

UNIVERSIDADE ESTADUAL PAULISTA
Instituto de Geociências e Ciências Exatas
Câmpus de Rio Claro

Migração de ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas superficiais e
subterrâneas no Complexo Alcalino do Barreiro de
Araxá (MG)

Luís Henrique Mancini

Orientador: Prof. Dr. Daniel Marcos Bonotto

Tese de Doutorado elaborada junto ao Curso de
Pós-Graduação em Geociências - Área de
Concentração em Geociências e Meio-Ambiente
como parte dos requisitos para obtenção do Título
de Doutor em Geociências.

Rio Claro (SP)

2002

551.9 Mancini, Luís Henrique
M269m Migração de ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas
superficiais e subterrâneas no Complexo Alcalino do Barreiro, Araxá
(MG) / Luís Henrique Mancini.-- Rio Claro : [s.n.], 2002.

168 f.

Tese (Doutorado) – Universidade Estadual Paulista,
Instituto de Geociências e Ciências Exatas

Orientador: Daniel Marcos Bonotto

1. Geoquímica. 2. Rádio. 3. Isótopos. 4. Sólidos em
suspensão. 5 Sedimento I. Título

Ficha Catalográfica elaborada pela STATI – Biblioteca da UNESP - Campus de Rio Claro/SP

Banca Examinadora

Prof. Dr. Daniel Atencio

Prof. Dr. Luiz Carlos Ruiz Pessenda

Prof. Dr. Antônio Celso de Oliveira Braga

Prof. Dr. Mario Luís Assine

Prof. Dr. Daniel Marcos Bonotto

Luís Henrique Mancini

Rio Claro, 15 de Outubro de 2002.

Resultado : APROVADO

Aos meus tios Antônio Vicente e Maria Nadir

À Helena com carinho

“A luta contra o erro tipográfico tem algo de homérico. Durante a revisão os erros se escondem, fazem-se positivamente invisíveis. Mas assim que o livro sai, tornam-se visibilíssimos, verdadeiros sacis a nos botar a língua em todas as páginas. Trata-se de um mistério que a ciência ainda não conseguiu decifrar...”.

Monteiro Lobato

“Durante toda a história da humanidade, a passagem do tempo sempre foi vista com um misto de fascínio e terror. Como todos os seres vivos, nós nascemos, atingimos a maturidade, procriamos e morremos. Mas, aparentemente, apenas nós temos consciência de nossa mortalidade. Essa consciência é uma benção e uma maldição. Na tentativa de produzir um legado que, esperamos, sobreviva à nossa curta vida, nós criamos obras de arte e teorias, temos filhos e ajudamos aqueles que sofrem necessidades. No entanto, indiferente às nossas criações e paixões, a morte continua a causar desespero, lágrimas e gritos contra a injustiça, comprovando nossa derrota final diante da onipotência da Natureza em criar e destruir”.

(O fim da Terra e do Céu, Marcelo Gleiser).

AGRADECIMENTOS

Agradeço a todos aqueles que de algum modo contribuíram para a conclusão deste trabalho. Desejo fazer alguns agradecimentos especiais a algumas pessoas que tiveram participação mais direta durante a execução do trabalho.

Ao Daniel pela orientação, mas principalmente pela amizade.

Aos professores Antônio Celso de Oliveira Braga e Nelson Angeli pelas sugestões dadas no meu exame de qualificação.

À minha amiga Laura, por tudo que ela representa aos pós-graduandos da Geociências, e por tudo que ela fez por mim, muito obrigado.

Aos colegas que nestes últimos cinco anos dividiram uma casa comigo, são eles o Elton, o Ticiano, o Augusto, a Érica, a Luzia e a Shirley.

Aos colegas de pós-graduação que sempre estão presentes nas conversas, nos bares e festas; aqui representados por alguns: o Luquinha, a Neidinha, a Iramaia, o Biotita, a Fátima, a Alessandra, o Feola, a Claudinha, o Cesinha, o Allen e a Dani, enfim a todos.

Ao Altino que me ajudou em parte das análises no LABIDRO.

Um agradecimento especial à Helena por esses anos que estamos juntos.

Aos amigos Terêncio e Marcelo que me ajudaram nas coletas em Araxá, sem eles este trabalho não seria o mesmo.

A prefeitura de Araxá na pessoa da Sra. Rosângela Rios, pela atenção e pelo empréstimo do material.

A Fertilizantes Serrana S/A na pessoa do Sr. Ricardo Manoel de Oliveira, pela permissão concedida para fazermos as coletas na área pertencente à mineradora.

Ao Departamento de Petrologia e Metalogenia - IGCE - UNESP - Rio Claro pelo acesso aos laboratórios e equipamentos utilizados.

À FAPESP: Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo pelo suporte financeiro (processo nº 9912401-0)

Ao CNPq – Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico: pela bolsa de estudos concedida (Processo nº.141528/1998-2).

Sumário

Índice	i
Lista de tabelas	iv
Lista de quadros	vii
Lista de figuras	viii
Resumo	xvi
Abstract	xvii
1. Introdução	1
2. O rádio no ambiente	3
3. Área de estudo e amostragem	15
4. Procedimento analítico	38
5. Relações hidroquímicas	64
6. Relações radiométricas	103
7. Transporte de rádio	139
8. Conclusões	157
9. Bibliografia	160

Índice

1. Introdução	1
1.1. Objetivos	2
2. O rádio no ambiente.....	3
2.1. Ocorrência isotópica	3
2.2. Equilíbrio radioativo secular do rádio e seus "filhos"	3
2.3. Comportamento geoquímico do Ra	7
2.3.1. Solubilidade	8
2.3.2. Formação de complexos	9
2.3.3. Adsorção	10
2.4. Distribuição global de Ra	11
2.5. O Ra no Brasil	13
2.6. Coeficiente de distribuição de rádio (Kd)	14
3. Área de estudo e amostragem.....	15
3.1. Aspectos Geológicos	16
3.1.1. Geologia Regional	16
3.1.2. Geologia Local.....	17
3.2. Ocorrência de material radioativo	23
3.2.1. Radioatividade associada ao pirocloro	24
3.2.2. Radioatividade associada à rocha fosfática	25
3.2.3. Radioatividade associada à apatita	25
3.2.4. Radioatividade associada às terras raras	26
3.3. Aspectos hidrológicos.....	26
3.3.1. Características hidrogeológicas	26
3.3.2. Características hidrográficas.....	31
3.3.3. Pontos de coleta de amostras	32
4. Procedimento analítico.....	38
4.1. Preparação das amostras	38
4.2. Análises químicas das águas.....	39

4.3. Análise radiométricas	39
4.3.1. Determinação de ^{226}Ra nas águas e sólidos em suspensão.....	39
4.3.2. Determinação de ^{226}Ra nos sedimentos de fundo	41
4.3.2.1. Avaliação da atividade.....	44
4.3.3. Determinação de ^{228}Ra nas águas e sedimentos de fundo	45
4.3.3.1. Cálculo da atividade	47
4.3.4. Determinação de ^{228}Ra nos sólidos em suspensão.....	52
4.3.5. Determinação de U nas águas	57
4.3.6. Incertezas analíticas	59
4.3.6.1. Erros na espectrometria gama	59
4.3.6.2. Avaliação dos erros para espectrometria alfa	61
4.3.6.3. Limite crítico de detecção de ^{228}Ra	62
5. Relações hidroquímicas.....	64
5.1. Resultados das determinações “in situ”	64
5.2. Resultados das análises químicas em laboratório	69
5.3. Medidas de pH e Eh “in situ” e no laboratório para as águas superficiais e subterrâneas	74
5.4. Águas superficiais	76
5.5. Águas subterrâneas	95
6. Relações radiométricas.....	103
6.1. ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas superficiais	103
6.2. ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas subterrâneas	111
6.3. ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sólidos em suspensão das águas superficiais	118
6.4. ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sólidos em suspensão das águas subterrâneas	123
6.5. ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sedimentos de fundo	129
6.6. Urânio nas águas superficiais	131
6.7. Urânio nas águas subterrâneas	132
7. Transporte de rádio.....	139
7.1. Relação entre ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas superficiais	139
7.2. Relação entre ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas subterrâneas	141
7.3. Relação entre ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sólidos em suspensão nas águas superficiais.....	142
7.4. Relação entre ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sólidos em suspensão nas águas subterrâneas	144

7.5. Relação entre ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sedimentos de fundo.....	145
7.6. Coeficiente de distribuição de Ra (Kd) para as águas superficiais.....	146
7.7. Coeficiente de distribuição de rádio (Kd) para as águas subterrâneas	152
7.8. Coeficiente geral de distribuição de rádio na área	156
8. Conclusões.....	157
9. Referências bibliográficas.....	160

Lista de tabelas

Tabela 2.1 - Solubilidade dos sais de rádio a 20 °C, segundo MOLINARI & SNODGRASS (1990).	8
Tabela 2.2 - Produto de solubilidade ($\log K_{sp}$) de cátions alcalino-terrosos com sulfato, segundo MOLINARI & SNODGRASS (1990).	9
Tabela 2.3 - Constante de estabilidade ($\log K_1$) para complexos de cátions do grupo IIA com ânions inorgânicos, segundo MOLINARI & SNODGRASS (1990).	9
Tabela 2.4 - Constante de estabilidade ($\log K_1$) para complexos de cátions do grupo IIA com ligantes orgânicos, segundo MOLINARI & SNODGRASS (1990).	10
Tabela 2.5 - Raio iônico dos cátions alcalino-terrosos, segundo MOLINARI & SNODGRASS (1990).	11
Tabela 3.1. Composição mineralógica média do minério de Araxá (PARAISO & FUCCIO, 1981 apud ISSA FILHO et al., 1984).	21
Tabela 3.2. Reservas totais de minério da jazida de nióbio de Araxá (ISSA FILHO et al., 1984).	22
Tabela 3.3. Composição química de amostras da jazida de fosfato em Araxá (TAKATA et al., 1990).	23
Tabela 3.4. Principais constituintes do depósito de terras raras do complexo do Barreiro (CASTRO & SOUZA, 1970).	24
Tabela 4.1 - Calibração em energia para o sistema utilizado.	41
Tabela 4.2 - Atividade de ^{226}Ra e taxa de contagem no pico do ^{214}Bi de cada padrão utilizado.	43
Tabela 4.3 - Emissões gama de interesse para a quantificação do ^{228}Ac , segundo MICHEL et al (1982).	46
Tabela 4.4 - Emissões gama das fontes radioativas utilizadas para a calibração do sistema espectrométrico e canal de presença dos fotopicos (CHUKREEV, 1994; ADAMS & GASPARINI, 1970).	47
Tabela 4.5 - Atividade de ^{228}Ra e taxa de contagem no pico do ^{208}Tl de cada padrão utilizado.	53
Tabela 4.6 – Características dos padrões produzidos no LABIDRO - Laboratório de Isótopos e Hidroquímica.	55

Tabela 4.7 - Taxa de contagem da radiação de fundo.	62
Tabela 5.1 - Valores de temperatura (Temp.), condutividade elétrica (Cond.), pH e Eh medidos no campo/laboratório para as águas superficiais do Barreiro coletadas entre 16 e 19/02/2000.	64
Tabela 5.2 - Valores de temperatura (Temp.), condutividade elétrica (Cond.), pH e Eh medidos no campo para as águas superficiais do Barreiro coletadas entre 12 e 16/09/2000.	65
Tabela 5.3 - Valores de temperatura (Temp.), condutividade elétrica (Cond.), pH, Eh e profundidade do nível d'água (NA-1) medidos no campo/laboratório para as águas subterrâneas do Barreiro coletadas entre 16 e 19/02/2000.	66
Tabela 5.4. - Valores de temperatura (Temp.), condutividade elétrica (Cond.), pH, Eh e profundidade do nível d'água (NA-2) medidos no campo para as águas subterrâneas do Barreiro coletadas entre 12 e 16/09/2000.	67
Tabela 5.5 - Análises químicas (em mg/L) das águas superficiais do Barreiro coletadas entre 16 e 19/02/2000.	70
Tabela 5.6 - Análises químicas (em mg/L) das águas superficiais do Barreiro coletadas entre 12 e 16/09/2000.	71
Tabela 5.7 - Análises químicas (em mg/L) das águas subterrâneas do Barreiro coletadas entre 16 e 19/02/2000.	72
Tabela 5.8 - Análises químicas (em mg/L) das águas subterrâneas do Barreiro coletadas entre 12 e 16/09/2000.	73
Tabela 6.1 – Atividade de ^{226}Ra dissolvido nas águas superficiais do Barreiro nas duas etapas de coleta.....	103
Tabela 6.2 – Atividade de ^{228}Ra dissolvido nas águas superficiais do Barreiro nas duas etapas de coleta.....	106
Tabela 6.3 – Atividade de ^{226}Ra dissolvido nas águas subterrâneas do Barreiro nas duas etapas de coleta.....	112
Tabela 6.4. – Atividade de ^{228}Ra dissolvido nas águas subterrâneas do Barreiro nas duas etapas de coleta.	116
Tabela 6.5 – Atividade de ^{226}Ra nos sólidos em suspensão das águas superficiais do Barreiro.	119
Tabela 6.6 – Atividade de ^{228}Ra nos sólidos em suspensão das águas superficiais do Barreiro.	122

Tabela 6.7 – Atividade de ^{226}Ra nos sólidos em suspensão das águas subterrâneas do Barreiro.	124
Tabela 6.8 – Atividade de ^{228}Ra nos sólidos em suspensão das águas subterrâneas do Barreiro.	127
Tabela 6.9 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sedimentos de fundo coletados no Barreiro, em 15/11/2001.	129
Tabela 6.10 – Concentração de ^{238}U e razão de atividade (RA) $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ para amostras de águas superficiais do Barreiro coletadas de 16 a 19/02/2000.	131
Tabela 6.11 – Concentração de ^{238}U e razão de atividade (RA) $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ para amostras de águas subterrâneas do Barreiro coletadas de 16 a 19/02/2000.	134
Tabela 7.1 – Coeficiente de distribuição (Kd) do ^{226}Ra e ^{228}Ra das águas superficiais do Barreiro, para as duas etapas de campo.	147
Tabela 7.2 – Coeficiente de distribuição (Kd) do ^{226}Ra e ^{228}Ra das águas subterrâneas do Barreiro, para as duas etapas de campo.	153

Lista de quadros

Quadro 3.1 – Descrição e localização dos pontos de coleta de amostras de águas superficiais do Barreiro, Araxá (MG).....	33
Quadro 3.2 – Descrição e localização dos pontos de coleta de amostras de águas subterrâneas do Barreiro, Araxá (MG).	34
Quadro 3.3 – Descrição e localização dos pontos de coleta de amostras de sedimentos de fundo do Barreiro, Araxá (MG).	37

