeabilidade das coberturas arenosas, contribuem mais significativamente para a emissão e exalação de Rn que as anomalias da paisagem eluvial, o mesmo ocorrendo com as anomalias essencialmente uraníferas da paisagem supraqual (REBELO et al., 1997). Por isso, a utilização de dados gamaespectrométricos em bruto pode levar a interpretações equivocadas sobre a intensidade dos fluxos de Rn nas diferentes paisagens.

Sem dúvida, um dos trabalhos de maior envergadura já executados sobre radônio sob o enfoque litoestrutural - estatístico é o de GUNDERSEN et al. (1992). Abrange todo o território americano, e os resultados estão sintetizados no **“mapa previsional de risco geológico potencial de Rn dos EUA”** (vide Anexo 01). Para a definição dos graus de risco

lançados no referido mapa, os citados autores sintetizaram e atribuíram pontuação aos dados das regiões levantadas através de uma “Matriz Índice de Radônio” (Tabela 16), fazendo ponderações sobre a consistência das informações obtidas através de uma “Matriz Índice de Confiança” (Tabela 17). A pontuação do grau de risco lançada no mapa é fruto do cruzamento dessas duas matrizes. Com base nos resultados desta pesquisa, verifica-se que os parâmetros “tipo de arquitetura” e “níveis interiores de Rn”, utilizados nas matrizes mencionadas, não deveriam ter peso semelhante à geologia e permeabilidade dos solos, quando se faz modelagem geológica e o resultado pretendido é um mapa de potencial geológico de Rn. A existência ou inexistência de dados sobre Rn, mesmo tratados estatisticamente, e o tipo de arquitetura das habitações não são bons parâmetros para participar de um modelo geológico previsional, em qualquer área geográfica. Por outro lado, a utilização “em bruto” da radioatividade aérea (eU) não dá indicações sobre a natureza dos hospedeiros das fontes gama emissoras, e a intensidade gama assim obtida pode não ter correspondência de Rn na mesma intensidade. Assim, à luz dos resultados desta pesquisa, tendo em vista o enfoque e a escala dos estudos mencionados, aqueles resultados são apenas indicativos do potencial de fluxo de Rn, com localização geográfica aproximada, mesmo quando apoiados em perfis litológicos. Outras vezes, embora baseados em perfis de solos, os estudos são conduzidos por uma visão verticalista das diferenciações pedológicas e integrados em escala regional, como é o caso, por exemplo, de FLEXSER et al. (1993) e GREEMAN e ROSE (1996), já abordados.

TABELA 16 – MATRIZ “ÍNDICE DE RADÔNIO”, SEGUNDO GUNDERSEN et al. (1992)

Pontuação	Níveis Internos de Rn (média)	Radioatividade Aérea (eU)	Geologia ¹	Permeabilidade do Solo	Tipo de Arquitetura
1	< 2 pCi/L	< 1,5 ppm	Negativa	Baixa	Slab
2	2-4 pCi/L	1,5 – 2,5 ppm	Variável	Moderada	Mista
3	> 4 pCi/L	> 2,5 ppm	Positiva	Alta	Com Porão

NOTAS: *Varição total possível; de 3 a 17 pontos*

Critério: *Baixo Rn = 3 – 8 pontos (< 2 pCi/L de provável concentração média em interiores)*

Moderado Rn = 9 – 11 pontos (2 – 4 pCi/L de provável concentração média em interiores)

Alto Rn = 12 – 17 pontos (> 4 pCi/L de provável concentração média em interiores).

¹ *Pontos devido a evidência geológica de campo (GFE): pontos GFE são atribuídos em adição aos pontos para o fator “Geologia” com base em estudos de campo relevantes e específicos. Evidência geológica para: Rn alto = 2 pontos; Rn moderado = + 1 ponto; Rn baixo = -2 pontos; ausência de estudos de campo relevantes = 0 pontos.*

Percebe-se, então, que existe um considerável descompasso entre o conhecimento científico existente sobre a evolução das paisagens, sobretudo a dispersão superficial dos elementos químicos, em particular dos radionuclídeos U e Th (Ra), e a parcela desse conhecimento incorporada aos principais modelos existentes para a pesquisa e previsão de

TABELA 17 – MATRIZ “ÍNDICE DE CONFIANÇA”, SEGUNDO GUNDERSEN et al. (1992)

Pontuação	Dados de Rn em Interiores	Radioatividade Aérea	Dados Geológicos	Permeabilidade dos Solos
1	Dados esparsos ou inexistentes	Dados questionáveis ou inexistentes	Questionáveis	Dados questionáveis ou ausentes
2	Abrangência e qualidade razoáveis	Cobertura Glacial	Variável	Variável
3	Boa abrangência e qualidade	Sem Cobertura Glacial	Modelo geológico provado	Dados confiáveis e abundantes

NOTAS: **Varição total possível; de 4 a 12 pontos**
Critério: Confiança baixa = 4 a 6 pontos
Confiança moderada = 7 a 9 pontos
Confiança alta = 10 a 12 pontos

Rn, o que constitui um paradoxo. A utilização de dados gamaespectrométricos e médias estatísticas de valores de Rn, representando estados, regiões ou mesmo grandes áreas, o que tem ocorrido com grande frequência em levantamentos regionais, tendo em vista a representação escalar desses dados, não é cientificamente adequado a este tipo de estudo, pois, além de terem uma significância meramente indicativa, levam ao ocultamento de inúmeros contextos geológico / pedológicos capazes de condicionar fluxos de Rn de grande intensidade.

Então, é por todos esses motivos que o modelo resultante desta pesquisa enfoca as paisagens elementares e sua história evolutiva, numa visão sistêmica e tridimensional, pois os elementos do “sistema morfológico vertente”, resultantes da atuação dos processos supergênicos de alteração, e sua interação com as atuais paisagens, são o ponto central para o entendimento da geração, emanação, migração e exalação de Rn nessas paisagens.

6 CONCLUSÕES

Os conceitos e fatos aqui analisados e utilizados possibilitaram entender os mecanismos que condicionam a existência de fluxos de radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn) de diferentes intensidades nas paisagens desenvolvidas sobre um mesmo tipo de rocha, mesmo as de baixa permeabilidade e com teores normais em radionuclídeos, fato que tem surpreendido muitos pesquisadores. Isto é particularmente verdadeiro para substratos graníticos em regiões de clima quente e úmido cobertas por florestas. Por outro lado, os métodos de estudo adotados, com ênfase numa abordagem espaço-temporal, multidisciplinar e sistêmica, permitiram a análise da geração, emanação, migração e exalação de Rn, baseado em conceitos pedomorfológicos, pedogeoquímicos, hidrogeológicos e climáticos, tendo se mostrado funcionais. Permitiram a compreensão do comportamento do U, Th, Ra e Rn nas paisagens, condição primordial para que se possa modelar e prognosticar os locais preferenciais para a exalação de Rn, de risco para os seres humanos, numa escala compatível com as dimensões de pequenos núcleos habitacionais ou mesmo de residências unitárias.

Em regiões com espessos perfis de solos residuais, a estruturação interna das vertentes de uma unidade de drenagem, pela atuação dos processos supergênicos durante os tempos geológico e pedológico, conduz à diferenciação das paisagens, geração dos solos, constituição do aquífero freático por porosidade secundária e redistribuição dos radionuclídeos. No caso de granitos, durante as transformações, a concentração e hospedagem inicial do U e do Th (Ra) são profundamente modificadas, resultando em radioanomalias relativas, ou de repartição, associadas aos Latossolos (paisagem eluvial), radioanomalias em parte relativas e em parte absolutas vinculadas aos Solos Podzólicos (paisagem transeluvial) e anomalias predominantemente absolutas relacionadas com os Solos Hidromórficos (paisagem supraqual). Os produtos da alteração, configurados num “sistema morfológico vertente”, são materiais em que os atuais processos radioativos de geração, emanação, migração e exalação de Rn, processos afetados pelo regime hídrico do aquífero freático por porosidade secundária, apresentam taxas consideravelmente mais elevadas que as taxas medidas nas rochas inalteradas.

Então, numa vertente modelada sobre rochas graníticas portadoras de U e Th (Ra), as maiores taxas de exalação de Rn estão associadas com os Solos Hidromórficos e Podzólicos, respectivamente paisagens supraqual e transeluvial, e as menores com os Latossolos da paisagem eluvial. Ressalvas devem ser feitas para áreas nas adjacências da atual rede de drenagem da paisagem supraqual, onde pode haver desequilíbrio radioativo significativo entre os membros da série do ^{238}U , afetando negativamente a exalação de Rn.

No entanto, isto só pode ser adequadamente constatado por estudos que valorizem a escala pedológica do tempo e as dimensões espaciais das vertentes, como os limites principais desses estudos.

Assim, com base no exposto, são apresentadas as linhas básicas gerais de uma abordagem metodológica para a pesquisa de radônio adaptada a regiões tropicais úmidas com espessas coberturas pedogenéticas residuais. As questões a investigar deverão envolver, necessariamente, o entendimento de duas fases distintas, cada uma com processos e tempos de atuação próprios, de acordo com a seguinte rotina:

- 1) A modelagem do terreno deve estar baseada na distribuição espacial da cobertura pedológica (“análise estrutural da cobertura pedológica”) e feições morfológicas associadas nas vertentes de uma unidade de drenagem. Intensidades e tipologias de anomalias de U e Th (Ra), bem como as variações das permoporosidades do aquífero freático por porosidade secundária, devem ser relacionadas com a distribuição espacial dos solos e geformas. O entendimento desta fase é facilitado pela utilização conjunta dos conceitos de catenas de solos e de toposseqüência, que permitem melhor evidenciar a ligação entre pedologia e geomorfologia, além de conceitos da geoquímica de paisagens, hidrogeológicos e climatológicos. Dois aspectos importantes devem ser aqui ressaltados:
 - a. a caracterização e localização geográfica de sistemas pedogeoquímicos de transformação, e os reflexos das transformações pedogeoquímicas na intensidade e tipologia das radioanomalias e nas permoporosidades do aquífero, e
 - b. a determinação da cronologia relativa dos diferentes processos pedogenéticos que atuaram nas vertentes, bem como dos seus espaços geográficos de atuação.
- 2) A avaliação do funcionamento e eficiência dos atuais processos radioativos de geração, emanção e migração de Rn, condicionantes da sua exalação nas paisagens, deve ser efetuada à luz dos elementos anteriormente citados, cotejados com o atual regime hídrico do aquífero freático por porosidade secundária, em cada uma das paisagens elementares das vertentes estudadas.

Ainda, de forma complementar, a seguir são ressaltados os principais aspectos resultantes das análises e discussões dos temas aqui enfocados, fundamentais para o

aprimoramento de metodologias de estudo de Rn aplicáveis a contextos similares ao estudado, e subsequente elaboração de modelos:

- 1) Em ambiente tropical úmido, intensa evolução morfopedogenética e pedogeoquímica de uma vertente leva à diferenciação de quatro paisagens geoquímicas elementares, eluvial, transeluvial, supraqual e aqual. A cada uma destas paisagens correspondem diferentes geoformas, tipos e espessuras de solos (comumente Latossolos, Solos Podzólicos e Solos Hidromórficos), tipos e intensidades de anomalias de U e Th (Ra), além de segmentos específicos do aquífero freático por porosidade secundária, condicionando diferentes níveis de umidade nos solos. Na paisagem supraqual o ambiente geoquímico é redutor na maior parte do tempo, devido ao afloramento, ou pequena profundidade de ocorrência do nível freático, e à presença de abundante material argilo - orgânico. Nas outras paisagens, acima do nível freático, o ambiente geoquímico é oxidante. Tal conjunto de elementos é que efetivamente controla o ciclo superficial de Rn.
- 2) A evolução das paisagens leva à redistribuição do U e do Th (Ra) das rochas, inicialmente contidos em minerais acessórios, agregados intersticiais e nos minerais principais, quebrando estruturas mineralógicas e modificando a forma de hospedagem desses radionuclídeos, gerando anomalias com parcela considerável concentrada e adsorvida às superfícies exteriores das principais fases pedogenéticas resultantes. Durante tal fase evolutiva também é gerado e configurado o sistema aquífero freático por porosidade secundária, inicialmente ausente, sistema através do qual o Rn atinge a atmosfera.
- 3) Nos Latossolos da paisagem eluvial, as principais anomalias de U e Th (Ra) são de caráter relativo residual, associadas ao topo do horizonte B latossólico. São intensas e constituídas predominantemente por minerais resistatos contendo U e Th (Ra) e compostos insolúveis de Th. Em geral, caracterizam-se por razões Th/U elevadas (> 4) e U_s/U_t muito baixas, denotando pequena participação de U adsorvido. Em maiores profundidades no horizonte B ocorrem anomalias de menor intensidade, porém com maior proporção de U adsorvido por argilas, oxihidróxidos de Fe e Al e matéria orgânica.
- 4) No sistema de transformação Latossolo – Solo Podzólico, os Latossolos, com idades superiores a um milhão de anos (1 Ma), são transformados em Solos Podzólicos, entre

100.000 e 500.000 anos. As transformações também geram um subsistema aquífero suspenso na paisagem transeluvial, condicionado pelo contraste textural entre os horizontes B textural e A arenoso dos Solos Podzólicos. Nestes solos as principais anomalias de U e Th (Ra) são mais intensas e situam-se no topo do horizonte B textural. Decorrem do retrabalhamento das anomalias associadas aos Latossolos, durante a podzolização, sendo de caráter em parte residual e em parte absoluto pela lixiviação e migração de radionuclídeos dos horizontes superiores, que ficam empobrecidos, para o B textural. São caracterizadas por razões Th/U menores e Us/Ut maiores do que as associadas aos Latossolos, refletindo uma maior participação de U adsorvido.

- 5) Nos solos hidromórficos da paisagem supraqual as radioanomalias são de caráter absoluto e predominantemente uraníferas, ocorrendo, principalmente adsorvidas às fases argilo - orgânicas dos horizontes A0 e A1, pois o horizonte B é pouco desenvolvido ou ausente nesta paisagem. Caracterizam-se por razões Th/U muito baixas e Us/Ut altas, tendendo à unidade. São decorrentes de aportes de soluções uraníferas provenientes das paisagens mais elevadas, em pelo menos duas fases distintas. A principal fase de migração, mais antiga, duradoura e envolvendo a lixiviação de áreas mais extensas, ocorreu durante a formação dos Latossolos. A segunda, mais recente e envolvendo espaços geográficos mais restritos, durante a podzolização dos Latossolos.
- 6) Fluxos de Rn de diferentes intensidades nas paisagens decorrem da existência de anomalias de U e Th (Ra), de cujos níveis de concentração dependem as suas taxas de geração. Para que a emissão de Rn seja intensa, uma parte considerável desses radionuclídeos deve estar fixada por adsorção na parte exterior das fases pedogenéticas hospedeiras, e não em estruturas mineralógicas densas e fechadas (resistatos), e que os solos se caracterizem por permoporosidades elevadas e apresentem níveis de umidade próximos à capacidade de campo.
- 7) O Rn libera-se do solo combinando **emanação, difusão / convecção e transporte** pela água, fatores que podem variar com a posição nas paisagens e em resposta às mudanças climáticas, em escala sazonal, diária ou mesmo horária, afetando a sua exalação. A sazonalidade do clima afeta diretamente o regime hídrico do aquífero freático. Com os solos na capacidade de campo, a água capilar aumenta a fração de emissão de radônio por absorver a sua **energia de recuo**, e a migração do Rn é

dominantemente por **difusão / convecção**. Quando o solo está seco, a difusão e convecção de Rn são facilitadas, porém ocorre uma grande redução no coeficiente de emanção. Por outro lado, como a maior parte do **transporte do Rn pela água** se processa através de grandes poros, este é nulo quando o solo está seco e muito reduzido quando a água ocupa apenas os pequenos poros. Quando os grandes poros dos solos e saprólito estiverem completamente preenchidos por água, como ocorre normalmente abaixo da superfície freática, ou acima desta em épocas de intensas chuvas, e houver fluxo lateral, o movimento do Rn processa-se em solução aquosa.

- 8) Em regimes normais de umidade, condição comum na zona de aeração das paisagens eluvial e transeluvial, a migração de Rn se processa por uma combinação de difusão e transporte pela água, este no sentido vertical e lateral descendente, para a paisagem supraqual, onde a solução aquosa com Rn será submetida aos processos de capilaridade / evaporação, resultando em fluxos verticais ascendentes. Na paisagem transeluvial, durante regime de alta umidade, os fluxos aquosos transportadores de Rn são predominantemente laterais, fortemente canalizados através dos horizontes A e E dos Solos Podzólicos até a paisagem supraqual.
- 9) Sumarizando os tópicos anteriores, as possibilidades de maior exalação de Rn são nas regiões das paisagens supraqual e transeluvial, tendo em vista as características físicas dos principais níveis pedogenéticos radioanômalos, o padrão e intensidade das anomalias de U e Th (Ra) aí existentes, e as relações espaciais desses elementos com a superfície freática e a atual superfície dos terrenos. Na paisagem eluvial, mesmo com possíveis manifestações superficiais de intensas anomalias gama, devidas ao acúmulo de minerais resistatos com altas concentrações de U e Th (Ra), e compostos insolúveis de Th, os fluxos de Rn não devem ser muito significativos, devido à pequena taxa de emanção de Rn dos minerais resistatos. São caracterizados, principalmente, pelo ^{220}Rn , tendo em vista a concentração do Th, seu precursor primordial, nos níveis superiores do perfil. Nas paisagens supraqual e transeluvial as manifestações de Rn são devidas principalmente ao isótopo ^{222}Rn .
- 10) Na paisagem supraqual, em áreas restritas ao eixo do sistema de drenagem atual, locais onde a deposição de parcela de U decorrente do evento de podzolização dos Latossolos (entre 100.000 e 500.000 anos), substitui o U da fase anterior (> 1 Ma), os fluxos de Rn devem ser de intensidades inferiores aos verificados na paisagem transeluvial,

impactados negativamente pelo desequilíbrio radioativo na cadeia do ^{238}U , nesses locais. Já nos limites da paisagem transeluvial a redistribuição dos radioelementos durante a podzolização dos Latossolos ocorre principalmente entre horizontes adjacentes e contíguos, do horizonte E para o topo do Bt. Devido a isso, não se processa diferenciação geoquímica apreciável entre os radionuclídeos da série do ^{238}U , notadamente, ^{234}U , ^{230}Th e ^{226}Ra , resultando em desequilíbrio radioativo pouco significativo, à semelhança de um sistema fechado, traduzindo-se em maiores taxas de exalação de Rn nesses locais.

- 11) Ainda, numa vertente modelada em clima tropical úmido sobre rochas graníticas contendo os radionuclídeos U e Th (Ra), e revestida por Latossolos, Solos Podzólicos e Solos Hidromórficos, as águas freáticas têm grande probabilidade de estar contaminadas por U, Ra e Rn, independentemente da paisagem onde se encontrem.