Lista de figuras

Figura 2.1 – Cadeias de decaimento radioativo, adaptado de Ku & Broecker (1976).	4
Figura 2.2 – Equilíbrio radioativo entre o ^{226}Ra e seu filho ^{222}Rn (LIMA, 1993).	5
Figura 2.3 – Atividade do ^{222}Rn e de seus filhos em função do tempo, segundo LIMA (1993).	6
Figura 2.4 – Equilíbrio radioativo do ^{228}Ac com o seu pai, o ^{228}Ra (MANCINI, 1997).	6
Figura 3.1 – Localização do Barreiro, Araxá (MG) (SILVA, 1987).	15
Figura 3.2 – Mapa geológico da região do alto Parnaíba-MG/GO (SILVA, 1987).	18
Figura 3.3 – Mapa geológico do Complexo do Barreiro (GROSSI SAD & TORRES, 1976 apud ISSA FILHO, 1984).	20
Figura 3.4 – Esboço hidrogeológico esquematizado ao longo do córrego da Cascatinha (FUNTEC, 1984)	28
Figura 3.5 - Localização dos pontos de coleta na região do Barreiro (modificado de FUNTEC, 1984)	29
Figura 3.6 – Representação do nível piezométrico (m) para a porção estudada do aquífero. Período chuvoso: 16 a 19/02/2000.	30
Figura 3.7 – Representação do nível piezométrico (m) para a porção estudada do aquífero. Período seco: 12 a 16/09/2000.	31
Figura 4.1 – Curva de calibração do espectrômetro gama para mensuração do ^{214}Bi	42
Figura 4.2 – Curva de calibração para determinar a atividade de ^{226}Ra a partir da taxa de contagem no pico do ^{214}Bi	43
Figura 4.3 – Ilustração para cálculo da radiação de fundo e área do pico de ^{214}Bi	44
Figura 4.4 – Espectro gama obtido para a amostra 10sed para a determinação da atividade de ^{226}Ra (tempo de leitura = 80.879 s).	45
Figura 4.5 – Curva de calibração do espectrômetro gama para a mensuração do ^{228}Ac	47
Figura 4.6 – Espectros gama obtidos para a amostra de água superficial 1sp da coleta 1 (A) sem traçador (tempo de leitura = 22.676 s) e (B) com traçador (tempo de leitura = 26.258 s).	49

Figura 4.7 – Espectros gama obtidos para a amostra de água subterrânea 13sb da coleta 2 (A) sem traçador (tempo de leitura = 88.941 s) e (B) com traçador (tempo de leitura = 89.005 s).	50
Figura 4.8 – Espectros gama obtidos para a amostra de sedimentos de fundo 9sed (A) sem traçador (tempo de leitura = 55.732 s) e (B) com traçador (tempo de leitura = 86.787 s).	51
Figura 4.9 – Curva de calibração para determinar a atividade de ^{228}Ra a partir da taxa de contagem no pico do ^{208}Tl	53
Figura 4.10 – Espectro gama da amostra de sedimentos de fundo do Morro do Ferro, Poços de Caldas (MG). Tempo de leitura = 17.486 s. Atividade de ^{228}Ra = 2.116,1 pCi.	54
Figura 4.11 - Curva de calibração para determinar a atividade de ^{228}Ra a partir da taxa de contagem no pico do ^{228}Ac	56
Figura 4.12 – Espectro gama obtido para os sólidos em suspensão da amostra de água superficial 11sp da coleta 1 (tempo de leitura = 70.891 s).	56
Figura 4.13 – Espectro gama obtido para os sólidos em suspensão da amostra de água subterrânea 17sb da coleta 1 (tempo de leitura = 92.361 s).	57
Figura 4.14 – Espectro alfa obtido para a amostra de água superficial 1sp da coleta 1 (tempo de leitura = 171.835 s).	58
Figura 4.15 – Espectro alfa obtido para a amostra de água subterrânea 14sb da coleta 1 (tempo de leitura = 171.042 s).	59
Figura 5.1 – Representação da profundidade do nível d'água durante as duas etapas de campo para os poços analisados no Barreiro, Araxá (MG).	68
Figura 5.2 – Representação da cota do nível piezométrico durante as duas etapas de coleta de amostras de águas subterrâneas do Barreiro, Araxá (MG).	69
Figura 5.3 – Representação dos valores determinados para pH nas águas superficiais do Barreiro; pH – 1 (laboratório) e pH – 2 (campo).	74
Figura 5.4 – Representação dos valores determinados para Eh nas águas superficiais do Barreiro; Eh – 1 (laboratório) e Eh – 2 (campo).	75
Figura 5.5 – Representação dos valores determinados para pH nas águas subterrâneas do Barreiro; pH – 1 (laboratório) e pH – 2 (campo).	75
Figura 5.6 – Representação dos valores determinados para Eh nas águas subterrâneas do Barreiro; Eh – 1 (laboratório) e Eh – 2 (campo).	76

Figura 5.7 – Representação dos teores de K^{++} , Na^{+} , Ba^{++} e Ca^{++} nas águas superficiais do Barreiro (grupo 1) amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	78
Figura 5.8 – Representação dos teores de Mg^{++} , Cl^{-} , F^{-} e SO_4^{-} nas águas superficiais do Barreiro (grupo 1) amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	79
Figura 5.9 – Representação dos teores de PO_4^{3-} , NO_3^{-} , alcalinidade e sílica nas águas superficiais do Barreiro (grupo 1) amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	80
Figura 5.10 – Representação dos teores de K^{++} , Na^{+} , Ba^{++} e Ca^{++} nas águas superficiais do Barreiro (grupo 2) amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	81
Figura 5.11 Representação dos teores de Mg^{++} , Cl^{-} , F^{-} e SO_4^{-} nas águas superficiais do Barreiro (grupo 2) amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	82
Figura 5.12 – Representação dos teores de PO_4^{3-} , NO_3^{-} , alcalinidade e sílica nas águas superficiais do Barreiro (grupo 2) amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	83
Figura 5.13 – Diagrama de Schoeller-Berkaloff modificado para a média dos resultados das análises de águas superficiais do Barreiro: média grupo 1 (etapa 1 e etapa 2), média grupo 2 (etapa 1 e etapa 2) e ponto 1sp (etapa 1 e etapa 2).	84
Figura 5.14 – Resultados das análises químicas para o ponto 5sp amostrado entre 16 e 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	85
Figura 5.15 – Diagrama Eh-pH para as águas superficiais do Barreiro coletadas de 16 a 19/02/2000: grupo 1, grupo 2 e os pontos 1sp e 5sp.	86
Figura 5.16 – Diagrama Eh-pH para as águas superficiais do Barreiro coletadas de 12 a 16/09/2000: grupo 1 grupo 2 e os pontos 1sp e 5sp.	87
Figura 5.17 – Curva de correlação entre a condutividade elétrica e o elemento Ba para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 16 a 19/02/2000.	88
Figura 5.18 – Curva de correlação entre a condutividade elétrica e o elemento Na para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 16 a 19/02/2000.	88

Figura 5.19 – Curva de correlação entre o SO ₄ e o elemento Ba para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 16 a 19/02/2000.	89
Figura 5.20 – Curva de correlação entre o SO ₄ e o elemento Na para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 16 a 19/02/2000.	89
Figura 5.21 – Curva de correlação entre o SO ₄ e a sílica para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 16 a 19/02/2000.	90
Figura 5.22 – Curva de correlação entre o pH e o Eh para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 16 a 19/02/2000.	90
Figura 5.23. – Curva de correlação entre a condutividade elétrica e o elemento Na para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1), coletadas no período de 12 a 16/09/2000.	91
Figura 5.24 – Curva de correlação entre a condutividade elétrica e o elemento Cl para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 12 a 16/09/2000.	91
Figura 5.25 – Curva de correlação entre o SO ₄ e o elemento Na para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 12 a 16/09/2000.	92
Figura 5.26 – Curva de correlação entre o SO ₄ e o elemento Cl para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 12 a 16/09/2000.	92
Figura 5.27 – Curva de correlação entre o Na e o elemento Cl para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 12 a 16/09/2000.	93
Figura 5.28 – Curva de correlação entre o pH e Eh para as águas superficiais do Barreiro (grupo 2) coletadas no período de 16 a 19/02/2000.	93
Figura 5.29 – Curva de correlação entre o pH e Eh para as águas superficiais do Barreiro (grupo 2) coletadas no período de 12 a 16/09/2000.	94
Figura 5.30 – Diagrama de Piper parcial para as águas subterrâneas do Barreiro amostradas de 16 a 19/02/2000.	96
Figura 5.31 – Diagrama de Piper parcial para as águas subterrâneas do Barreiro amostradas de 12 a 16/09/2000.	97
Figura 5.32 – Teor de Ba dissolvido nas águas subterrâneas do Barreiro, Araxá (MG). Amostragem de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	98
Figura 5.33 – Teor de PO ₄ ³⁻ dissolvido nas águas subterrâneas do Barreiro, Araxá (MG). Amostragem de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	98
Figura 5.34 – Diagrama Eh-pH para as águas subterrâneas do Barreiro (pontos 3sb a 17sb) e pontos 1sb e 2sb. Amostragem entre 16 e 19/02/2000.	99

Figura 5.35 – Diagrama Eh-pH para as águas subterrâneas do Barreiro (pontos 3sb a 17sb) e pontos 1sb e 2sb. Amostragem entre 12 e 16/09/2000.	100
Figura 5.36 – Curva de correlação entre o SO ₄ e Ba para as águas subterrâneas do Barreiro coletadas no período de 16 a 19/02/2000.	101
Figura 5.37 – Curva de correlação entre o pH e Eh para as águas subterrâneas do Barreiro coletadas no período de 16 a 19/02/2000.	101
Figura 5.38 – Curva de correlação entre o K e SO ₄ para as águas subterrâneas do Barreiro coletadas no período de 12 a 16/09/2000.	102
Figura 6.1 – Atividade de ²²⁶ Ra dissolvido nas águas superficiais do grupo 1 amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	104
Figura 6.2 - Atividade de ²²⁶ Ra dissolvido nas águas superficiais do grupo 2 amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	105
Figura 6.3 - Atividade de ²²⁸ Ra dissolvido nas águas superficiais do grupo 1 amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	107
Figura 6.4 - Atividade de ²²⁸ Ra dissolvido nas águas superficiais do grupo 2 amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	107
Figura 6.5 – Correlação entre a atividade de ²²⁶ Ra e Ba dissolvidos nas águas superficiais do grupo 1 coletadas no período de 12 a 16/09/2000.	108
Figura 6.6 – Correlação entre a atividade de ²²⁶ Ra e NO ₃ dissolvidos nas águas superficiais do grupo 1 coletadas no período de 12 a 16/09/2000.	108
Figura 6.7 – Correlação entre a atividade de ²²⁶ Ra e sílica dissolvidos nas águas superficiais do grupo 2 coletadas no período de 12 a 16/09/2000.	109
Figura 6.8 – Correlação entre a atividade de ²²⁸ Ra e Cl dissolvido nas águas superficiais do grupo 2 coletadas no período de 16 a 19/02/2000.	109
Figura 6.9 – Correlação entre a atividade de ²²⁸ Ra e sílica dissolvida nas águas superficiais do grupo 2 coletadas no período de 16 a 19/02/2000.	110
Figura 6.10 – Correlação entre a atividade de ²²⁸ Ra e Cl dissolvido nas águas superficiais do grupo 2 coletadas no período de 12 a 16/09/2000.	110
Figura 6.11 – Correlação entre a atividade de ²²⁸ Ra e Na dissolvidos nas águas superficiais do grupo 2, coletadas no período de 12 a 16/09/2000.	111
Figura 6.12 – Atividade de ²²⁶ Ra dissolvido nas águas subterrâneas do Barreiro amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2)	113

Figura 6.13 – Atividade de ^{228}Ra dissolvido nas águas subterrâneas do Barreiro amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	115
Figura 6.14. – Correlação entre atividade de ^{228}Ra e Cl dissolvidos nas águas subterrâneas do Barreiro coletadas de 16 a 19/02/2000.	118
Figura 6.15 – Atividade de ^{226}Ra nos sólidos em suspensão das águas superficiais do grupo 1 amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	120
Figura 6.16 - Atividade de ^{226}Ra nos sólidos em suspensão das águas superficiais do grupo 2 amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	120
Figura 6.17 - Atividade de ^{228}Ra nos sólidos em suspensão das águas superficiais do grupo 1 amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	121
Figura 6.18 - Atividade de ^{228}Ra nos sólidos em suspensão das águas superficiais do grupo 2 amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	123
Figura 6.19 - Atividade de ^{226}Ra nos sólidos em suspensão das águas subterrâneas do Barreiro amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	125
Figura 6.20 - Atividade de ^{228}Ra nos sólidos em suspensão das águas subterrâneas do Barreiro amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).	128
Figura 6.21 - Atividade de ^{226}Ra nos sedimentos de fundo do Barreiro coletados em 15/11/2001: 9 sed e 2 sed (grupo1) e 11 sed, 10 sed. e 4 sed. (grupo 2).	130
Figura 6.22 - Atividade de ^{228}Ra nos sedimentos de fundo do Barreiro coletados em 15/11/2001: 9 sed e 2 sed (grupo1) e 11 sed, 10 sed. e 4 sed. (grupo 2).	131
Figura 6.23 - Concentração de urânio e a razão de atividade (RA) para as águas superficiais do Barreiro coletadas de 16 a 19/02/2000.	132
Figura 6.24 – Representação da localização dos Perfis (1,2 e 3) na área estudada.	133
Figura 6.25 - Concentração de urânio e razão de atividade (RA) nas águas subterrâneas do Barreiro amostradas de 16 a 19/02/2000.	135
Figura 6.26 – Concentração de urânio e razão de atividade (RA) para os pontos do Perfil 1.	136

Figura 6.27 – Representação do comportamento do pH e Eh para os pontos do Perfil 1.	136
Figura 6.28 – Concentração de urânio e razão de atividade (RA) para os pontos do Perfil 2.	137
Figura 6.29 – Concentração de urânio e razão de atividade (RA) para os pontos do Perfil 3.	138
Figura 7.1 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas superficiais do Barreiro (grupo 1), para as duas etapas de campo.	139
Figura 7.2 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas superficiais do Barreiro (grupo 2), para as duas etapas de campo.	140
Figura 7.3 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas superficiais do Barreiro (pontos 5sp e 1sp), para as duas etapas de campo.	141
Figura 7.4 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas subterrâneas do Barreiro, para as duas etapas de campo.	141
Figura 7.5 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra para os sólidos em suspensão nas águas superficiais do Barreiro (grupo 1), para as duas etapas de campo.	142
Figura 7.6 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra para os sólidos em suspensão nas águas superficiais do Barreiro (grupo 2), para as duas etapas de campo.	143
Figura 7.7 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra para os sólidos em suspensão nas águas superficiais do Barreiro (pontos 5sp e 1sp), para as duas etapas de campo.	144
Figura 7.8 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra para os sólidos em suspensão nas águas subterrâneas do Barreiro, para as duas etapas de campo.	145
Figura 7.9 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra para os sedimentos de fundo coletados em 15/11/2001.	146
Figura 7.10 – Representação dos valores determinados para o coeficiente de distribuição (Kd) do ^{226}Ra nas águas superficiais do Barreiro (grupo 1), para as duas etapas de campo.	148
Figura 7.11 – Representação dos valores determinados para o coeficiente de distribuição (Kd) do ^{226}Ra nas águas superficiais do Barreiro (grupo 2), para as duas etapas de campo.	149
Figura 7.12 – Representação dos valores determinados para o coeficiente de distribuição (Kd) do ^{228}Ra nas águas superficiais do Barreiro (grupo 1), para as duas etapas de campo.	150