Por fim, como a metodologia aqui proposta, para prognosticar áreas contaminadas com Rn, certamente tem limitações e imprecisões, deve ser aperfeiçoada, ou adaptada para aplicação em contextos diferentes do abordado, pelo que sugerimos os seguintes estudos:

- 1) Testar a eficiência da metodologia proposta, através de levantamentos de campo, nos seguintes contextos, com base em litologias portadoras de U e Th (Ra):
 - a. em contexto tropical úmido típico;
 - b. em contexto de transição para o subtropical;
 - c. em contexto subtropical úmido típico;
 - d. em contexto de transição floresta - savana (cerrado);
 - e. em contexto típico de savana (cerrado);
 - f. em contexto tropical úmido, testar as limitações impostas por relevo acentuado;
 - g. em contexto tropical úmido, testar / adaptar a metodologia para situações onde ciclo erosivo mais recente tenha erodido a cobertura residual das paisagens eluvial e transeluvial, depositando os produtos na paisagem supraqual / aqual;
 - h. em contexto tropical úmido, testar / adaptar a metodologia para o estudo da contaminação por U, Ra e Rn das águas do aquífero freático, e
 - i. elaborar testes comparativos entre os modelos apresentados e modelos baseados em dados gamaespectrométricos, aéreos ou terrestres, em cuja interpretação não seja

considerada a redistribuição dos radionuclídeos gama-emissores durante a fase pedogenética do intemperismo químico.

- 2) Usar ferramentas de geoprocessamento. Deve ser ressaltado que os temas abordados podem ter a maioria dos seus procedimentos automatizados e acelerados, através da utilização de ferramentas de geoprocessamento. Elaboração de modelo digital do terreno, mapa de declividades, levantamentos gamaespectrométricos, distribuição espacial georreferenciada de grandezas físicas e químicas, dados estatísticos e informações derivadas de sensoriamento remoto, são todos aspectos que podem ser integrados em ambiente GIS (**Geographic Information System**). Ou seja, a organização e processamento da grande massa de dados necessária para a modelagem das paisagens, levando a modelos capazes de simular a sua dinâmica espacial, é realidade utilizando-se a tecnologia de informática disponível.

GLOSSÁRIO

Abundância modal – Percentagem (%) de minerais contabilizados a partir de observações de amostras ou da rocha. Abundância normativa, por outro lado, refere-se a percentagem de minerais calculada com base nos teores químicos dos elementos.

Ácidos húmicos – Substâncias orgânicas, complexas, de caráter ácido, constituintes do húmus, principal produto da decomposição do material orgânico do solo com papel ativo na pedogênese.

Ações bioquímicas – Processos ou intemperismo bioquímico, envolvem reações entre os produtos gerados pelos organismos, ou de sua decomposição orgânica e os minerais.

Adensamento por dessecação – Processo de redução dos espaços dos poros do horizonte B latossólico de um perfil de solos pela ação mecânica do fluxo lateral da água, em subsuperfície, contribuindo para o processo de transformação deste horizonte em um horizonte B textural.

Alitização – Processo pedogeoquímico em que toda a sílica e as bases alteráveis de uma rocha silicatada são lixiviadas e o alumínio tem comportamento residual, permanecendo como hidróxido de alumínio insolúvel no perfil de alteração. Quando somente parte da sílica é eliminada, e a outra parte permanece no perfil juntamente com a alumina, formando silicato de alumínio hidratado, temos o processo de **sialitização** (ARRASSOWITZ, 1926, citado por CARVALHO, 1995). Ainda, conforme as velocidades relativas de eliminação das bases e sílica, podemos ter os processos de **monossialitização** e **bissialitização** (vide).

Alteração deutérica – Alteração induzida por soluções residuais, ricas em voláteis, durante os estágios finais da consolidação magmática, de modo que os minerais pré-existentes são atacados e substituídos por novos minerais.

Análise estrutural da cobertura pedológica – Abordagem metodológica em pedologia que, além da diferenciação vertical dos horizontes de solos (perfil de solos), enfoca a diferenciação horizontal dos solos numa vertente.

Anomalias de repartição – O mesmo que concentrações relativas. Resultam da modificação da repartição de determinados elementos em um meio.

Argilo-minerais 1:1 – Refere-se a minerais de argila cuja estrutura é constituída por duas camadas, sendo uma de tetraedros de silício e a outra de octaedros de alumínio, sendo por isso denominados do “tipo 1:1”. Este é o tipo de estrutura dos minerais do grupo da caolinita.

Argilo-minerais 2:1 – Refere-se a minerais de argila cuja estrutura é constituída por três camadas, sendo duas de tetraedros de silício e uma, central, de octaedros de alumínio, sendo por isso denominados do “tipo 2:1”. Este é o tipo de estrutura dos minerais do grupo da montmorillonita.

Atividade específica – Atividade por unidade de massa de um radioisótopo.

Background – Termo do inglês, de uso difundido e que se refere à abundância de um determinado elemento, em uma área sem concentrações anômalas. Quando aplicado a medições de radioatividade traduz a radiação do ambiente, ou “radiação de fundo”.

Becquerel (Bq) – É a unidade de atividade no SI. Um Bq equivale a uma desintegração por segundo (dps). A unidade histórica de atividade é o Curie (Ci), igual a $3,7 \times 10^{10}$ Bq.

Bissialitização - Processo pedogeoquímico de sialitização em que há uma eliminação apenas parcial da sílica e das bases alteráveis, resultando na neoformação de argilo-minerais 2:1 (vide), ou do grupo da montmorillonita, no perfil de alteração.

Cadeias de decaimento radioativo – São seqüências de radionuclídeos gerados a partir de um “elemento pai”, por desintegrações sucessivas, até alcançar um elemento final estável. O ^{238}U e o ^{232}Th são os primeiros membros, ou “pais”, das 2 principais famílias ou cadeias radioativas naturais.

Capacidade de campo – É a quantidade máxima de água retida pelo solo, que não pode mais ser drenada por gravidade, após uma drenagem de 3 a 5 dias.

Catenas de solos – São seqüências de solos, aproximadamente da mesma idade, desenvolvidas a partir de material e condições climáticas similares, porém com características diferentes devido às variações no relevo da encosta e na drenagem.

Curie (Ci) – É a unidade histórica de atividade; $1 \text{ Ci} = 3,7 \times 10^{10} \text{ Bq}$.

Dados gamaespectrométricos – Dados de natureza física comumente relacionados aos elementos U, Th e K, ou quaisquer um dos seus radionuclídeos-filho, caso do U e do Th, obtidos por espectrometria das radiações gama emitidas principalmente pelo ^{214}Bi na cadeia do ^{238}U e, ^{208}Tl na do ^{232}Th , além do ^{40}K .

Decaimento radioativo – Termo que traduz a perda de massa e energia de átomos instáveis pela emissão de partículas alfa, beta e radiação gama.

Detectores integrativos – São emulsões fotográficas e/ou nucleares que podem registrar, na forma de traços, o contato com partículas nucleares. São os detectores mais adequados quando se quer determinar a atividade média de uma fonte radioativa por um longo período de tempo.

Diferido – Em hidrogeologia, o termo diferido se opõe ao termo direto, e qualifica o efeito retardado de um processo, ou seu prolongamento por um certo período de tempo, após o início desse processo.

Dose equivalente - Também chamada dose efetiva, ou dose biológica, além da energia absorvida por unidade de massa (dose absorvida), considera os efeitos biológicos devidos à qualidade das radiações e sua distribuição nos organismos. No SI, tem como unidade o Sievert (Sv).

E-iluviação – Refere-se à ação concorrente dos processos de eluviação e iluviação.

Elementos tipomórficos – São elementos, íons ou compostos químicos, cuja abundância e capacidade de migração controlam um dado processo epigenético, agindo, sobretudo, como barreiras geoquímicas para elementos-traço.

Eluviação – Processo pedogenético que mobiliza tanto material em solução iônica, como em solução coloidal, e, ainda, conduz à remoção pelos fluxos aquosos, verticais e laterais, das partículas mais finas do perfil de alteração.

Equilíbrio radioativo secular – Condição de equilíbrio radioativo numa série ou cadeia de decaimento em que a atividade do pai não cai significativamente durante muitas meias-vidas do filho.

eU – “Urânio equivalente”. Teor de U obtido de maneira indireta, com base em padrões radioativos e no processamento de dados gamaespectrométricos originários do ^{214}Bi . Similarmente são utilizados dados originários do ^{208}Tl para determinar o eTh.

Exposição – Mede a ionização provocada pela radiação em determinada quantidade de matéria. No SI, a unidade é o Coulomb/Kg (C/Kg), e a unidade histórica é o Roentgen (R), igual a $2,58 \times 10^{-4}$ C/Kg.

Geoquímica de paisagens – Especialização da geoquímica cuja linha de abordagem, no estudo da dispersão superficial dos elementos, enfoca os processos de alteração supergênica e seus produtos, bem como as relações espaciais do sistema freático com a atual superfície topográfica do terreno.

Iluviação – Processo pedogenético de deposição, tanto lateral como vertical, de moléculas, íons, colóides e pequenas partículas minerais eluviadas pelos fluxos aquosos.

Liteira vegetal – Do inglês “*litter*”, ou serapilheira, é a camada de detritos orgânicos pouco decompostos, que se acumulam na parte superior do solo em áreas de florestas.

Mineralização do húmus – Processo de destruição de diversos dos componentes do húmus por reações que envolvem a formação de complexos com substâncias inorgânicas do solo.

Modelo litoestrutural – Modelo geológico em que os elementos constitutivos principais são as litologias e as estruturas, bem como suas relações crono-espaciais de interseção.

Monossilitização – Processo pedogeoquímico de sialitização em que há eliminação parcial da sílica alterável e total das bases, resultando na neoformação de argilo-minerais 1:1 (vide), ou grupo das caolinitas, no perfil de alteração.

Processos radioativos – Quaisquer processos que envolvam reações nucleares espontâneas.

Processos supergênicos – Todos os processos naturais de alteração que atuam próximo à superfície, sobre rochas consolidadas pré-existentes, comumente através de soluções descendentes.

Radiações ionizantes – Radiações que tem a capacidade de ionizar a matéria em diferentes graus, mediante processos primários ou secundários de interação.

Radioanomalias – Concentrações anômalas que envolvem a presença de elementos radioativos.

Recarga oculta – Água que se infiltra, durante a primeira parte das estação chuvosa, e que serve somente para satisfazer o déficit de umidade. Recarga visível, por outro lado, é a água livre, susceptível de participar do escoamento.

Recuo alfa – Movimento, da ordem de nanômetros ($\text{nm} = 10^{-9} \text{ m}$), efetuado em um determinado meio por um radioisótopo como consequência da desintegração do seu precursor.

Regime hídrico – Termo empregado para caracterizar as variações anuais médias das condições climáticas e/ou hidrogeológicas.

Regolito – É a camada superficial, geralmente friável, proveniente do intemperismo, que recobre a rocha.

Resistatos – Termo que se refere a minerais resistentes ao intemperismo químico.

Rubefação – No ambiente de intemperismo, refere-se ao processo de liberação do ferro dos minerais primários das rochas e sua dispersão, sendo em geral responsável pela cor pardo-avermelhada dos materiais de alteração.

Sistema pedológico de transformação – É um sistema caracterizado por coberturas pedológicas com diferenciação vertical e horizontal, resultantes de transformações progressivas das cobertura iniciais.

“Solum” – Equivale aos horizontes A e B de um perfil de solos.

Subdivisão isovolumétrica – Processo de divisão contínua do material rochoso original e/ou do saprólito, sem alteração de volume, como conseqüência dos processos de alteração supergênia, resultando em um aumento muito significativo da superfície específica do material.

Superfície específica – É a soma das superfícies de todas as partículas contidas na unidade de volume de um material. A unidade usual é cm^2/cm^3 .

Tempo geológico – Escala cronológica que envolve grandes períodos de tempo, em geral de milhões a bilhões de anos.

Tempo pedológico – Escala cronológica compatível com o tempo necessário para o desenvolvimento de perfis de solos, envolvendo, em geral, períodos de milhares a alguns milhões de anos.

Toposseqüências – São seqüências de solos relacionadas, que diferem umas das outras devido a topografia como fator de formação de solos, podendo ter diferentes idades de acordo com a posição na vertente.

REFERÊNCIAS

- ADAMS, J. A. S.; RICHARDSON, K. A. Thorium, uranium and zirconium concentrations in bauxite. **Economic Geology**, V. 55, p 1653-1675, 1960.
- ADLER, H. H. The genesis of uranium ores. 4 th. Inter-American Symposium on the Peaceful Application of Nuclear Energy. Cidade do México, p. 241 – 252, 1962.
- AKERBLOM, G.; ANDERSSON, P.; CLAVENSJO, B. Soil gas radon – a source for indoor radon daughters. **Radiation Protection Dosimetry**, v. 7, 1 - 4, p 49-54, 1984.
- APTE, M. G., PRICE, P. N., NERO, A. V.; REVZAN, K.L. Predicting New Hampshire indoor radon concentrations from geologic information and other covariates. **Environmental Geology**, v. 37, n. 3, p. 181 – 194, 1999.
- ASWATHANARAYANA, V. **Geoenvironment** – an introduction. Rotterdam: A. A. Balkema, 1995.
- AUROUZE, J. Les conditions d'existence des nappes aquifères et la notion de piège aquifère **Sciences de la Terre**, v. 11, n. 1, p 19-40, 1966.
- BACH, S. W. **Radioatividade e radiação**. Curitiba: UFPR, Departamento de Química / Departamento de Farmácia, 1987, 149 p.
- BARROS, O., N., F. **Análise estrutural e cartográfica detalhada de solos em Marília, Estado de São Paulo: ensaio metodológico**. São Paulo, 1985. Dissertação (Mestrado em Geografia Física) – Departamento de Geografia FFLCH – Universidade de São Paulo.
- BARTON, P. B. Fixation of uranium in the oxidized base metal ores of the Goodsprings District, Clark Co., Nevada. **Economic Geology**, v. 51, n 2, p. 178 – 191, 1956.
- BEAN, J. A.; ISACSON, P.; HAUSLER, W. J.; KOHLER, J. Drinking water and cancer incidence in Iowa. (a) – Trends and incidence by source of drinking water and size of municipality. **American Journal of Epidemiology**, v. 116, p. 912 - 923, 1982.
- BEAN, J. A.; ISACSON, P.; HAHNE, R. M. A.; KOHLER, J. Drinking water and cancer incidence in Iowa. (b) – Radioactivity in drinking water. **American Journal of Epidemiology**, v. 116, p. 924 - 932, 1982.
- BIGARELLA, J. J.; BECKER, R. D.; PASSOS, E. **Estrutura e origem das paisagens tropicais e subtropicais**. Florianópolis: Ed. da UFSC, 1996. v. 2.
- BINNS, D. A. C.; GOUVEA, V. A.; MELO, V. P. Radon concentration in brazilian environments – preliminary data. In: ENCONTRO NACIONAL DE APLICAÇÕES NUCLEARES, 3. 1995. Águas de Lindóia. **Anais...**1995. v.1, p. 316 – 319.

- BONOTTO, D. M. The implications of groundwater – weathered profile interactions on the modification of activity ratios in the U-238 and Th-232 decay series: the case of two Brazilian areas. Rio Claro: UNESP – Departamento de Petrologia e Metalogenia, 1994. Publicação interna.
- BONOTTO, D., M.; LIMA, J., L., N. A contribuição das rochas do Planalto de Poços de Caldas na transferência de Rn-222 para as águas. In: ENCONTRO NACIONAL DE APLICAÇÕES NUCLEARES, 3. 1995, Águas de Lindóia. **Anals...** 1995. v. 1.
- BONOTTO, D., M. **Comportamento hidrogeoquímico do ^{222}Rn e isótopos de urânio ^{238}U e ^{234}U sob condições controladas de laboratório e em sistemas naturais.** Rio Claro, 1996, 223 p. (Tese de Livre Docência) - Instituto de Geociências e Ciências Exatas da Universidade Estadual Paulista.
- BOROVEC, Z.; KRIBEK, B.; TOLAR, V. Sorption of uranyl by humic acids. **Chemical Geology**, v. 27, p. 39-46, 1979.
- BOROVEC, Z. The adsorption of uranyl species by fine clay. **Chemical Geology**, v. 32, p. 45-58, 1981.
- BOSSUS, D. A. W. Emanating power and specific surface area. **Radiation Protection Dosimetry**, v. 7, n. 1 - 4, p. 73-76, 1984.
- BOULET, R.; LUCAS, Y.; FRITSCH, E.; PAQUET, H. **Géochimie des paysages: le rôle des couvertures pédologiques.** Coll. "Sédimentologie et Géochimie de la Surface", à la mémoire de Georges Millot, 1993, p. 55-76.
- CAMARGO, M. N., KLAMT, E.; KAUFFMAN, J. H. Classificação de solos usada em levantamentos pedológicos no Brasil. Separata de: **Boletim Informativo, Sociedade Brasileira da Ciência do Solo.** Campinas, v. 12, n.1, p. 11 - 33, 1987.
- CARVALHO, I. G. **Fundamentos da geoquímica dos processos exógenos.** Salvador: Bureau Gráfica e Editora, 1995, 213 p.
- CEDERSTROM, D. J. **Água subterrânea** – uma introdução. Rio de Janeiro: Centro de Publicações Técnicas da Aliança, 1964, 280 p.
- CHOUBEY, V. M.; RAMOLA, R. C. Correlation between geology and radon levels in groundwater, soil and indoor air in Bhilangana Valley, Garhwal Himalaya, India. **Environmental Geology**, v. 32, n. 4, p. 258 - 262, 1997.
- CHRISTOFOLETTI, A. **Análise de sistemas em geografia.** São Paulo: Hucitec, 1979, 106 p.
- COMISSÃO DE SOLOS. Levantamento de reconhecimento dos solos do estado de São Paulo. Rio de Janeiro: **CNEPA, Ministério da Agricultura**, Bol. 12, 1960, 350 p.

- CUSTODIO, E.; LLAMAS, M. R. **Hidrologia subterranea**. Barcelona: Ediciones Omega, Segunda Edición, 1983, v. 1 e 2, 2347 p.
- DEMATTÊ, J. L. I. **Curso de gênese e classificação de solos**. Piracicaba: USP – Departamento Editorial do Centro Acadêmico “Luiz de Queiroz”, 1983, partes 1 e 2 .
- DICKSON, B. L.; FRASER, S. J.; KINSEY-HENDERSON, A. Interpreting aerial gamma-ray surveys utilising geomorphological and weathering models. **Journal of Geochemical Exploration**, v. 57, p. 75 - 88, 1996.
- DICKSON, B. L.; SCOTT, K. M. Interpretation of aerial gamma-ray surveys adding the geochemical factors. **AGSO Journal of Australian Geology & Geophysics**, v. 17, n. 2, p. 187 - 200, 1997.
- DISSANAYAKE, C. B. Assessing environmental geochemistry and health in the tropics. In: BERGER, A. R.; IAMS, W. J. (Ed.). **Geoindicators**. Rotterdam: A. A. Baikema, 1996.
- FERRAIOLI, R. N. M.; FERREIRA, Z. C. A. **Comportamento geoquímico de U₃O₈, Mo, Y, Ga, V e Zr na seqüência laterito-bauxítica de Croantá-Paragominas (PA)**. Belém: Nuclebrás. EBEL, 1987.
- FLEXSER, S.; WOLLENBERG, H. A.; SMITH, A. R. Distribution of radon sources and effects on radon emanation in granitic soil at Ben Lomond, California. **Environmental Geology**, v. 22, p. 162 - 177, 1993.
- FORTESCUE, J. A C. **Environmental geochemistry**. New York: Springer-Verlag, 1980, 347 p.
- FRIEDLANDER, G.; KENNEDY, J. W.; MILLER, J. M. **Nuclear and radiochemistry**. 2nd ed. New York: John Wiley & Sons, 1964, 585 p.
- GASCOYNE, M. Geochemistry of the actinides and their daughters. In: IVANOVICH, M.; HARMON, R., S. (Ed.). **Uranium series disequilibrium: Applications to environmental problems**. Oxford: Clarendon Press, 1982, 571 p.
- GERRARD, J. **Soil Geomorphology – An Integration of Pedology and Geomorphology**. London: Chapman & Hall , 1992, 269 p.
- GRANIER, C. L. **Introduction a la prospection géochimique des gîtes métallifères**. Paris: Masson et Cie., Éditeurs, 1973, 143 p.
- GREEMAN, D. J.; ROSE, A. W. Factors controlling the emanation of radon and thoron in soils of the eastern U. S. A. **Chemical Geology**, v. 129, p. 1 - 14, 1996.