Figura 7.13 – Representação dos valores determinados para o coeficiente de distribuição (Kd) do ^{228}Ra nas águas superficiais do Barreiro (grupo 2), para as duas etapas de campo.	151
Figura 7.14 – Representação dos valores determinados para o coeficiente de distribuição (Kd) do ^{226}Ra nas águas subterrâneas do Barreiro, para as duas etapas de campo.	152
Figura 7.15 – Representação dos valores determinados para o coeficiente de distribuição (Kd) do ^{228}Ra nas águas subterrâneas do Barreiro, para as duas etapas de campo.	154
Figura 7.16 – Relação entre o Kd do ^{226}Ra e o Kd do ^{228}Ra das águas subterrâneas no período chuvoso.	155
Figura 7.17 – Relação entre o Kd do ^{226}Ra e o Kd do ^{228}Ra das águas subterrâneas no período seco.	155

Resumo

Foram usadas técnicas de espectrometria gama e alfa para a determinação de ^{226}Ra e ^{228}Ra em águas subterrâneas, superficiais, sólidos em suspensão e sedimentos de fundo e, também, para mensuração da concentração de urânio e razão de atividade $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ nas águas subterrâneas e superficiais na área denominada Barreiro de Araxá, no município de Araxá, Estado de Minas Gerais, Brasil. A atividade de ^{228}Ra nas águas subterrâneas variou de 0,3 a 4,7 pCi/L, nas águas superficiais de 1,3 a 53,3 pCi/L, nos sólidos em suspensão das águas subterrâneas de 21 a 4.550 pCi/g, nos sólidos em suspensão das águas superficiais de 386 a 7.523 pCi/g e nos sedimentos de fundo de 22,5 a 156,3 pCi/g. A atividade de ^{226}Ra nas águas subterrâneas variou de 1,3 a 67,5 pCi/L, nas águas superficiais de 2,8 a 64,3 pCi/L, nos sólidos em suspensão das águas subterrâneas de 13 a 2.128 pCi/g, nos sólidos em suspensão das águas superficiais de 70 a 1.479 pCi/g e nos sedimentos de fundo de 5,5 a 17,0 pCi/g. A concentração de urânio variou de 0,28 a 5,46 $\mu\text{g/L}$ nas águas subterrâneas e de 0,13 a 1,37 $\mu\text{g/L}$ nas águas superficiais. A razão de atividade $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ apresentou variação de 0,91 a 2,69 nas águas subterrâneas e de 1,19 a 1,52 nas águas superficiais. A caracterização química das águas denotou que o Ba, Cl e o Na podem estar associados com o rádio em solução. Os resultados obtidos permitiram determinar o coeficiente de distribuição (Kd) de ^{226}Ra e ^{228}Ra para a área. Para as águas subterrâneas o Kd do ^{226}Ra variou de 0,01 a $19,6 \times 10^4 \text{g/cm}^3$ e para as águas superficiais de 0,04 a $5,72 \times 10^4 \text{g/cm}^3$. O Kd do ^{228}Ra variou de 0,05 a $7,09 \times 10^5 \text{g/cm}^3$ nas águas subterrâneas e de 0,58 a $35 \times 10^6 \text{g/cm}^3$ nas águas superficiais.

Abstract

Gamma-ray and alpha spectrometry were used to measure ^{226}Ra and ^{228}Ra in the underground and surface waters, suspended solids and bottom sediments, as well to quantify the uranium concentration and $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activity ratio in underground and surface waters from Barreiro of Araxá, Araxá (MG), Brazil. ^{228}Ra activity varied from 0.3 to 4.7 pCi/L in underground waters, from 1.3 to 53.3 pCi/L in surface waters, from 21 to 4,550 pCi/g in suspended solids from underground waters, from 386 to 7,523 pCi/g in suspended solids from surface waters, and from 22.5 to 156.3 pCi/g in bottom sediments. ^{226}Ra activity varied from 1.3 to 67.5 pCi/L in underground waters, from 2.8 to 64.3 pCi/L in surface waters, from 13 to 2,128 pCi/g in suspended solids from underground waters, from 70 to 1,479 pCi/g in suspended solids from surface waters and from 5.5 to 17.0 pCi/g in bottom sediments. The U concentration varied from 0.28 to 5.46 $\mu\text{g/L}$ in underground waters and from 0.13 to 1.37 $\mu\text{g/L}$ in the surface waters. The $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activity ratio varied from 0.91 to 2.69 in underground waters and from 1.19 to 1.52 in surface waters. The chemical characterization of the waters suggested that Ba, Cl and Na may be associated with radium in solution. The results allowed to calculate the distribution coefficient (Kd) for ^{226}Ra and ^{228}Ra in the area. The Kd for ^{226}Ra in underground waters varied from 0.01 to $19.6 \times 10^{-4} \text{g/cm}^3$ and from 0.04 to $5.72 \times 10^{-4} \text{g/cm}^3$ in surface waters. The Kd for ^{228}Ra varied from 0.05 to $7.09 \times 10^{-5} \text{g/cm}^3$ in underground waters and from 0.58 to $35 \times 10^{-6} \text{g/cm}^3$ in surface waters.

1. Introdução

O ^{226}Ra e o ^{228}Ra são os mais abundantes isótopos de rádio de ocorrência natural. O ^{226}Ra pertence à série natural de decaimento do urânio (^{238}U) e é um emissor alfa (α), enquanto o ^{228}Ra pertence à série natural de decaimento do tório (^{232}Th), sendo um emissor beta (β). Do ponto de vista da saúde, são extremamente tóxicos, pois, se ingeridos durante prolongados períodos de tempo, chegam a liberar intensas doses de radiação para os ossos, onde tendem a se acumular. O ^{226}Ra é considerado um importante nuclídeo capaz de poluir o ambiente, uma vez que sua presença relaciona-se com a do o urânio, que constitui a base da atual indústria nuclear.

Nos sistemas hídricos, o rádio pode provir da interação das águas com materiais portadores desse elemento como rochas, solos, corpos mineralizados, etc. A mineração e processamento de materiais convencionais de importância comercial como minerais fosfáticos, apatita, cobre, ouro, linhita, carvão, bauxita, etc, pode causar enriquecimento de Ra nos recursos hídricos superficiais e subterrâneos, devido à presença de U e respectivos descendentes como o Ra nesses materiais. Nas jazidas ainda sujeitas à mineração, os processos de interação entre a fase líquida e os estratos do aquífero contribuem para o fornecimento de Ra para as águas subterrâneas. As fontes geotermiais também são importantes na produção de radioatividade natural, principalmente devido o ^{226}Ra e seu “filho” ^{222}Rn , tendo sido dirigida considerável atenção nos últimos anos para avaliar o significado da exposição radiológica nas fontes termiais e balneários que servem como atrações turísticas em muitos países (IAEA, 1982).

O município de Araxá, situado no Estado de Minas Gerais, é uma estância hidromineral que possui mineralizações de minerais fosfáticos, onde suas fontes radioativas, localizadas no Complexo Alcalino do Barreiro de Araxá, são conhecidas desde as primeiras décadas do século XX. Uma vez que o urânio e o tório aparecem na região em minerais secundários sujeitos a processos intempéricos responsáveis pelo seu enriquecimento na fase líquida, é importante avaliar a presença de rádio nas águas subterrâneas e superficiais, pois esses recursos são utilizados pelo município tanto para o abastecimento público quanto para o turismo.

1.1. Objetivos

Este trabalho investiga a migração (dispersão e transporte) de rádio na área do Barreiro de Araxá a partir da determinação da atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra em amostras de água subterrânea, água superficial, sólidos em suspensão (material particulado) e sedimentos de fundo. A distribuição espacial do rádio na área foi avaliada, para a determinação do seu coeficiente de distribuição (K_d). Para tanto, utilizaram-se informações fornecidas pela prefeitura de Araxá, que possibilitou acesso às áreas onde foram perfurados os poços de monitoramento e também à documentação referente às pesquisas já realizadas no Barreiro.

Dados químicos de amostras de águas superficiais e subterrâneas auxiliaram na determinação da composição química predominante, permitindo identificar os possíveis complexantes responsáveis pela manutenção do Ra em solução. Os isótopos de urânio ^{238}U e ^{234}U têm sido extremamente utilizados em hidrologia isotópica, e, uma vez que o ^{226}Ra é descendente deles, procedeu-se também a sua caracterização nas águas superficiais e subterrâneas do Barreiro.

O transporte de rádio das áreas fontes para outras regiões foi investigado levando-se em conta a geologia, hidrogeologia e a drenagem da área investigada, pretendendo-se que os resultados obtidos possam auxiliar as autoridades locais e as empresas situadas no Barreiro a planejarem adequadamente suas atividades de monitoramento e de atuação.

2. O rádio no ambiente

2.1. Ocorrência isotópica

O rádio possui cerca de 25 isótopos com números de massa entre 206 e 230. Todos são instáveis e somente quatro ocorrem naturalmente nas séries de decaimento radioativo (Figura 2.1): o ^{226}Ra na série do urânio (^{238}U , série $4n + 2$), ^{223}Ra na série do actínio (^{235}U , série $4n + 3$) e o ^{228}Ra e o ^{224}Ra , ambos na série do tório (^{232}Th , série $4n$). As meias vidas de todos os outros isótopos são curtas, sendo que os isótopos ^{225}Ra e ^{227}Ra com valores de 14,8 dias e 41 minutos, respectivamente, são produzidos em reatores nucleares podendo, portanto, surgir no meio ambiente em decorrência de algum tipo de acidente com estas instalações.

O ^{226}Ra é um dos isótopos de rádio mais importantes de ocorrência natural, devido a sua longa meia vida e a abundância natural de seus antecessores; em seguida, ocorre mais frequentemente o ^{228}Ra , da série do tório.

2.2. Equilíbrio radioativo secular do Ra e seus “filhos”

Uma situação interessante ocorre quando se permite que um nuclídeo “filho” seja acumulado num recipiente juntamente com o seu “pai”. No início do processo de acumulação tem-se apenas o nuclídeo “pai” puro, sendo o “filho” gerado na mesma proporção em que o “pai” se decompõe. Entretanto, à medida que se tem um acúmulo do “filho” sua taxa uniforme de criação contrabalança cada vez mais com a taxa crescente de sua decomposição. Após um intervalo de tempo, as duas taxas tornam-se praticamente iguais e a atividade do “filho” entra em equilíbrio com a do “pai”. A atividade do nuclídeo “filho” fica, assim, condicionada à do nuclídeo “pai”, não a ultrapassando.

Assim, nota-se que o número de átomos que decai por unidade de tempo é igual ao número de átomos formados no mesmo intervalo de tempo, situação que ocorre num sistema fechado para os membros de uma série radioativa natural. Isto constitui o que se denomina de Equilíbrio Radioativo Secular. Portanto, se um sistema é constituído por uma série de decaimento em equilíbrio radioativo secular, as atividades dos produtos de decaimento são iguais entre si.

	U-238						Th-232						U-235					
U	U-238 4,49x10 ⁹ a		U-234 2,48x10 ⁵ a											U-235 7,13x10 ⁸ a				
Pa	↓	Pa-234 1,18 min	↓											↓	Pa-231 3,43x10 ³ a			
Th	Th-234 24,1 d		Th-230 7,5x10 ⁴ a				Th-232 1,39x10 ¹⁰ a		Th-228 1,9 a				Th-231 25,6 h		↓	Th-227 18,6 d		
Ac			↓				↓	Ac-228 6,13 h	↓					Ac-227 22,0 a		↓		
Ra			Ra-226 1.622 a				Ra-228 6,7 a		Ra-224 3,64 d							Ra-223 11,1 d		
Fr			↓						↓							↓		
Rn			Rn-222 3,83 d						Rn-220 54,5 s							Rn-219 3,92 s		
At			↓						↓							↓		
Po			Po-218 3,05 min		Po-214 1,6x10 ⁻⁴ s		Po-210 138 d		Po-216 0,16 s		Po-212 3,0x10 ⁻⁷ s					Po-215 1,8x10 ⁻³ s		
Bi			↓	Bi-214 19,7 min	↓	Bi-210 50 d	↓		↓	Bi-212 60,5 min	↓				↓	Bi-211 2,16 min		
Pb			Pb-214 26,8 min		Pb-210 22,2 a		Pb-206		Pb-212 10,6 h	↓	Pb-208					Pb-211 36,1 min	↓	Pb-207
Tl										Tl-208 3,1 min								Tl-207 4,79 min

Figura 2.1 - Cadeias de decaimento radioativo, adaptado de KU & BROECKER (1976).

O ^{222}Rn entra em equilíbrio radioativo com seu antecessor em aproximadamente 25,6 dias, conforme ilustra a Figura 2.2.

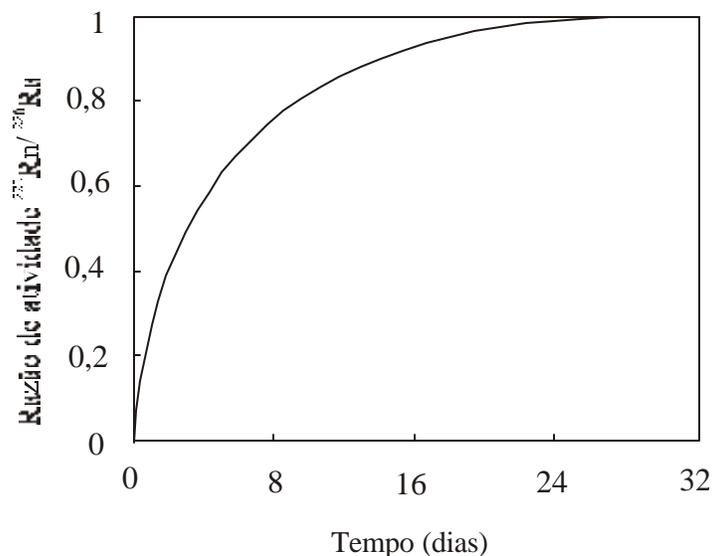


Figura 2.2 – Equilíbrio radioativo entre o ^{226}Ra e seu filho ^{222}Rn (LIMA, 1993).

Os núclídeos filhos do ^{222}Rn compreendem a seguinte sucessão de decaimento: $^{222}\text{Rn} \rightarrow ^{218}\text{Po} \rightarrow ^{214}\text{Pb} \rightarrow ^{214}\text{Bi} \rightarrow ^{214}\text{Po} \rightarrow ^{210}\text{Pb} \rightarrow \dots$ Nesta seqüência de decaimento, o ^{210}Pb pode ser considerado como “estável”, pois sua meia-vida é de 22 anos, muito maior que a dos demais núclídeos considerados. Além disso, como o ^{214}Po tem meia-vida extremamente pequena ($1,6 \times 10^{-4}$ s), pode-se assumir que o decaimento do ^{214}Bi ocorre diretamente para ^{210}Pb . A Figura 2.3 ilustra a variação da atividade (em desintegrações por hora) do ^{222}Rn e de seus “filhos”, em função do tempo; o tempo de 3 horas para os “filhos” do ^{222}Rn atingirem o equilíbrio radioativo é um parâmetro importante no processo de mensuração desse gás, visando a quantificação de ^{226}Ra .