- GUNDERSEN, L. C. S.; SCHUMANN, R. R.; OTTON, J. K.; DUBIEL, R. F.; OWEN, D. E.; DICKINSON, K. A. Geology of radon in the United States. Geological Society of America, **Special Paper**, n. 271, p. 1-16, 1992.
- GUTHRIE, V. A.; KLEEMAN, J. D. Changing uranium distributions during weathering of granite. **Chemical Geology**, v. 54, p. 113 - 126, 1986.
- HANSELMAN, D.; LITTLEFIELD, B. **MATLAB 5 – Guia do usuário**. Makron Books do Brasil, São Paulo, 1999, 413 p.
- HARMON, R., S.; ROSHOLT, J., N. Igneous rocks. In: IVANOVICH, M.; HARMON, R., S. (Ed.). **Uranium series disequilibrium: Applications to environmental problems**. Oxford: Clarendon Press, 1982, 571 p.
- HEINRICH, E., W. **Mineralogy and geology of radioactive raw materials**. New York: Mc Graw Hill, 1958, 654 pp.
- HUDAK, P. F. Distribution of indoor radon concentration and uranium-bearing rocks in Texas. **Environmental Geology**, v. 28, n. 1, p. 29 - 33, 1996.
- IBGE. **Geografia do Brasil**. Rio de Janeiro: Centro de Serviços Gráficos, 1977.
v. 1: Região Norte.
- IVANOVICH, M. Spectroscopic methods. In: IVANOVICH, M.; HARMON, R., S. (Ed.). **Uranium series disequilibrium: Applications to environmental problems**. Oxford: Clarendon Press, 1982, 571 p.
- KRAUSKOPF, K. B. **Introdução à geoquímica**. São Paulo: Polígono, 1972, v. 2.
- KNOLL, G. F. **Radiation detection and measurement**. New York: John Wiley & Sons, 1979, 816 p.
- LANGMUIR, D. Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits. **Geochimica et Cosmochimica Acta.**, v. 42, p. 547 – 569, 1978.
- LELONG, F. Régime des nappes phréatiques contenues dans les formations d'altération tropicale. Conséquences pour la pédogenèse. **Sciences de la Terre**, v.11, n. 2, p 201-247, 1966.
- LIMA, J. L. N.; BONOTTO, D. M. Etapas analíticas para mensuração de radônio-222 e uso na avaliação da radioatividade das águas de Águas da Prata (SP). Rio Claro: UNESP – Departamento de Petrologia e Metalogenia, [1994].

- LUCAS, Y.; CHAUVEL, A. Soil formation in tropically weathered terrains. In: BUTT, C. R. M.; ZEEGERS, H. (Ed.). **Regolith Exploration Geochemistry in Tropical and Subtropical Terrains**. Amsterdam: Elsevier, 1992, p. 57-77, v.4: Handbook of Exploration Geochemistry.
- MEGUMI, K.; MAMURO, T. Emanation and exhalation of radon and thoron gases from soil particles. **Journal of Geophysical Research**, v. 79, n. 23, p. 3357 - 3360, 1974.
- MELFI, A. J.; PEDRO, G. Estudo geoquímico dos solos e formações superficiais do Brasil. Parte 1 – Caracterização e repartição dos principais tipos de evolução pedogeológica. **Revista Brasileira de Geociências**, v. 7, p. 271 - 286, 1977.
- _____. Parte 2 – Considerações sobre os mecanismos geoquímicos envolvidos na alteração superficial e sua repartição no Brasil. **Revista Brasileira de Geociências**, v. 8, p 11 - 22, 1978.
- MONIZ, A. C. Evolução de conceitos no estudo da gênese de solos. **Revista Brasileira de Ciência de Solos**. Campinas, v. 20 p. 349 – 362, 1996.
- NAZAROFF, W. W. Measurement techniques. In: NAZAROFF, W. W.; NERO, A. V. (Ed.). **Radon and its decay products in indoor air**. New York: John Wiley & Sons, 1988, 518 p.
- NAZAROFF, W. W.; DOYLE, S. M.; NERO, A. V.; SEXTRO, R. G. (a). Radon entry via potable water. In: NAZAROFF, W. W.; NERO, A. V. (Ed.). **Radon and its decay products in indoor air**. New York: John Wiley & Sons, 1988, 518 p.
- NAZAROFF, W. W.; MOED, B. A.; SEXTRO, R. G. (b). Soil as a source of indoor radon: generation, migration, and entry. In: NAZAROFF, W. W.; NERO, A. V. (Ed.). **Radon and its decay products in indoor air**. New York: John Wiley & Sons, 1988, 518 p.
- NERO, A. V.; NAZAROFF, W. W. Characterising the source of radon indoors. **Radiation Protection Dosimetry**, v. 7, n. 1 - 4, p. 23 - 29, 1984.
- NERO, A. V. Radon and its decay products in indoor air: an overview. In: NAZAROFF, W. W.; NERO, A. V. (Ed.). **Radon and its decay products in indoor air**. New York: John Wiley & Sons, 1988, 518 p.
- NIMER, E. Clima. In: IBGE. **Geografia do Brasil**. Rio de Janeiro: Centro de Serviços Gráficos, 1977. v. 1: Região Norte, p. 39 – 58.
- NUHFER, E. B.; PROCTOR, R. J.; MOSER, P. H. **The citizens' guide to geologic Hazards**, Arvada, CO: The American Institute of Professional Geologists, 1993, 134 p.

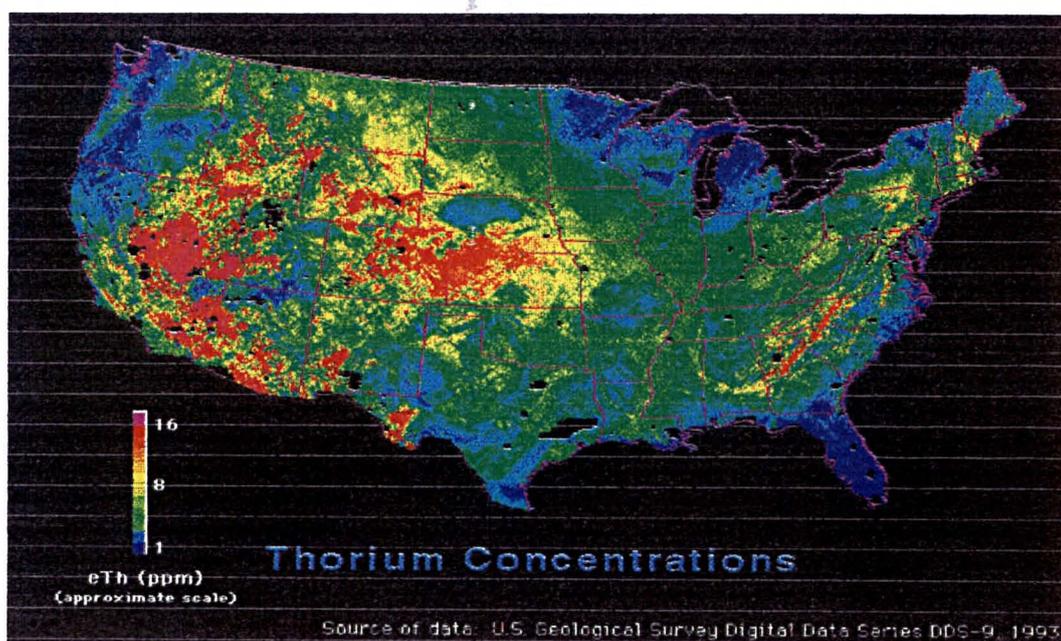
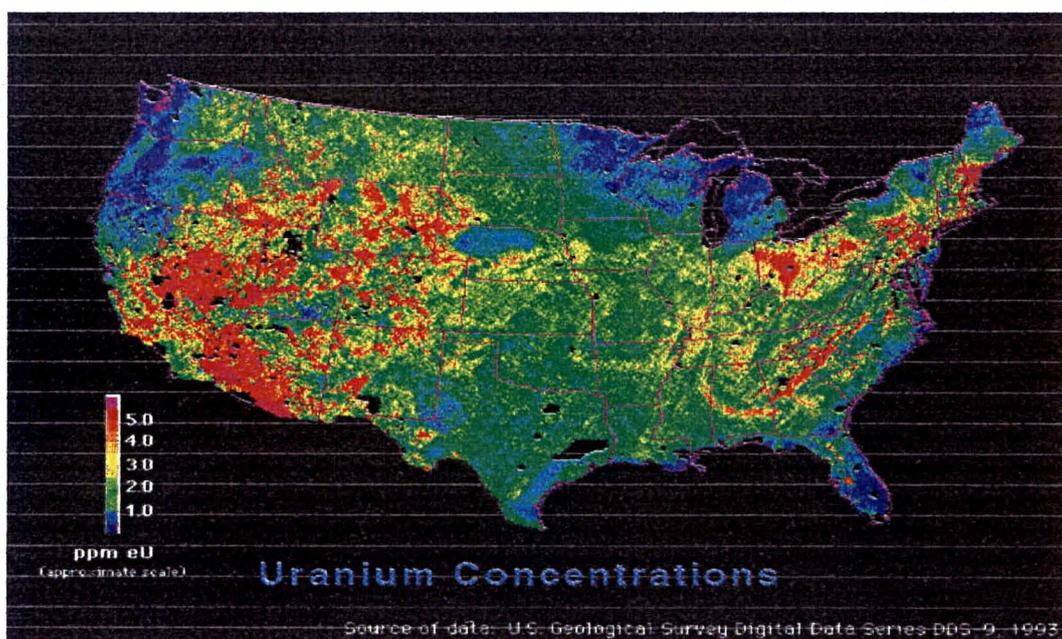
- OLIVEIRA, J.; ASSUMPÇÃO, S. P.; MAZILLI, B.; PECEQUILO, B. R. S.; SAMPA, M. H. O.; BAMBALAS, E. Determinação dos níveis de radioatividade natural presente nas águas utilizadas para abastecimento público no estado de São Paulo. In: ENCONTRO NACIONAL DE APLICAÇÕES NUCLEARES, 4., 1997, Poços de Caldas. **Anais....** Rio de Janeiro, 1997.
- PINTO-COELHO, C. V. **O granito Serra do Carambeí – PR e as anomalias uraníferas Associadas.** Brasília, 1986, 308 p. Dissertação (Mestrado). Departamento de Geociências, Universidade de Brasília.
- PURTSCHELLER, F.; PIRCHL, T.; SIEDER, G.; STINGL, V.; TESSADRI, T.; BRUNNER, P.; ENNMOSE, O.; SCHNEIDER, P. Radon emanation from giant landslides of Koefels (Tyrol, Austria) and Langtang Himal (Nepal). **Environmental Geology**, v. 26, p. 32 - 38, 1995.
- RAGLAND, P. C.; BILLINGS, G. K.; ADAMS, J. A. S. Chemical fractionation and its relationship to the distribution of thorium and uranium in a zoned granite batholith. **Geochimica et Cosmochimica Acta**, v. 31, n. 1, p. 17 - 33, 1967.
- REBELO, A., M., A.; JACHIC, J.; BITTENCOURT, A., V., L.; SOUZA, N., J., M. Condicionamento climático – geológico na concentração de radônio em águas subterrâneas. In: ENCONTRO NACIONAL DE APLICAÇÕES NUCLEARES, 4., 1997, Poços de Caldas. **Anais....** Rio de Janeiro, 1997.
- ROSE, A. W.; HAWKES, H. E.; WEBB, J. S. **Geochemistry in mineral exploration.** London: Academic Press, 1979, 2nd ed., 657 p.
- RUELLAN, A.; DOSSO, M. **Regards sur le sol.** Universités Francophones. Foucher Aupelf, 1993, 191 p.
- SALOMÃO, F. X. T. **Processos erosivos lineares em Bauru (SP):** Regionalização cartográfica aplicada ao controle preventivo urbano e rural. São Paulo, 1994, 200 p. Tese (Doutorado em Geografia Física). Departamento de Geografia, FFLCH – Universidade de São Paulo.
- SAMAMA, J. C. Ore deposits and continental weathering: a contribution to the problem of geochemical inheritance of heavy metal contents of basement areas and of sedimentary basins. **Anais do VIII Cong. Séd. Intern., Heidelberg**, 1971.
- SANTOS, L., J., C. **Estudo morfológico da toposseqüência da Pousada da Esperança, em Bauru, SP:** subsídio para a compreensão da gênese, evolução e comportamento atual dos solos. São Paulo, 1995. Dissertação (Mestrado em Geografia Física). Departamento de Geografia, FFLCH – Universidade de São Paulo.
- SANTOS, L., J., C. **Pedogênese no topo do platô de Bauru (SP):** o caso da bacia do Córrego da Ponte Preta. São Paulo, 2.000. Tese (Doutorado em Geografia Física). Departamento de Geografia, FFLCH, Universidade de São Paulo.
- SCHOELLER, H. **Les eaux souterraines.** Paris: Masson & Cie, 1962, 642 p.

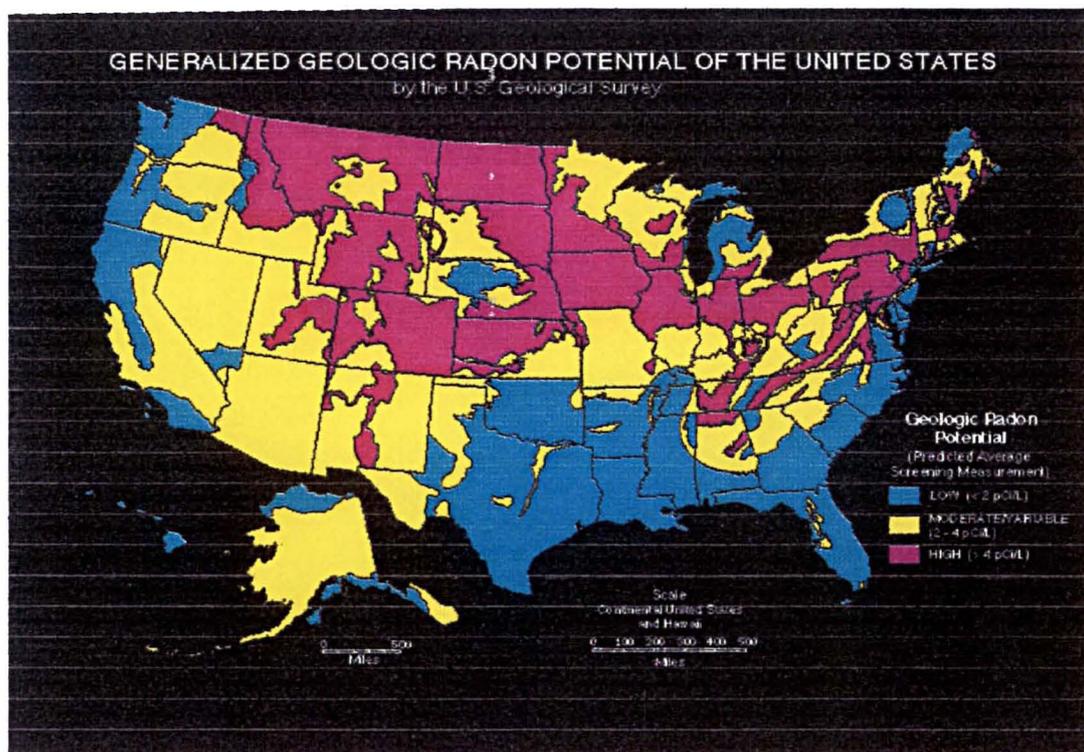
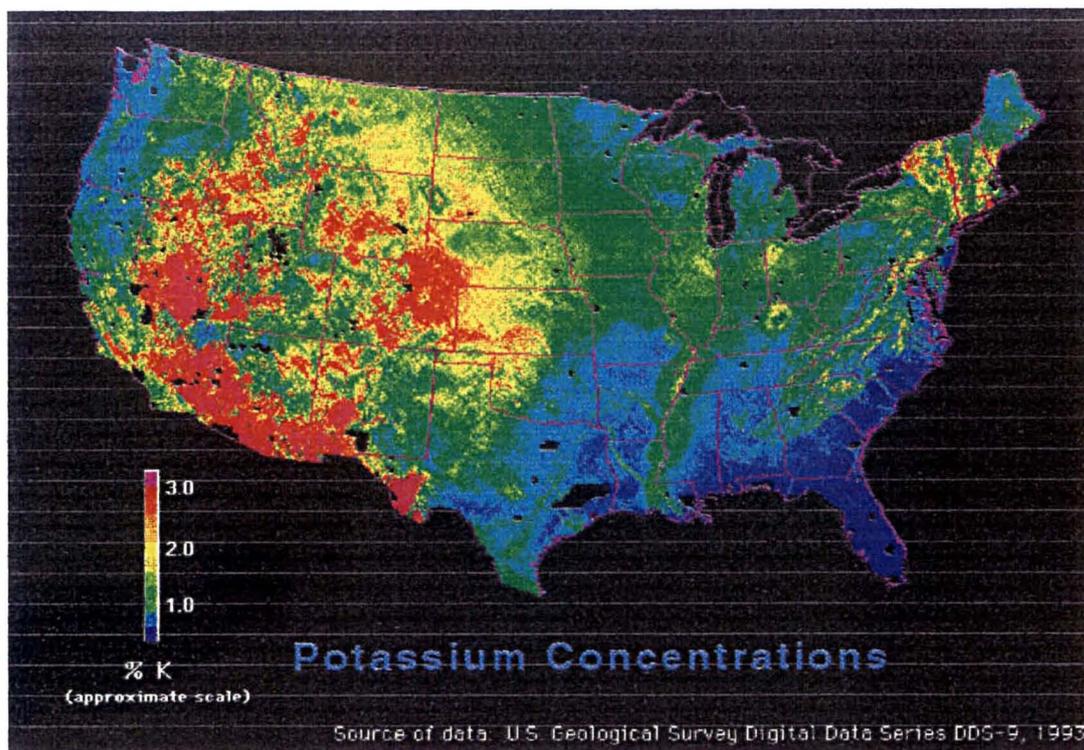
- SEMKOW, T. M. Recoil-emanation theory applied to radon release from mineral grains. **Geochimica et Cosmochimica Acta**, v. 54, p. 425 - 440, 1990.
- SHIRAV, M.; VULKAN, V. Mapping radon-prone areas – a geophysical approach. **Environmental Geology**, v. 31, n. 3/4, p. 167 - 173, 1997.
- SILVA, D. C. **Espectrometria de raios gama aplicada na classificação de granitóides**. São Paulo, 1994, 83 p. Dissertação (Mestrado) - Departamento de Geofísica do Instituto Astronômico e Geofísico da Universidade de São Paulo.
- SILVA, L. G. T.; JIMENEZ–RUEDA, J. R.; BONOTTO, D. M.; MORENO, M. M. S.; PACCOLA, A. A. Caracterização das coberturas de alteração superficial que ocorrem na região de Marabá-PA. **Boletim do Museu Paraense Emílio Goeldi**, série Ciências da Terra, v. 7, p. 309 – 329, 1995.
- SILVA, L. M. C.; MENDES, R. L. R. Projeto UFPA: Estudo de radioatividade em Monte Alegre. In: WORKSHOP DE GEOFÍSICA APLICADA AO MEIO AMBIENTE, 1, 1996, Belém. **Anais...Belém**, 1996.
- SINNAEVE, J.; CLEMENTE, G.; O'RIORDAN, M. The emergence of natural radiation. **Radiation Protection Dosimetry**, v. 7, n. 1 - 4, p. 15-17, 1984.
- SKLAR, F. H.; COSTANZA, R. The development of spatial models for landscape ecology: a review and prognosis. In: TURNER, M. G.; GARDNER, R. H. (Ed.). **Quantitative methods in landscape ecology**. New York: Springer – Verlag, 1991, 536 p.
- SOLIANI, C.; POUPEAU, G. Contaminação radioativa de interiores. São Leopoldo - RS: **Estudos Tecnológicos, Arquitetura**, v. 16, p. 29 - 48, 1993.
- SOUZA, J. L. **Anomalias aerogamaespectrométricas (K, U e Th) da quadrícula de Araras (SP) e suas relações com processos pedogenéticos e fertilizantes fosfatados**. Curitiba, 1998, 218 p. Dissertação (Mestrado) - Departamento de Geologia do Setor de Ciências da Terra, Universidade Federal do Paraná.
- STRANDEN, E.; KOLSTAD, A. K.; LIND, B. The influence of moisture and temperature on radon exhalation. **Radiation Protection Dosimetry**, v. 7, n. 1 - 4, p. 55 - 58, 1984.
- TIEH, T. T.; LEDGER, E. B.; ROWE, M. W. Release of uranium from granitic rocks during in situ weathering and initial erosion (central Texas). **Chemical Geology**, v. 29, p. 227 - 248, 1980.
- TRICART, J. Le modelé des régions chaudes: forêts et savanes. In: TRICART, J.; CAILLEUX. **Traité de géomorphologie**, Paris: Société D'Édition D'Enseignement Supérieur, 1965, v. 5.
- TSCHAPEK, M. W. **El agua en el suelo**. Buenos Aires: Coleccion Cientifica del I. N. T. A, 1959, 402 p.