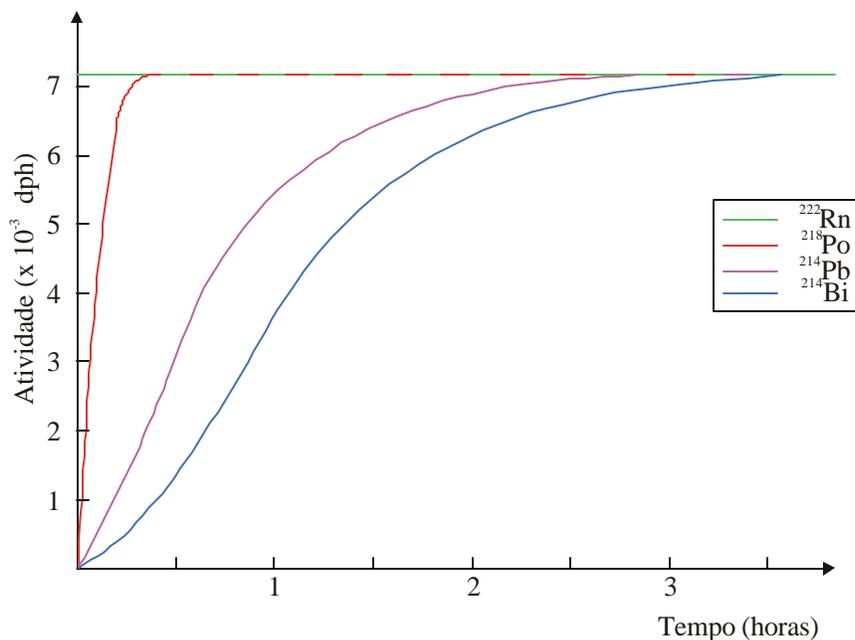


Figura 2.3 – Atividade do ^{222}Rn e de seus filhos em função do tempo, segundo LIMA (1993).

Para o ^{228}Ac e o ^{228}Ra , o equilíbrio radioativo ocorre em aproximadamente 44,6 horas (Figura 2.4). Este parâmetro é importante para se obter o valor da atividade de ^{228}Ra em programas envolvendo análise de amostras para pesquisas dirigidas ao ambiente.

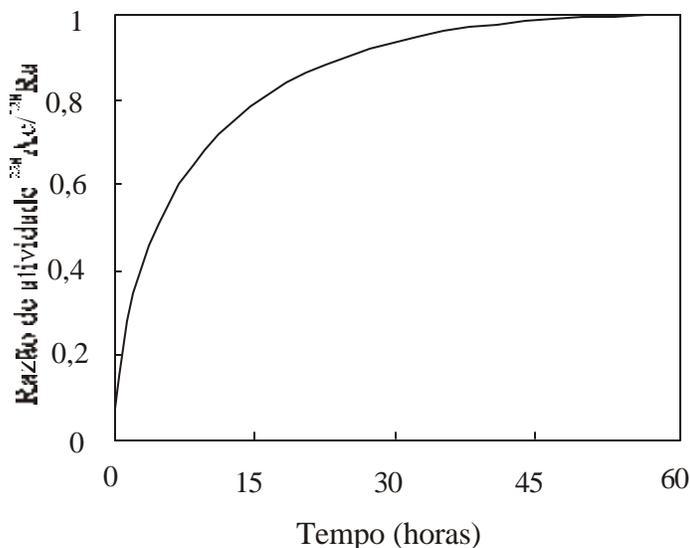


Figura 2.4 – Equilíbrio radioativo do ^{228}Ac com o seu pai, o ^{228}Ra (MANCINI, 1997).

2.3. Comportamento geoquímico do Ra

De acordo com MOLINARI & SNODGRASS (1990) ao se considerar o comportamento geoquímico do rádio deve-se levar em conta qual isótopo está sendo referido, o que certamente reflete na escala de tempo relacionada com sua meia-vida. Em minerais onde o rádio ocorre independentemente do U, praticamente todo o rádio (o isótopo de vida mais longa é o ^{226}Ra) decairá após 16.000 anos. Em termos geológicos, esta é uma curta escala de tempo.

Se não ocorrer a separação em 10.000 anos, a geoquímica do ^{226}Ra é inteiramente governada pelo seu pai, o ^{230}Th . Da mesma forma, a separação deve ocorrer em menos de 50 anos para que o ^{228}Ra não entre em equilíbrio radioativo com seu pai, o ^{232}Th . Entretanto, na natureza, o equilíbrio radioativo não deve ser atingido mesmo num pequeno período de tempo, devido à lixiviação seletiva de rádio em relação a tório e urânio. Tais situações ocorrem principalmente em rochas vulcânicas recentes, rochas que sofreram intemperismo e alterações recentes, águas minerais, sedimentos recentes e evaporitos.

A baixa abundância natural de rádio (10^{-12} g/L) em águas superficiais denota que raramente os sais de rádio estão sofrendo solubilização. Portanto, as reações químicas importantes são as de adsorção que ativam as superfícies de todos os tipos e a coprecipitação com sais de bário e cálcio ocorrendo geralmente com Mg, e mesmo Fe, Mn. Por exemplo, a radiobarita é comumente encontrada próxima a depósitos oxidados de urânio. A remoção de rádio de soluções pode ocorrer por hidrólise, adsorção, quebra de complexos iônicos e formação de sais insolúveis.

Pelas mesmas razões, dado que a abundância média de rádio em rochas está em torno de 10^{-12} g/g e que o rádio é um elemento litófilo como o urânio, ele não é tipicamente um formador de minerais, mas é muito disperso, substituindo outros elementos em minerais recém-formados.

Embora a concentração de rádio seja extremamente baixa em rochas, tem-se mostrado que os filhos do rádio estão mais concentrados nas micro fraturas e contornos dos grãos. A separação do rádio nas rochas que contém urânio provavelmente deve-se ao fato de que o Ra^{2+} é um cátion maior (1,4 Å), em relação ao U^{4+} (1,04 Å), sendo metaestável na estrutura de minerais como uraninita e coffinita. A perda do rádio para a solução provavelmente ocorre por difusão no mineral hospedeiro original e por difusão através da camada de água adsorvida na superfície do grão. Aparentemente, o dano da

radiação causado pelo recuo de um átomo quando de seu decaimento α permite a maior mobilidade dos filhos e maior difusão do Ra^{2+} em estado sólido.

O rádio é moderadamente solúvel em águas minerais, embora altas taxas de SO_4^{2-} favorecem sua remoção na forma de cristais de sulfato como $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ ou, para águas com alta taxa de CO_2 , como $(\text{Ra})\text{CO}_3$. Assim, altas concentrações de sulfato favorecem a formação de RaSO_4 , embora raramente as concentrações de Ra^{2+} se aproximam do limite de solubilidade. O rádio em solução não é muito dependente das espécies aniônicas, pois, apesar de formar complexos sulfáticos não apresenta tendência de formar carbonáticos.

2.3.1. Solubilidade

Os sais de rádio formados por ácidos fortes como HCl e HNO_3 são extremamente solúveis (Tabela 2.1), seguindo o comportamento geral de outros cátions alcalino-terrosos. O sulfato de rádio é menos solúvel (Tabela 2.2) que os cloretos e nitratos de rádio. A solubilidade relativa dos alcalino-terrosos varia de acordo com o ânion, por exemplo, para sulfato, a solubilidade decresce da seguinte maneira:

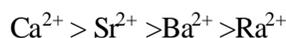


Tabela 2.1 - Solubilidade dos sais de rádio a 20 °C, segundo MOLINARI & SNODGRASS (1990).

Sal	Solubilidade (g/100 g H ₂ O)
RaCl_2	24,5
BaCl_2	30,7
RaBr_2	70,6
$\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$	13,9

Tabela 2.2 - Produto de solubilidade ($\log K_{sp}$) de cátions alcalino-terrosos com sulfato, segundo MOLINARI & SNODGRASS (1990).

Alcalino terroso	Sulfato
Ca^{+2}	-4,625
Sr^{+2}	-6,35
Ba^{+2}	-10,00
Ra^{+2}	-10,37

Em geral, a solubilidade dos sais cujos ânions contêm oxigênio é baixa e os cátions alcalino-terrosos precipitam na presença de alta concentração de ânions.

2.3.2. Formação de complexos

A tendência à formação de complexos diminui na medida em que o tamanho do cátion aumenta, o que não é tão evidente para a complexação com ânions inorgânicos (Tabela 2.3), porém, é evidenciado para ligantes orgânicos (Tabela 2.4). A complexação com ânions inorgânicos é geralmente fraca comparada com a complexação por ácidos orgânicos, sendo o rádio o elemento que possui a menor tendência a formar complexos.

Tabela 2.3 - Constante de estabilidade ($\log K_1$) para complexos de cátions do grupo IIA com ânions inorgânicos, segundo MOLINARI & SNODGRASS (1990).

	SO_4^{2-}	CO_3^{2-}
Mg^{+2}	2,27	3,4
Ca^{+2}	2,28	3,2
Sr^{+2}	2,55	
Ba^{+2}	2,30	
Ra^{+2}	2,43	2,48

Tabela 2.4 - Constante de estabilidade (log K_i) para complexos de cátions do grupo IIA com ligantes orgânicos, segundo MOLINARI & SNODGRASS (1990).

	Oxalato	Tartarato	Citrato	EDTA*	DTPA**
Mg ⁺²	3,43	1,36	3,2	9,12	
Ca ⁺²	3,00	1,80	3,15	11,0	10.63
Sr ⁺²	2,54	1,94	2,70	8,80	9.68
Ba ⁺²	2,31	1,62	2,54	7,78	8.63
Ra ⁺²	1,2	1,24	2,36	7,07	8.5

*EDTA: ácido etilenodiaminotetracético

**DTPA: ácido dietilenotriaminopentacetato

2.3.3. Adsorção

A adsorção e o processo de troca iônica são particularmente importantes na determinação da taxa de transporte de rádio em qualquer sistema água subterrânea/solo. Se apenas os fatores eletrostáticos fossem importantes, então, todos os cátions alcalino-terrosos teriam a mesma tendência a adsorver ou “trocar íons”. Entretanto, existe uma seletividade ou série de afinidade bem definida, proposta por EISENMANN (1962), que considerou que o equilíbrio de troca catiônica é dominado (a) pelas interações coulombianas entre cátions (em vários estados de hidratação) e os grupos fixos do material trocador e (b) pelos efeitos da hidratação iônica causada por interações do íon com moléculas de água.

Quando os efeitos de hidratação iônica predominam, os íons hidratados de menor raio tendem a substituir os íons de maior raio e a série de afinidade para a adsorção (ou troca iônica) pode ser escrita como: Ra²⁺ > Ba²⁺ > Sr²⁺ > Ca²⁺ > Mg²⁺ > Be²⁺. O Ra²⁺ é colocado no início da série de afinidade devido ao seu pequeno raio hidratado (Tabela 2.5). Se interações coulombianas entre os cátions e o local de troca predominam, então a seletividade é revertida.

Tabela 2.5 - Raio iônico dos cátions alcalino-terrosos, segundo MOLINARI & SNODGRASS (1990).

Íon	Raio iônico (Å)	
	Cristal	Hidratado
Be ⁺²	0,31	4,59
Mg ⁺²	0,65	4,28
Ca ⁺²	0,99	4,12
Sr ⁺²	1,13	4,12
Ba ⁺²	1,35	4,04
Ra ⁺²	1,52	3,98

2.4. Distribuição global de Ra

A principal fonte de rádio no ambiente é a crosta terrestre, onde os processos naturais e antropogênicos transferem esse elemento para a água, atmosfera e solo, levando à sua dispersão a níveis locais e globais, bem como ao seu enriquecimento em componentes particulares no ambiente.

Ao nível local, em vários componentes do meio ambiente, as atividades de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra raramente estão em equilíbrio com a de seus antecessores e descendentes, porém, ao nível global, este equilíbrio existe. Isto permite calcular as atividades de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra na crosta terrestre a partir das concentrações de seus pais.

Em rochas crustais, as concentrações típicas de ²³⁸U e ²³²Th variam entre 0,37 mBq/g em rochas ultrabásicas e 67 mBq/g em rochas ácidas. Estima-se que as concentrações médias de ²³⁸U e ²³²Th na crosta continental são 33 e 36 mBq/g, respectivamente; os valores correspondentes para a crosta oceânica são de 7 e 8 mBq/g (TAYLOR, 1964). Considerando-se o equilíbrio radioativo entre ²³⁸U, ²³²Th e seus filhos, as atividades de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra na crosta tornam-se as mesmas que as calculadas para seus pais. Assim, na maioria das rochas não expostas ao intemperismo, a situação de equilíbrio prevalece face à curta meia-vida do ²²⁶Ra ou ²²⁸Ra relativamente à de seus precursores, isto é, ²³⁰Th e ²³²Th. Entretanto, nas rochas expostas, o equilíbrio radioativo é substancialmente alterado, devido à mobilidade dos nuclídeos, causando uma mudança na razão Ra/U ou Ra/Th.

Devido ao intemperismo, o rádio migra da rocha para o solo, sendo transportado como material particulado e depositado como silte ou sedimentos (IYENGAR, 1990). A fração solúvel de rádio pode migrar nas águas superficiais e se depositar no solo através de ações químicas ou biológicas.

Existem poucos relatos a respeito da razão entre a concentração de rádio na rocha hospedeira e no solo produto desta, onde este se comporta de maneira similar à de seus homólogos cálcio, estrôncio e, principalmente, bário.

Nas águas, existe consideravelmente menos informação a respeito de ^{228}Ra do que de ^{226}Ra , devido em parte à consideração de que a curta meia-vida do ^{228}Ra e a maior solubilidade do U em relação ao Th, resultasse em atividades de ^{228}Ra menores que ^{226}Ra . Além disso, há uma maior dificuldade na medição de ^{228}Ra do que ^{226}Ra e, também, historicamente, muita atenção tem sido dada ao ^{226}Ra , em termos de contaminação antropogênica. Entretanto, a maioria das águas contém também ^{228}Ra , ^{224}Ra , ^{223}Ra , além de ^{226}Ra . Estes isótopos de vida mais curta podem ocorrer em atividades significativas. Por exemplo, atividades de ^{228}Ra de 115 Bq/L, de ^{224}Ra acima de 350 Bq/L, e de ^{223}Ra acima de 60 Bq/L foram observadas em águas salinas na Austrália (DICKSON, 1990).

As primeiras medidas de Ra no oceano foram feitas por EVANS et al. (1938) na costa da Califórnia. A partir de 1958 as medidas se tornaram mais frequentes, devido não tanto a sua significância radiológica, mas por ser uma ferramenta promissora para o entendimento dos processos geoquímicos marinhos. Atualmente tanto as águas dos oceanos como dos rios têm recebido mais atenção, e programas de monitoramento vêm ocorrendo em regiões onde a ocupação urbana está próxima às minerações e depósitos de U. Entretanto, existem poucos dados de “background” de Ra para rios e lagos.

As águas subterrâneas podem apresentar grandes variações na composição, com pHs menores que 2 até 11 e com valores de salinidade acima de 250 g/L. Apesar de que as concentrações de Ra em águas subterrâneas usadas como suprimento de água potável são de maior importância, observa-se que águas subterrâneas mais salinas com maior concentração de Ra, têm chamado a atenção dos pesquisadores, devido ao surgimento de propostas de armazenamento de rejeitos radioativos em formações geológicas profundas. Em águas com quantidade considerável de sais dissolvidos, a formação de complexos com ânions ou ligantes orgânicos pode ampliar significativamente o transporte do Ra (IYENGAR 1990).

Devido a radiotoxicidade do rádio, vários órgãos internacionais e nacionais adotaram limites máximos de atividade para limitar a exposição da população a este elemento. Por exemplo, o Ministério da Saúde do Brasil, para as águas para o consumo humano, estabelece um limite máximo de 0,1 Bq/L para a radioatividade alfa total e de 1 Bq/L para radioatividade beta total.

2.5. O Ra no Brasil

Nas últimas três décadas tem ocorrido um maior interesse no estudo dos núclídeos de rádio e seu comportamento no ambiente. Pode-se citar CAMPOS et al. (1986), PIRES DO RIO et al. (1988), LAURIA & GODOY (1988), BARCELLOS et al. (1990), JACOMINO et al. (1996), MANCINI & BONOTTO (1997), BONOTTO (1998), MANCINI & BONOTTO (1998), OLIVEIRA et al. (1998), MALANCA (1998), MAZZILLI et al. (2000), LAURIA & GODOY (2000), GODOY et al. (2001), OLIVEIRA et al. (2001) e RIBEIRO et al. (2001).

A maioria destes trabalhos foi realizada na região sudeste do país, em áreas de ocorrência de materiais radioativos. Com a necessidade, cada vez maior, de captação de água para o abastecimento público, principalmente de águas subterrâneas, novos estudos devem surgir.

2.6. Coeficiente de distribuição de Ra (Kd)

Vários estudos têm sido realizados com o propósito de avaliar a dispersão e transporte de rádio em rios e outros sistemas hídricos, os quais têm propiciado a elaboração de modelos de complexidade variável para predizer mudanças espaciais e temporais nas concentrações desse elemento. Dentre eles OKUBO et al. (1979), LI & CHAN (1979), BENES (1984), KEY et al. (1985), DAVIDSON & DICKSON (1986), WEBSTER et al. (1995). HANCOCK & MURRAY (1996), MOORE (1997) e muitos outros. No Brasil alguns estudos também enfocaram este problema como CAMPOS et al. (1986), BARCELLOS et al. (1990), BONOTTO (1998) e LAURIA & GODOY (2000).

A grande maioria dos modelos elaborados apresenta conotação matemática, uma vez que é mais fácil do que a obtenção de séries de dados durante

períodos de tempo prolongados. A formulação matemática mais simples, por exemplo, assume que o rádio permanece em solução, decrescendo sua concentração por diluição, seja por decaimento radioativo, seja por processos difusivos ou advectivos. A adsorção nos sedimentos reduz a concentração de rádio e outros elementos dissolvidos na água e, conseqüentemente, o impacto inicial devido à sua presença. Contudo, os sedimentos resultantes contaminados podem se tornar uma fonte de longa duração de poluição residual devido a possibilidade do elemento se tornar novamente suspenso ou solúvel (EDGINGTON, 1982).

Para a determinação do coeficiente de distribuição de rádio (Kd) adotou-se neste trabalho a proposição de BENES (1984), que relaciona a atividade do nuclídeo de rádio determinada na fase líquida e fase sólida (sólidos em suspensão) expressa por:

$$Kd = \frac{A_L}{A_{SS}} \quad (01)$$

onde Kd é o coeficiente de distribuição, A_L é a atividade da fase líquida e A_{SS} é a atividade da fase sólida. Geralmente o Kd é expresso em g/cm^3 , situando-se seus valores entre 10^3 e 10^6 (BENES, 1984).

3. Área de estudo e amostragem

O município de Araxá está localizado na região do Alto Paranaíba, no estado de Minas Gerais, a uma altitude média de 973 m, com uma área de 1.170,30 km². Suas coordenadas geográficas são 19°35'33" latitude sul e 46°56'26" longitude oeste. Sua população atual é de 74.206 habitantes (CIDADE VIRTUAL/ARAXÁ).

O município é servido por estradas de rodagem e de ferro, dispondo também de aeroporto com capacidade operacional para aviões de médio porte. As principais rodovias são: a BR – 262 ligando Uberaba a Belo Horizonte e a MG – 428/SP – 344 para Franca e Ribeirão Preto. A rede ferroviária serve a cidade por linha regular, indo até o porto de Angra dos Reis (Figura 3.1).

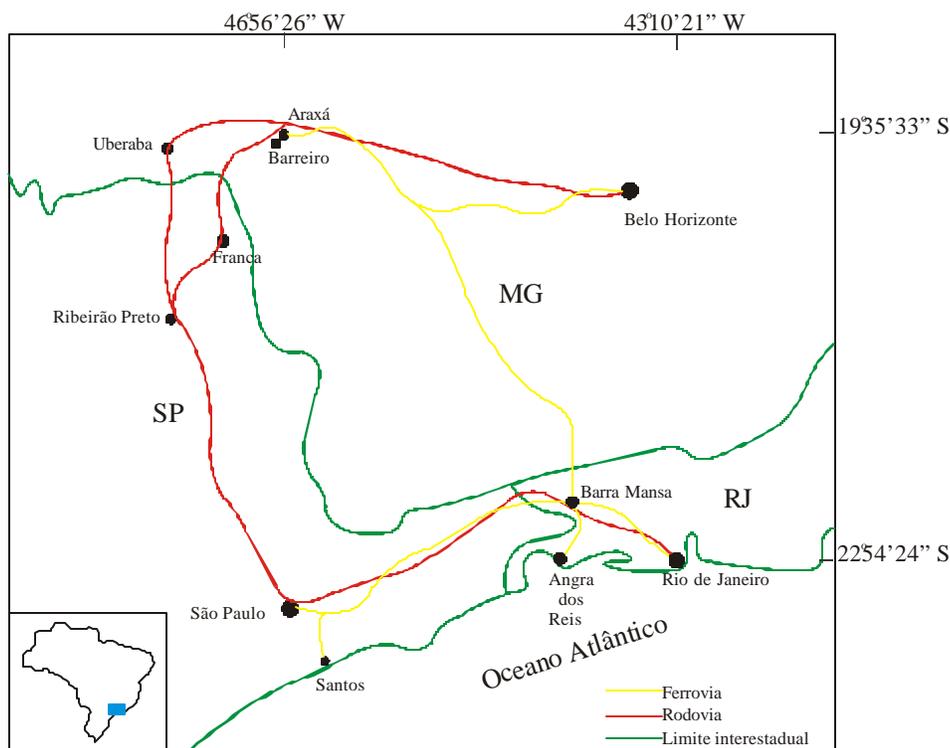


Figura 3.1 – Localização do Barreiro, Araxá (MG) (SILVA, 1987).

A temperatura média anual na região é de 20 °C, sendo 32 °C a máxima e 4 °C a mínima. A precipitação pluviométrica média anual é de 1544 mm, sendo a estação chuvosa no período de dezembro a fevereiro e a estação seca entre os meses de junho e setembro.

A vegetação regional é formada de campos e cerrados com restos de matas-galerias ao longo da rede hidrográfica.

Excetuando-se a serra do Pirapitinga, não se encontram elevações marcantes, constituindo-se o terreno de morros aplainados com topos achatados e encostas suaves, de forma elipsoidal. A cota mais alta está em torno de 1.200 m e a mais baixa a 935 m, resultando um gradiente de mais ou menos 270 m.

A 6 km da cidade está localizada a chaminé alcalina do Barreiro, onde se pode encontrar a famosa fonte de água radioativa, chamada de “Dona Beija”, conhecida desde o início do século passado, e que hoje faz parte do Parque das Águas do Barreiro. Também no mesmo local há a surgência de uma fonte de águas sulfurosas denominada “Andrade Júnior” em homenagem ao geólogo de mesmo nome.

O Barreiro também é conhecido por possuir, além das atividades turísticas, duas áreas de exploração mineral em atividade, isto é, uma de fosfato e outra de nióbio, pertencentes, respectivamente, à SERRANA S/A e à CBMM S/A (Companhia Brasileira de Metalurgia de Minério S/A).

No ano de 1984, como decorrência da necessidade de conciliação entre as atividades de mineração, turístico-hoteleira e de extração de água mineral dentro do Barreiro foi desenvolvido um projeto denominado Pró-Araxá. O programa destinado à preservação ecológica da Bacia do Barreiro envolveu, em convênio na época, o governo do Estado de Minas Gerais – através da Secretaria de Esporte, Lazer e Turismo, Secretaria da Agricultura, Secretaria de Ciência e Tecnologia e as empresas Comig, Comipa e Hidrominas, Arafertil (atual SERRANA S/A) e a CBMM, em conjunto com a Prefeitura de Araxá. Por este convênio, foram realizados estudos enfocando o impacto da mineração sobre a atividade turístico-hoteleira, inclusive uma análise hidrogeológica da Bacia do Barreiro, com a perfuração de mais de 70 poços de monitoramento, alguns com níveis múltiplos de amostragem da água.

3.1. Aspectos Geológicos

3.1.1. Geologia Regional

O complexo do Barreiro está situado numa zona de fraturamentos de direção geral NW. Nessa zona de fraturamento, com extensão de centenas de quilômetros de comprimento e constituída por diversos falhamentos paralelos, estão

situados também os complexos de Tapira, Salitre I e II, Serra Negra e Catalão I e II, estes dois últimos no estado de Goiás, conforme esboço geológico regional (Figura 3.2) (SILVA, 1987). Todos esses corpos formam a denominada Província Alcalino-Carbonatítica do Alto Paranaíba, encontram-se, por sua vez, encaixados em seqüências metassedimentares dos grupos Araxá, Canastra e Bambuí. Especificamente para o Grupo Araxá, onde se encontra o Complexo do Barreiro, tem-se, predominantemente, xistos e quartzitos.

3.1.2. Geologia Local

As características geológicas gerais do maciço e suas mineralizações, incluindo mapa geológico local, foram apresentadas por GROSSI SAD & TORRES (1970, 1976), enquanto aspectos mais específicos sobre a litologia foram discutidos por ISSA FILHO et al (1984) e BRAGA & BORN (1988). Trabalhos como os de ANDRADE JÚNIOR (1925) e GUIMARÃES (1926) também merecem ser destacados pelo seu pioneirismo.

O maciço é constituído principalmente por rochas carbonatíticas e glimeríticas, apresenta forma circular e ocupa uma área de aproximadamente 16 km² com diâmetro médio de 4,5 km (Figura 3.3). O corpo intrusivo provocou o desenvolvimento de fraturas concêntricas e radiais nas rochas encaixantes e causou intenso fissuramento nos quartzitos adjacentes.

A intrusão encontra-se circundada por um anel de rochas quartzíticas parcialmente fenitizadas, com espessura de 100 a 700 m. Essas rochas têm sido atribuídas ao Grupo Araxá, que na região é constituído principalmente por mica-xistos, embora sua própria distribuição, exclusivamente em torno das rochas alcalinas, possa sugerir uma relação genética com os fenômenos intrusivos, cuja idade em torno de 90 milhões de anos foi determinada por HASUI & CORDANI (1968, apud BRAGA & BORN, 1988).

O principal corpo de rochas carbonatíticas tem forma arredondada, com aproximadamente 2 km de diâmetro, estando situado na parte central do complexo do Barreiro (SILVA et al., 1979).

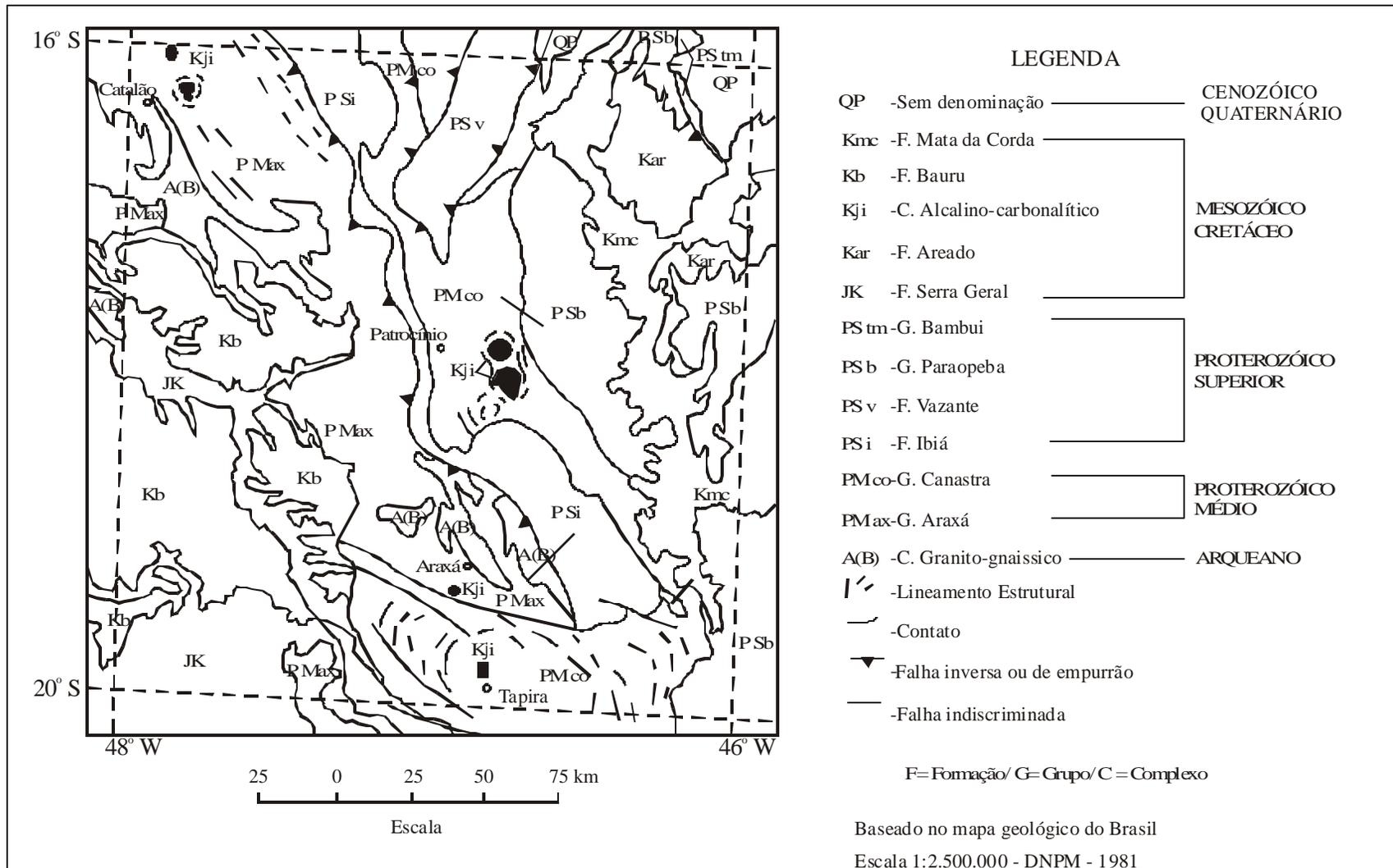


Figura 3.2 Mapa geológico da região do alto Paranaíba-MG/GO (SILVA, 1987).