- VIDAL–TORRADO, P.; LEPSCH, I. F.; CASTRO, S. S.; COOPER, M. Pedogênese de uma seqüência Latossolo – Podzólico na borda de um platô na Depressão Periférica Paulista. **Revista brasileira de ciência do Solo**, Viçosa, Minas Gerais, 1999, v. 23 p. 909 - 921.
- VIERS, J.; DUPRÉ, B.; POLVÉ, M.; SCHOTT, J.; DANDURAND, J. L.; BRAUN, J. L. Chemical weathering in the drainage basin of a tropical watershed (Nsimi-Zoetele site, Cameroon): comparison between organic-poor and organic-rich waters. **Chemical Geology**, v. 140, p. 181 - 206, 1997.
- VINOGRADOV, A. P. **The geochemistry of rare and dispersed chemical elements in soils**. New York: Consultants Bureau, 1959, p 187.
- WEIJDEN, C. H.; WEIJDEN, R. D. Mobility of major, minor and some redox-sensitive trace elements and rare-earth elements during weathering of four granitoids in central Portugal. **Chemical Geology**, v. 125, p. 149 - 167, 1995.
- WILFORD, J. R.; BIERWIRTH, P. N.; CRAIG, M. A. Application of airborne gamma-ray spectrometry in soil / regolith mapping and applied geomorphology. **AGSO Journal of Australian Geology & Geophysics**, v. 17, n. 2, p. 201 – 216, 1997.

ANEXOS

01 – MAPAS DE eU, eTh, K E POTENCIAL GEOLÓGICO DE RADÔNIO DOS ESTADOS UNIDOS (Obtidos pela "internet"; URL: <http://energy.cr.usgs.gov/radon/DDS-9.html>, e Server information: webman@energy.cr.usgs.gov)





02 - ATIVIDADES RELATIVAS DO ^{234}U , ^{230}Th E ^{226}Ra

Os cálculos e traçado das curvas de atividades relativas do ^{234}U , ^{230}Th e ^{226}Ra , da série do ^{238}U , respectivamente curvas $B(t) / A_0$, $C(t) / A_0$ e $D(t) / A_0$, com base no decaimento do ^{238}U , puro no instante inicial, foram obtidos utilizando-se o “software MATLAB5” (HANSELMAN; LITTLEFIELD, 1999), conforme programações específicas para cada radionuclídeo mencionado, a partir das seguintes fórmulas:

$$\lambda_1 A = \lambda_2 B = \lambda_3 C = \lambda_4 D$$

$$A = A_0 e^{-\lambda_1 t}$$

$$B(t) = [\lambda_1 A_0 / (\lambda_2 - \lambda_1)] [(e^{-\lambda_1 t}) - (e^{-\lambda_2 t})]$$

$$C(t) = A_0 \lambda_1 \lambda_2 \{ [(e^{-\lambda_1 t}) / (\lambda_2 - \lambda_1) (\lambda_3 - \lambda_1)] + [(e^{-\lambda_2 t}) / (\lambda_1 - \lambda_2) (\lambda_3 - \lambda_2)] + [(e^{-\lambda_3 t}) / (\lambda_1 - \lambda_3) (\lambda_2 - \lambda_3)] \}$$

$$D(t) = A_0 \lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 \{ [(e^{-\lambda_1 t}) / (\lambda_2 - \lambda_1) (\lambda_3 - \lambda_1) (\lambda_4 - \lambda_1)] + [(e^{-\lambda_2 t}) / (\lambda_1 - \lambda_2) (\lambda_3 - \lambda_2) (\lambda_4 - \lambda_2)] + [(e^{-\lambda_3 t}) / (\lambda_1 - \lambda_3) (\lambda_2 - \lambda_3) (\lambda_4 - \lambda_3)] + [(e^{-\lambda_4 t}) / (\lambda_1 - \lambda_4) (\lambda_2 - \lambda_4) (\lambda_3 - \lambda_4)] \}$$

Sendo:

A_0 = atividade do ^{238}U no tempo inicial ($t = 0$);

λ_1 = λ do ^{238}U ;

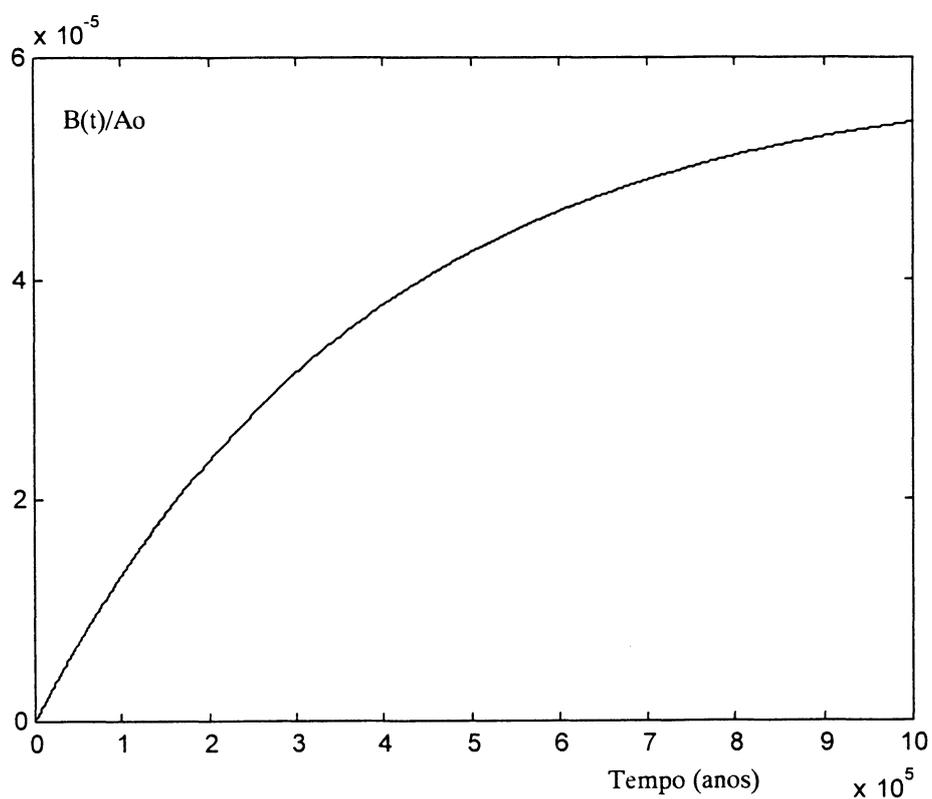
λ_2 = λ do ^{234}U ;

λ_3 = λ do ^{230}Th , e

λ_4 = λ do ^{226}Ra .