A observação de testemunhos de sondagem mostra que o carbonatito ocorre principalmente como um sistema complicado de veios e diques, de alguns milímetros a vários metros de espessura, respectivamente, penetrando as rochas glimeríticas. As injeções do material carbonatítico ocorreram em fases diversas, sendo a estrutura brechada uma feição proeminente neste corpo.

Estudos petrográficos revelam que os carbonatitos são principalmente do tipo beforsítico de granulação média a grosseira, tendo a dolomita como o mineral predominante. Calcita e ankerita são subordinados e barita, apatita, magnetita, perovskita, quartzo secundário, pirita, flogopita, anfibólio sódico, isokita, estroncianita e outros podem, também, estar presentes no beforsito. O bariopirocloro é um acessório freqüente nesta rocha (ISSA FILHO et al., 1984).

Os glimeritos ocorrem em todos os testemunhos de sondagem analisados, nos mais diversos pontos do complexo, existindo, no entanto, uma auréola entre a zona central, rica em carbonatitos e o anel de quartzitos fenitizados, onde predominam as rochas glimeríticas cortadas por alguns diques de beforsito e sovito (SILVA et al., 1979).

A cor predominante dos glimeritos é marrom-escuro e a granulação varia de fina a grosseira. A flogopita é o principal constituinte, podendo a dolomita ocorrer em percentagem considerável. Magnetita e apatita são pouco abundantes. Estas rochas estão, freqüentemente, brechadas e penetradas por carbonatito. Algumas porções dos testemunhos apresentam glimeritos bastante grosseiros, sugerindo terem sido, completamente, recristalizados (ISSA FILHO et al., 1984).

O manto de intemperismo resultante da alteração das rochas alcalino-carbonatíticas apresenta espessuras acentuadas, localmente superiores a 200 metros, e sua evolução está relacionada a várias fases de peneplanização que afetaram a região. Esse material de alteração apresenta-se enriquecido principalmente em P_2O_5 , Nb_2O_5 , TiO_2 , BaO e TR_2O_3 , sendo que dentre os minerais encontrados, alguns são eluviais e outros neoformados. A distribuição desses óxidos na área da intrusão é irregular, refletindo a própria complexidade litológica da associação alcalina (BRAGA & BORN, 1988).

Na parte central da estrutura, o intemperismo provocou o enriquecimento de pirocloro, dando origem a uma das maiores reservas de nióbio do mundo. A composição mineralógica média e as reservas do minério de nióbio de Araxá são apresentadas respectivamente nas Tabelas 3.1 e 3.2, (ISSA FILHO et al., 1984).

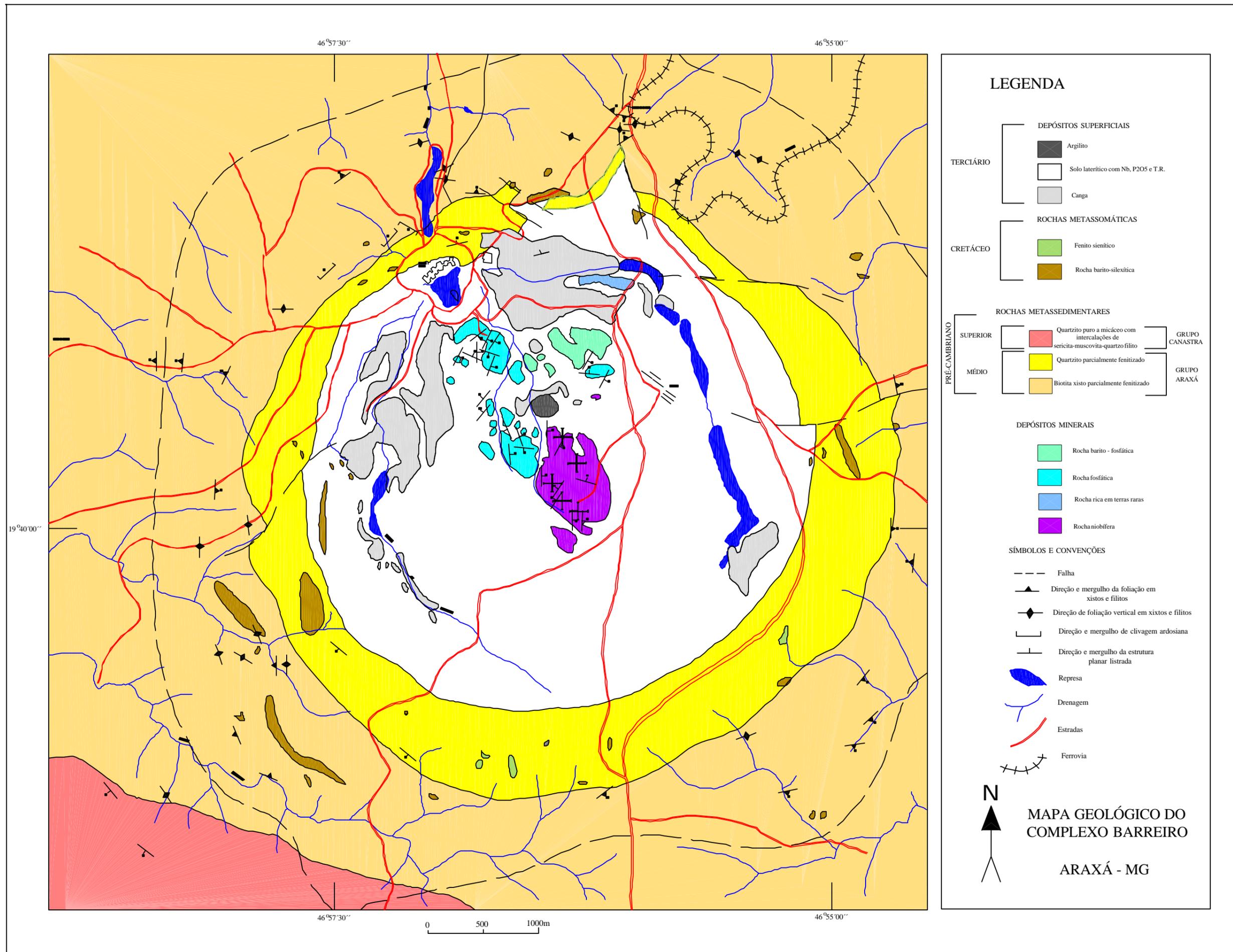


Figura 3.3 - Mapa geológico do Complexo do Barreiro (GROSSI SAD & TORRES, 1976 apud ISSA FILHO, 1984).

Tabela 3.1. Composição mineralógica média do minério de nióbio de Araxá (PARAISO & FUCCIO, 1981 apud ISSA FILHO et al., 1984).

Mineral	% Peso
Bariopirocloro	4,6
Limonita, Goethita	35,0
Barita	20,0
Magnetita	16,0
Gorceixita	5,0
Monazita	5,0
Ilmenita	4,0
Quartzo	5,0
Outros	5,4

Tabela 3.2. Reservas totais de minério da jazida de nióbio de Araxá (ISSA FILHO et al., 1984).

Categoria	Toneladas	% Nb ₂ O ₅
Medida	131.612.000	2,50
Indicada	41.793.000	2,49
Inferida	288.349.000	2,50
Total	461.754.000	2,50

Ainda no manto de intemperismo, pode-se encontrar uma grande reserva de fosfato situada na porção noroeste do complexo, que abrange uma área de aproximadamente 2,5 km². Grande parte desses minerais sofreram modificações ao serem

submetidos ao intemperismo. BRAGA & BORN (1988) classificaram em capeamento e material apatítico aquele encontrado nesta região.

O capeamento encontra-se dividido em dois materiais distintos que não contêm apatita apesar de apresentar P_2O_5 . A cobertura superficial corresponde a uma camada de cor avermelhada escura e espessura máxima da ordem de 20 metros nas áreas mais espessas. Apresenta na sua composição óxidos hidratados de ferro e argilominerais, podendo apresentar blocos de limonita dispersos ou concentrados, caracterizando uma canga seguida de um material estéril em apatita, resultante do intemperismo extremo dos constituintes originais. Este material nas regiões mais baixas tem espessura reduzida ou está ausente, porém, nas partes mais altas, pode atingir até 60 m. Essa parte do capeamento apresenta enriquecimento em Fe_2O_3 , SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2 , BaO , TR_2O_3 , Nb_2O_5 e mesmo P_2O_5 (BRAGA & BORN, 1988).

Imediatamente abaixo do capeamento (a passagem é abrupta) encontra-se a zona portadora de apatita sendo identificada pela presença de valores significativos de CaO . O material mineralizado, de aspecto terroso, possui cor marrom média a escura, podendo apresentar teores de P_2O_5 apatítico superiores a 20%, que implicam em mais de 50% de apatita. Após algumas dezenas de metros passam a ser encontrados minerais de aspecto micáceo, descoloridos, que mais abaixo assumem coloração dourada a marrom clara. Um novo nível de aspecto característico encontra-se subjacente, sendo representativo de intemperismo menos acentuado. Os minerais micáceos assumem cor marrom esverdeada a verde escura, podendo atingir de 20 a 30 m de espessura e sendo sucedidos de modo bastante abrupto por um novo material, caracterizado ainda pela cor esverdeada, porém, portador de carbonatos, freqüentemente, em intervalos de 5 m. Os carbonatos passam a representar parcela significativa dos minerais que acompanham a apatita. Esse material carbonático ainda faz parte do manto de intemperismo e possui espessura de 10 a 30 m. A seguir, ocorre uma região de material semicoeso, não mais incluído no manto de intemperismo, e que ainda conserva as estruturas originais, configurando um nível de rocha semi-alterada, com espessura de 10 a 20 m, após o qual se encontram rochas carbonáticas e glimeríticas frescas (BRAGA & BORN, 1988). A composição química desses materiais pode ser encontrada na Tabela 3.3.

Tabela 3.3. Composição química (em %) de amostras da jazida de fosfato em Araxá (TAKATA et al., 1990).

Amostra	P ₂ O ₅	CaO	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	MgO	BaO	TiO ₂	Na ₂ O	K ₂ O	Sr	S	CO ₂
A – 1	16,00	18,60	5,25	2,29	28,40	1,68	5,88	4,60	1,29	0,17	0,63	1,05	1,28
B – 1A	11,00	16,40	19,20	1,91	26,60	10,80	0,20	4,65	1,08	0,97	0,21	<0,10	0,71
B – 1B	8,97	14,80	24,00	2,66	23,80	11,50	0,35	5,43	0,91	0,89	0,15	<0,10	1,03
B – 2A	10,40	17,40	16,70	1,92	21,70	12,60	0,80	4,84	1,23	0,59	0,28	0,15	2,20
B – 2B	12,00	20,60	16,40	2,21	14,20	10,80	3,38	3,84	1,09	0,80	0,37	0,55	3,46
C – 1A	13,10	23,50	14,10	1,35	18,80	9,31	0,96	2,97	1,39	0,43	0,38	2,93	4,84
C – 1B	9,47	32,50	9,02	1,04	14,60	6,93	1,52	1,93	0,91	0,40	0,28	0,24	15,65
C – 2A	10,40	22,00	18,50	1,86	18,00	9,08	0,29	3,78	1,05	0,95	0,23	<0,10	5,75

Também pode-se destacar a presença de três áreas, nas quais os minerais de terras raras são abundantes: a área à esquerda do Córrego da Mata, com direção leste-oeste; a área próxima ao depósito de nióbio, na parte central do complexo; a área sudeste deste mesmo depósito (GROSSI SAD e TORRES, 1976). Na Tabela 3.4 apresenta-se uma análise química por espectrometria de raios X de uma amostra média do depósito de terras raras do complexo do Barreiro.

3.2. Ocorrência de material radioativo

CASTRO & SOUZA (1970) identificaram quatro tipos de mineralização responsáveis pela presença do urânio na área do Barreiro, sendo que apenas um mineral de urânio (autunita) foi identificado. No restante, o elemento integra a rede cristalina, principalmente do pirocloro e monazita.

Tabela 3.4. Principais constituintes do depósito de terras raras do complexo do Barreiro (CASTRO & SOUZA, 1970).

Principais Constituintes	%
SiO ₂	17,40
Al ₂ O ₃	14,70
P ₂ O ₅	9,93
Nb ₂ O ₅	2,21
Fe ₂ O ₃ *	11,60
BaO	5,58
SrO	2,21
TiO ₂	6,94
MnO	0,60
PbO	0,65
SO ₃	0,41
ZrO ₂	0,47
CaO	0,91
CeO ₂	6,28
La ₂ O ₃	3,80
Nd ₂ O ₃	1,58
Sm ₂ O ₃	0,19
Pr ₆ O ₁₁	0,49
Y ₂ O ₃	0,19
U ₃ O ₈	0,052
ThO ₂	0,60
H ₂ O ⁺	9,87
Total	96,662

*Fe₂O₃ incluindo ferro total.

3.2.1. Radioatividade associada ao pirocloro

O pirocloro é um grupo mineral complexo, cuja fórmula pode ser expressa pela seguinte equação: A₂B₂X₇. Nos grupos A e B várias substituições podem ocorrer, sendo que as principais são: A(Na, Ca, Ba, K, U) e B(Nb, Ta, Ti). Em Araxá, o

pirocloro é do tipo bariopirocloro, onde o bário ocupa com destaque a posição A, e o nióbio predomina na posição B (CASTRO & SOUZA, 1970).

Nos estudos realizados pelo IPR (Instituto de Pesquisas Radioativas), ficou claro que existiram diferentes gerações de pirocloro responsáveis pela presença do urânio naquele mineral. Aquela no qual o urânio não passa de mero elemento traço na composição geral do mineral (100 ppm U_3O_8 em média no minério), e que constitui a quase totalidade do depósito de nióbio, e outra em que a presença desse elemento se enquadra na faixa do pirocloro uranífero, com o urânio atingindo até 2% no concentrado.

3.2.2. Radioatividade associada à rocha fosfática

A ocorrência de minerais secundários de urânio, principalmente autunita e possivelmente uranocircita (fosfato hidratado de bário e urânio), foi constatada em áreas restritas, onde aparecem preenchendo fraturas de rocha contendo principalmente apatita e baritina.

Com os trabalhos de pesquisa desenvolvidos nessa área, ficou claro que a mineralização foi e continua sendo regida por fenômenos principalmente de ordem estrutural. É necessário, para que haja mineralização, que a rocha hospedeira mostre-se suficientemente fraturada, afim de que águas vadasas originadas do depósito de pirocloro uranífero situado a montante, encontrem condições de percolamento e posterior deposição de minerais uraníferos fosfatados.

Toda a mineralização se situa acima do nível freático, com uma profundidade máxima de 27 m. Nessas faixas onde a autunita predomina, o teor médio de urânio é a da ordem de 0,11 % U_3O_8 . O mineral se apresenta em palhetas delgadas e milimétricas de cor verde-pálido, preenchendo, de preferência, os planos de fraturas e vazios da rocha.

3.2.3. Radioatividade associada à apatita

A presença de teores de urânio variando de 150 a 200 ppm de U_3O_8 no extenso depósito de fosfato do Barreiro (atualmente explorado pela SERRANA) constitui um outro tipo de associação, no qual o urânio pode vir a ser recuperado como sub-produto.

3.2.4. Radioatividade associada às terras raras

A ocorrência de urânio associado às terras raras, situada na parte centro-norte da chaminé do Barreiro, constitui um outro tipo de mineralização. A gênese desse depósito está ligada à presença de um carbonatito rico em terras raras, formando uma estrutura fechada de forma elipsoidal.

Morfológicamente, o depósito é caracterizado pela horizontalidade dos diversos níveis de enriquecimento, com faixas mais ricas em terras raras e urânio intercalados entre camadas mais pobres nestes elementos. Essa seqüência é, às vezes, interrompida por pequenas falhas de acomodamento, originadas pela solubilização de constituintes do protominério. Apenas a parte sudoeste do depósito foi afetada por movimentos de maior importância, onde, por efeito de falhamento transcorrente, o bordo sul sofreu um deslocamento de aproximadamente 100 m.

A provável predominância de carbonato de cálcio no protominério, aliada à relativa ausência de bário e óxidos de ferro, fez com que, durante o intemperismo, as terras raras se concentrassem de maneira notável.

3.3. Aspectos hidrológicos

3.3.1. Características hidrogeológicas

Especificamente na região do Barreiro de Araxá é onde são encontradas as fontes hidrominerais que deram ao município o título de Estância Hidromineral. Duas fontes fazendo parte do Parque das Águas do Barreiro merecem destaque: a mais conhecida, denominada Fonte Dona Beija e a Fonte Andrade Júnior.

A fonte Dona Beija corresponde ao primeiro marco da exploração mineral no Barreiro de Araxá. A água mineral ali explorada constitui, atualmente, um patrimônio natural e histórico da região economicamente significativo, e de inegável valor turístico. Situa-se a fonte num local onde, por efeito da topografia, o lençol freático intercepta a superfície do terreno, ou seja, o afloramento da água subterrânea sob a forma de uma fonte. Apresenta baixa salinidade, mas é fortemente radioativa (LOPES, 1956). Sua descarga é mantida a partir da recarga por chuva. Caracteriza-se por um reduzido tempo de permanência da água no aquífero. A distância máxima entre a fonte e as áreas de reabastecimento é estimada ser de 2 a 3 km.

BEATO et al. (2000) definiram este aquífero como sendo do tipo granular, livre a semiconfinado, principalmente no domínio do corpo intrusivo, possuindo cerca de 2 km de diâmetro e espessura bastante variável (chegando a atingir 200m na porção Sul, próximo à mina de nióbio). Localmente pode ser semiconfinado por níveis mais argilosos do manto intemperizado.

A recarga se dá por infiltração direta nas áreas de cotas mais elevadas, escoando em subsuperfície por linhas de fluxo convergentes até o nível de base, ou zona de descarga, que são o lago do Grande Hotel e o córrego do Sal. A recarga também ocorre pela infiltração na área denominada anel verde, com aproximadamente 70 ha, a montante da fonte Dona Beija, que permite um significativo reabastecimento do aquífero, e pelas águas das barragens “E”, “F”, “BCM” e o “Dique da mina de fosfato” (Figuras 3.4 e 3.5).

A fonte Andrade Júnior localiza-se à frente do Grande Hotel (Figura 3.5), é geneticamente distinta da fonte Dona Beija, sendo suas características também radicalmente distintas, com forte salinização e termalidade. Sua origem é considerada ser profunda, aflorando em local onde a rocha ainda não sofreu alteração.

Segundo BEATO et al. (2000) o aquífero é fraturado, livre a semiconfinado, e ocorre principalmente nas rochas em torno do Complexo Carbonático. A recarga se dá por infiltração direta das águas pluviais nos poucos pontos de afloramento e por infiltração de águas do solo residual do quartzito. O fluxo apresenta-se em várias direções, uma vez que o corpo é circular e apresenta diferentes altitudes.

O aquífero granular na bacia do Barreiro é caracterizado por linhas de fluxo subterrâneo proveniente dos extremos da bacia, a montante, e dirigidas à área do Parque das Águas, a jusante, como mostra a Figura 3.4 em duas situações distintas: uma caracterizando o período pré-lavra e outra o período pós-lavra.

As atividades mineradoras da região, isto é, a mineração de fosfato e a de nióbio, causam alterações significativas na água subterrânea do aquífero granular. A atividade de lavra de nióbio parece não afetar significativamente o equilíbrio hidrológico local em termos quantitativos, devido à lavra estar localizada acima do nível d'água, sem a necessidade de abertura de drenos, contudo, afetou a qualidade através da contaminação por cloreto de bário, resíduo do beneficiamento do nióbio. Por outro lado, a lavra de

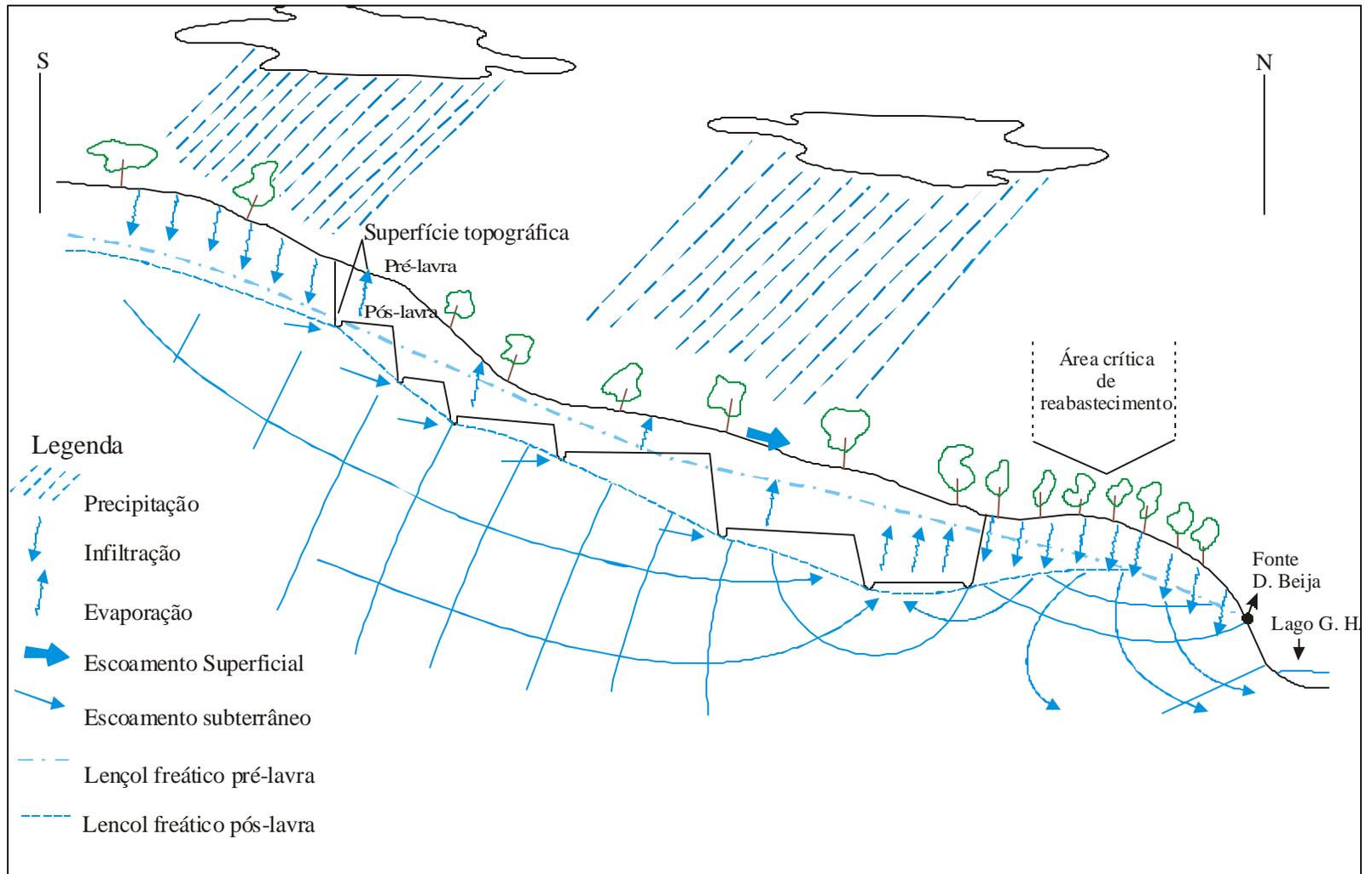


Figura 3.4 Esboço hidrogeológico esquematizado ao longo do córrego da Cascatinha, (FUNTEC (1984)).

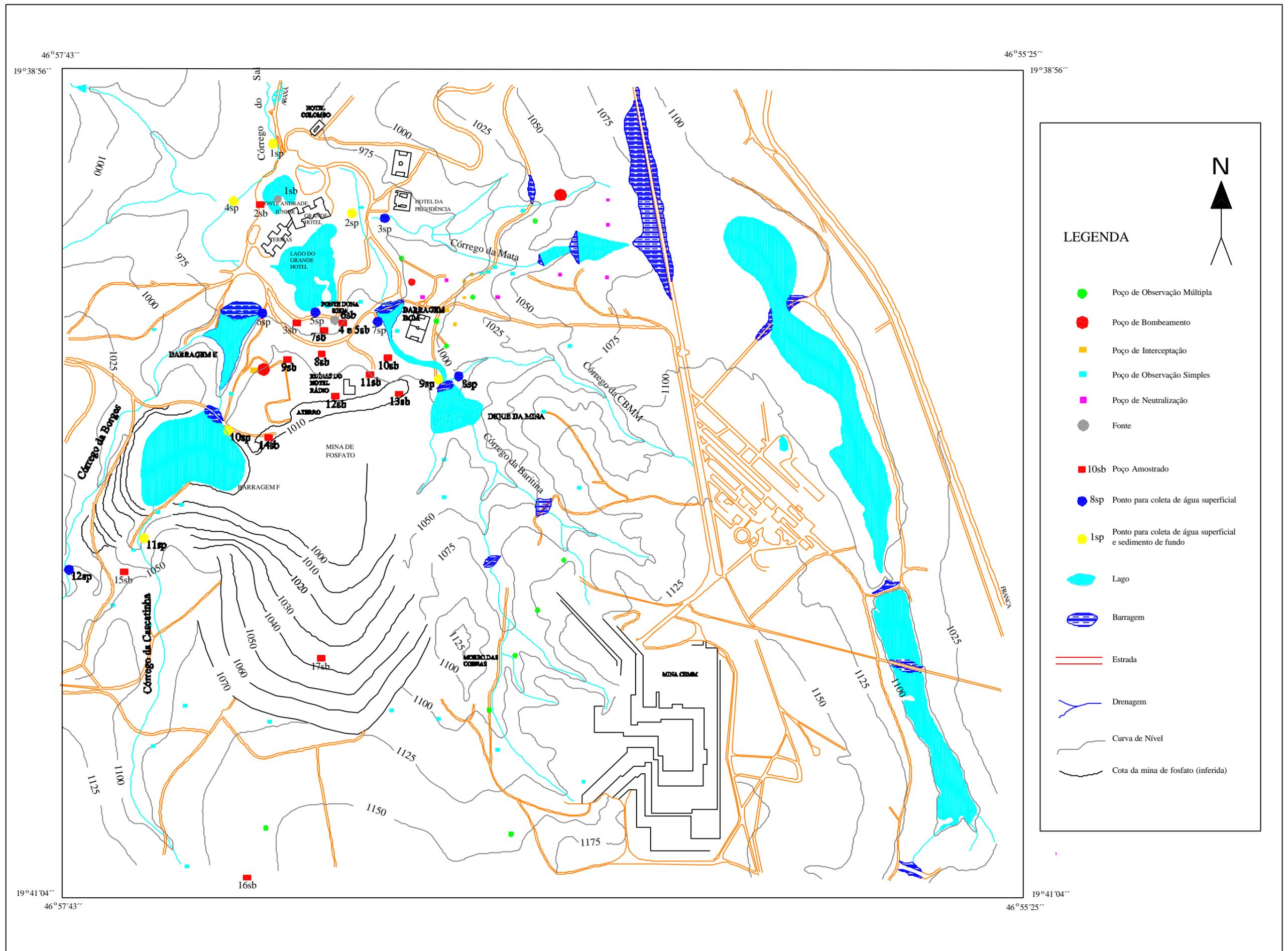


Figura 3.5 - Localização dos pontos de coleta na região do Barreiro (modificado de FUNTEC, 1984)

fosfato influenciou quantitativamente no equilíbrio hidrológico, se fazendo necessária a abertura de drenos (Figura 3.4) para tornar possível a atividade de lavra (FUNTEC, 1984; BEATO et al., 2000). Os drenos permitem que a água subterrânea, com características próprias de pureza, temperatura, ausência de sólidos em suspensão, etc., passe a ser água superficial com características também próprias. Além disso, resulta na perda de enormes volumes por evaporação direta de água, anteriormente retidos em lento movimento através do aquífero, por escoamento subterrâneo e descarga em áreas a jusante. Portanto, notam-se efeitos tanto qualitativos quanto quantitativos (FUNTEC, 1984).

Com os valores dos níveis d'água medidos no campo (Tabelas 5.3 e 5.4) determinaram-se os níveis piezométricos, tendo sido possível construir diagramas de isolinhas para representar a porção estudada do aquífero na região do Barreiro conforme se observa, para as etapas de coleta realizadas nos períodos chuvoso e seco (Figuras 3.6 e 3.7). Não há diferença significativa entre os dois diagramas, sugerindo pouca mudança do nível piezométrico em virtude das variações sazonais. Nota-se, também, que o fluxo se dá de forma concêntrica, em direção ao Parque das Águas.

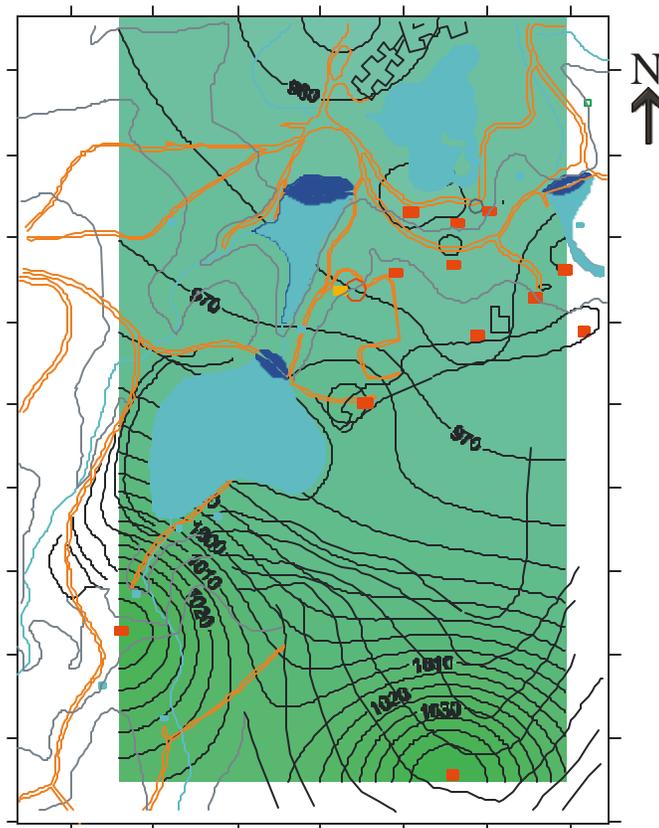


Figura 3.6 – Representação do nível piezométrico (m) para a porção estudada do aquífero. Período chuvoso: 16 a 19/02/2000.