Evolução Temporal da Atividade Relativa do ^{234}U

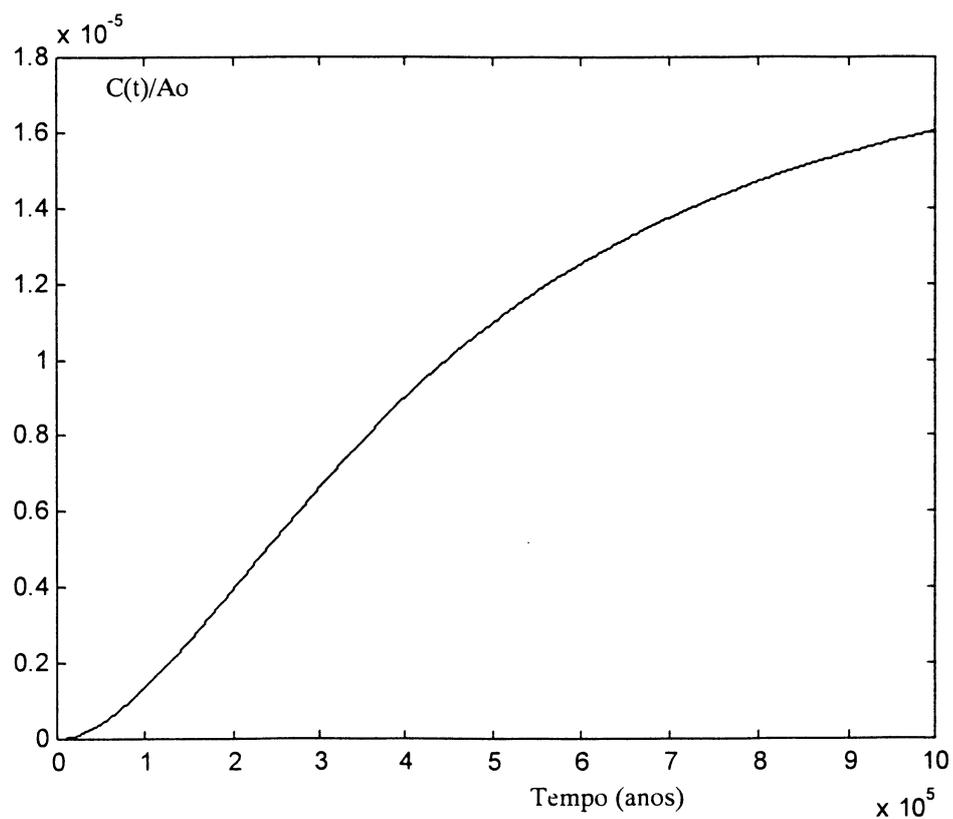
```
function s=blat(t)
% Evolução temporal de B(t)
la1=1.5068*10^(-10);
la2=2.567*10^(-6);
s=(exp(-la1*t)-exp(-la2*t))*la1/(la2-la1);
return
end;
```



Evolução Temporal da Atividade Relativa do ^{230}Th

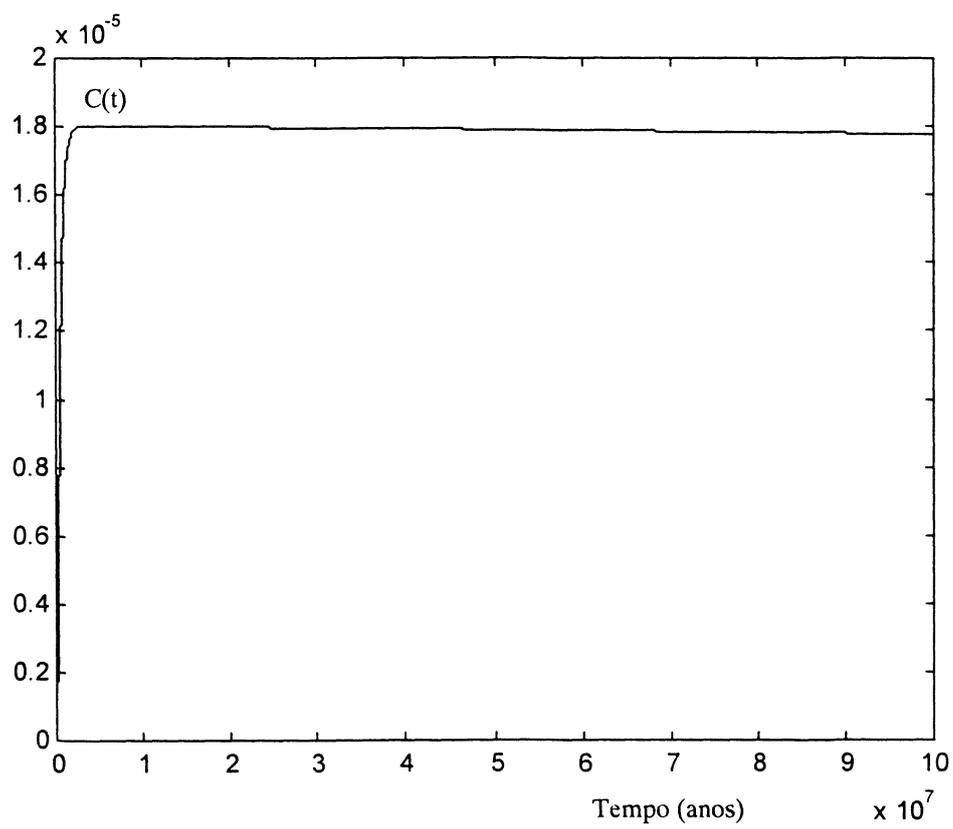
```
function s=clat(t)
% Evolução temporal de C(t)
la1=1.5068*10^(-10);
la2=2.567*10^(-6);
la3=8.3512*10^(-6);
a213=(la2-la1)*(la3-la1);
a123=(la1-la2)*(la3-la2);
a132=(la1-la3)*(la2-la3);
s=(exp(-la1*t)/a213+exp(-la2*t)/a123+exp(-la3*t)/a132)*la1*la2;
return;
end;
```

```
t=0:1000:10^6;
yclat=clat(t);
plot(t,yclat)
```



Evolução Temporal da Atividade Relativa do ^{230}Th (10^7 anos)

```
» t=0:1000:10^8;  
» yclat=clat(t);  
» plot(t,yclat)  
»
```



Evolução Temporal da Atividade Relativa do ^{226}Ra

```
function s=dlat(t)
% Evolução temporal de D(t)
% Concentração do Radio-226 da Cadeia do Uranio-238
la1=1.5068*10^(-10);
la2=2.567*10^(-6);
la3=8.3512*10^(-6);
la4=4.3594*10^(-4);
a234=(la2-la1)*(la3-la1)*(la4-la1);
a134=(la1-la2)*(la3-la2)*(la4-la2);
a124=(la1-la3)*(la2-la3)*(la4-la3);
a123=(la1-la4)*(la2-la4)*(la3-la4);
s1=exp(-la1*t)/a234 + exp(-la2*t)/a134;
s2=exp(-la3*t)/a124 + exp(-la4*t)/a123;
s=(s1+s2)*la1*la2*la3;
return;
end;
```

```
dlat(1)
```

```
ans =
```

```
5.8043e-022
```

```
» dlat(0)
```

```
ans =
```

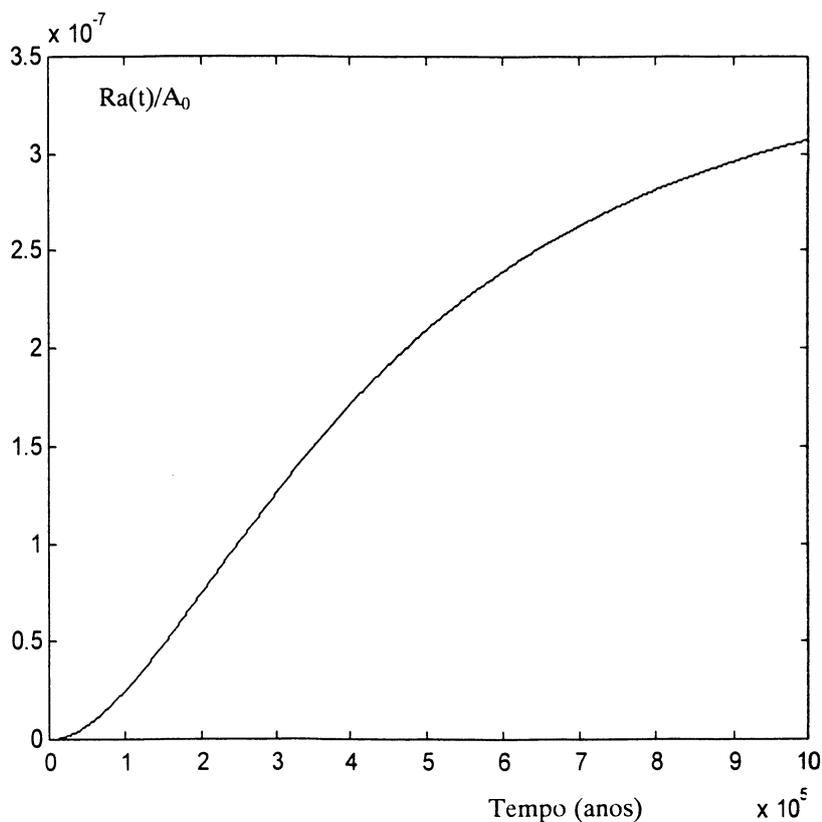
```
0
```

```
» t=0:1000:10^6;
```

```
» ydlat=dlat(t);
```

```
» plot(t,ydlat)
```

```
»
```



```

function s=alat(t)
% Evolução temporal do U-238
la1=1.5068*10^(-10);
s=exp(-la1*t);
return;
end;

function s=equilisec(t,n)
% Evolução temporal de D(t)
% Concentração do Radio-226 da Cadeia do Uranio-238
la1=1.5068*10^(-10);
la2=2.567*10^(-6);
la3=8.3512*10^(-6);
la4=4.3594*10^(-4);
desecc3=la3*clat(t)/la4;
desecc2=la2*blat(t)/la4;
desecc1=la1*alat(t)/la4;
if n==1
    s=desecc1;
end
if n==2
    s=desecc2;
end
if n==3
    s=desecc3;
end
return
end

```

$$D(t) = dlat(t) = Ra^{226}(t)$$

```

» dlat(1000000);          ans = 3.0712e-007
» equilisec(1000000,1);  ans = 3.4559e-007
» equilisec(1000000,2);  ans = 3.1908e-007
» equilisec(1000000,3);  ans = 3.0734e-007

» dlat(500000);          ans = 2.0895e-007
» equilisec(500000,1);   ans = 3.4562e-007
» equilisec(500000,2);   ans = 2.4987e-007
» equilisec(500000,3);   ans = 2.0973e-007

```