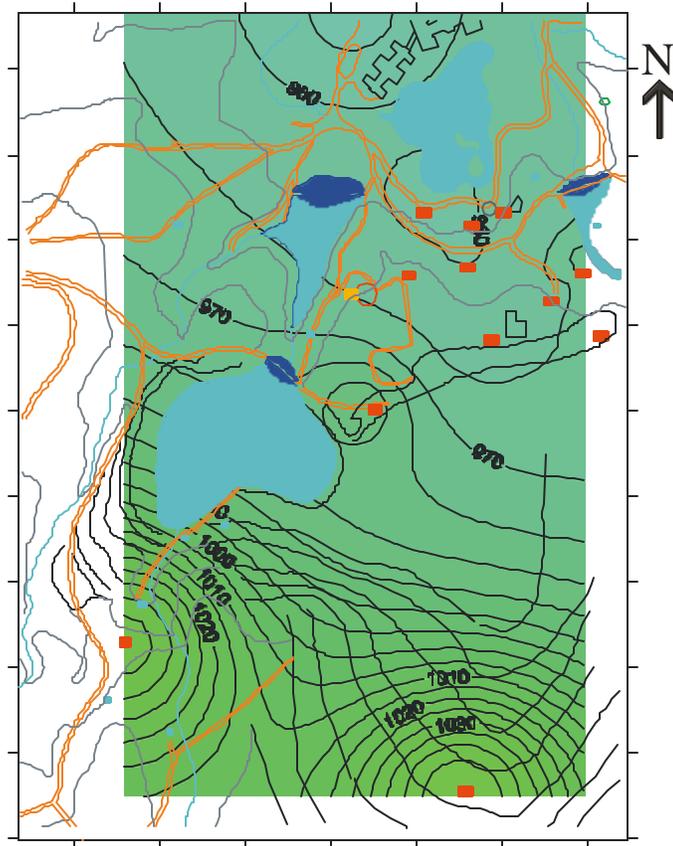


Figura 3.7 – Representação do nível piezométrico (m) para a porção estudada do aquífero. Período seco: 12 a 16/09/2000.

3.3.2. Características hidrográficas

A região do Barreiro é drenada por pequenos córregos, de disposição mais ou menos radial, como mostra a Figura 3.5, destacando-se os Córregos da Cascatinha e do Borges na porção oeste e os Córregos da Baritina e da Mata na porção leste.

Os Córregos da Cascatinha, do Borges e da Baritina drenam os locais de lavra e de disposição de rejeitos da mina de fosfato. O córrego da Baritina também recebe águas provenientes da mineração de nióbio, enquanto o Córrego da Mata sofre influência da mineração de nióbio. Todos eles afluem em direção ao Parque das Águas, dando origem ao Córrego do Sal, única saída do Barreiro.

Na área, também, são encontradas quatro barragens duas barragens no Córrego da Baritina (Barragem “BCM” e “Dique da mina de fosfato”) do lado leste da

área e outras duas barragens no Córrego da Cascatinha (Barragem “E” e “F”) do lado oeste. Dois lagos foram formados para compor o paisagismo do Parque das Águas o Lago do Grande Hotel, formado basicamente pelas águas da fonte Dona Beija e o lago ao lado da fonte Andrade Junior, formado pelas águas desta fonte (Figura 3.5).

3.3.3. Pontos de coleta de amostras

Neste trabalho foram realizadas três etapas de campo, duas para a coleta de amostras de águas superficiais e subterrâneas e uma para a coleta de sedimentos de fundo. A amostragem de águas ocorreu no período de 16 a 19 de fevereiro de 2000 e de 12 a 16 de setembro do mesmo ano. A coleta de sedimentos foi realizada em 15 de novembro de 2001.

Foram selecionados 12 pontos para coleta de amostras de águas superficiais e 17 pontos para coleta de amostras de águas subterrâneas, perfazendo um total de 29 pontos de coleta de água, bem como 6 pontos para coleta de sedimentos de fundo, os quais podem ser observados na Figura 3.5.

Os pontos de coleta de águas superficiais foram determinados a partir da análise da drenagem e da localização das barragens existentes nos córregos, posicionando-se desde a montante até a saída da drenagem do Barreiro no Córrego do Sal.

O Quadro 3.1 traz uma descrição sucinta destes pontos, sua localização geográfica e a denominação que será utilizada no decorrer deste trabalho. Para cada amostra de água superficial foi coletado, em frasco de polietileno, um volume de 20 a 25 litros, entrando-se no córrego e permanecendo-se em posição a jusante do ponto de coleta, para impedir a introdução de sedimentos de fundo na amostra.

Quadro 3.1 – Descrição e localização dos pontos de coleta de amostras de águas superficiais do Barreiro, Araxá (MG).

Código da amostra	Localização	Descrição do ponto
1sp	19°38'39" S / 46°57'01" W	Córrego do Sal, ao lado da Igreja do Barreiro, antigo lago inferior.
2sp	19°38'44" S / 46°56'50" W	Córrego da Baritina, ao lado do Grande Hotel, a jusante do Córrego da Mata.
3sp	19°38'46" S / 46°56'49" W	Córrego da Mata, afluente do Cór. da Baritina ao lado do Hotel da Providência.
4sp	19°38'46" S / 46°57'04" W	Córrego da Cascatinha a jusante da Barragem "E", ao lado do Bosque do Barreiro.
5sp	19°38'58" S / 46°56'56" W	Lago do Grande Hotel, formado pelas águas da Fonte Dona Beija, atrás do Grande Hotel.
6sp	19°38'59" S / 46°57'06" W	Barragem "E" acima da envasadora de água mineral (Super Água). Recebe as águas da Barragem "F" e do Cór. do Borges.
7sp	19°38'58" S / 46°56'46" W	Barragem formada por antigos diques de decantação utilizados pela Camig quando explorava minério de fosfato. Será denominada por nós de "BCM"
8sp	19°39'00 S / 46°56'39" W	Córrego sem nome que deságua na Barragem "BCM". Lugar de difícil acesso, próximo ao atual dique da mineração de fosfato, será designado de Córrego da CBMM, por ter sua nascente na mina pertencente a esta empresa.
9sp	19°39'06" S / 46°56'39" W	Saída do atual dique da mina de fosfato pertencente à Serrana, ao lado das antigas instalações da Camig.

Continuação		
10sp	19°39'13" S / 46°57'10" W	Barragem "F" localizada na Mata da Cascatinha. Formada pelas águas do Cor. da Cascatinha e águas provenientes dos drenos existentes na mina de fosfato.
11sp	19°39'28" S / 46°57'21" W	Água coletada nas cascatas formadas pelo Córrego da Cascatinha na Mata da Cascatinha. Lugar utilizado para o lazer público.
12sp	19°39'32" S / 46°57'30" W	Córrego do Borges, dentro da área da Serrana. Lugar de difícil acesso.

Os pontos de coleta de águas subterrâneas foram selecionados de acordo com a Figura 3.5, estando os poços, em sua maioria, localizados no Parque das Águas e na região da mineração de fosfato. Foram escolhidos 14 poços, 1 ponto em um dreno da mina de fosfato e as duas fontes existentes no Barreiro. O Quadro 3.2 traz uma descrição sucinta destes pontos, sua localização geográfica e a denominação que será utilizada no decorrer deste trabalho. Para cada amostra de água subterrânea foi coletado, em frasco de polietileno, um volume de 20 a 25 litros, utilizando-se amostrador consistindo de tubo de PVC, de 50 mm de diâmetro e 1,0 m de comprimento, com uma válvula esférica na extremidade inferior para controle da entrada e retenção de água.

Quadro 3.2 – Descrição e localização dos pontos de coleta de amostras de águas subterrâneas do Barreiro, Araxá (MG).

Código da amostra	Localização	Descrição do ponto
1sb	19°38'44" S / 46°57'00" W	Fonte Andrade Jr, no jardim lado do Grande Hotel.
2sb	19°38'45" S / 46°57'03" W	Poço de monitoramento do Projeto Pró-Araxá, (código 10/39), ao lado da fonte Andrade Jr.

Continuação		
3sb	19°39'00" S / 46°56'57" W	Poço de monitoramento do Projeto Pró-Araxá, (código 19/42), no caminho de acesso à fonte Dona Beija.
4sb	19°39'59" S / 46°56'50" W	Poço de monitoramento do Projeto Pró-Araxá, (código 19/46A). Faz parte de um conjunto de 4 poços perfurados no mesmo lugar, com profundidades diferentes. É o de maior profundidade, situando-se acima da fonte Dona Beija.
5sb	19°39'59" S / 46°56'50" W	Poço de monitoramento do Projeto Pró-Araxá, (código 19/46B), sendo o segundo mais profundo dos quatro (4sb).
6sb	19°38'46" S / 46°57'04" W	Lugar de afloramento de água da Fonte Dona Beija.
7sb	19°39'59" S / 46°56'52" W	Poço de monitoramento do Projeto Pró-Araxá, (código 19,5/44), ao lado da fonte Dona Beija.
8sb	19°39'03" S / 46°56'54" W	Poço de monitoramento do Projeto Pró-Araxá, (código 21/44), no caminho para o parque das Ruínas do Hotel Rádio.
9sb	19°39'36" S / 46°57'00" W	Poço de monitoramento do Projeto Pró-Araxá, (código 21,7/40,5), no parque das Ruínas do Hotel Rádio.
10sb	19°38'04" S / 46°56'45" W	Poço de monitoramento do Projeto Pró-Araxá, (código 21,7/49,6), localizado no parque das Ruínas do Hotel Rádio, próximo à Barragem "BCM".
11sb	19°39'06" S / 46°56'46" W	Poço de monitoramento do Projeto Pró-Araxá, (código 23/48), localizado no parque das Ruínas do Hotel Rádio, do lado esquerdo ao caminho para as ruínas do hotel.

Continuação		
12sb	19°39'09" S / 46°56'53" W	Poço de monitoramento do Projeto Pró-Araxá, (código 25/45), atrás das ruínas do hotel.
13sb	19°39'09" S / 46°56'44" W	Poço de monitoramento do Projeto Pró-Araxá, (código 25/50), localizado no aterro atrás das ruínas do Hotel Rádio, onde hoje existe o Anel Verde.
14sb	19°39'15" S / 46°57'03" W	Poço de monitoramento do Projeto Pró-Araxá, (código 28,5/39), localizado no aterro atrás das ruínas do Hotel Rádio, onde hoje existe o Anel Verde.
15sb	19°39'33" S / 46°57'22" W	Poço de monitoramento do Projeto Pró-Araxá, (código 39,5/28), situado em local de difícil acesso na área da Serrana.
16sb	19°40'17" S / 46°57'04" W	Poço de monitoramento do Projeto Pró-Araxá, (código 63/39), localizado a montante da mina da Serrana, num dos pontos mais altos do Barreiro.
17sb	19°39'45" S / 46°56'55" W	Água proveniente de um dos drenos de escoamento da mina de fosfato da Serrana, representando água subterrânea aflorante.

Na primeira etapa de campo não foi possível a proceder a coleta de amostras de água subterrânea nos pontos 13sb e 16sb; o ponto 13sb estava obstruído e para o ponto 16sb o diâmetro do coletor era maior que o diâmetro do poço. Na segunda etapa de campo, os pontos 8sb e 12sb estavam secos, não sendo possível a amostragem; o ponto 13sb foi recuperado pela Serrana, um novo coletor foi providenciado para a coleta do ponto 16sb, porém, apesar disso, foi possível amostrar apenas cerca de 5 L de água deste poço.

O Quadro 3.3 traz uma descrição sucinta dos pontos de coleta dos sedimentos de fundo, sua localização geográfica e a denominação que será utilizada no decorrer deste trabalho. A coleta foi realizada nos mesmos locais de amostragem de água

superficial, ou muito próximo, motivo pelo qual se preservou o número correspondente seguido de “sed” (sedimento). A coleta de sedimentos de fundo foi realizada com amostrador (um tubo de PVC) de 50 mm de diâmetro e 1 m de comprimento, o qual foi introduzido no local escolhido para amostragem; a amostra foi recolhida e armazenada em saco plástico.

Quadro 3.3 – Descrição e localização dos pontos de coleta de amostras de sedimentos de fundo do Barreiro, Araxá (MG).

Código da amostra	Localização	Descrição do ponto
1sed.	19°38'39" S / 46°57'01" W	Córrego do Sal.
2sed.	19°38'44" S / 46°56'50" W	Córrego da Baritina.
4sed.	19°38'46" S / 46°57'04" W	Córrego da Cascatinha ao lado do Bosque do Barreiro.
9sed.	19°39'06" S / 46°56'39" W	Na saída do dique da atual mineração de fosfato da Serrana.
10sed.	19°39'13" S / 46°57'10" W	Barragem “F”.
11sed.	19°39'28" S / 46°57'21" W	Córrego da Cascatinha, nas cascatas. O córrego estava seco no dia da coleta.

4. Procedimento analítico

Várias técnicas foram empregadas nesta pesquisa, tais como: análise química e físico-química das águas, análise cintilométrica/espectrométrica das águas, sedimentos e sólidos em suspensão para caracterização dos isótopos de rádio e análise espectrométrica do urânio nas águas. Além disso, técnicas estatísticas convencionais foram utilizadas para o tratamento e interpretação dos dados obtidos, por exemplo: análise de correlações, análise linear de curvas e interpolações espaciais.

Todas as análises químicas e radiométricas foram realizadas no LABIDRO (Laboratório de Isótopos e Hidroquímica) do Departamento de Petrologia e Metalogenia do Instituto de Geociências e Ciências Exatas - UNESP - Campus de Rio Claro.

4.1. Preparação das amostras

Durante a coleta, determinaram-se para as águas alguns parâmetros físico-químicos (temperatura, condutividade elétrica, pH e Eh.), bem como o nível d'água nos poços. Para as medidas de temperatura e condutividade elétrica foi utilizada uma sonda da YSI modelo 3000 T-L-C, à qual se encontra acoplada a uma trena, que foi utilizada na medida da profundidade do nível d'água dos poços analisados. Para as medidas de pH e Eh, foi utilizado um medidor portátil da Digimed. No laboratório, as amostras de água foram filtradas em membrana Millipore de 0,45 μm , para separação dos sólidos em suspensão. As amostras de sedimentos de fundo foram secas, desagregadas e peneiradas para separar do material mais grosso a fração granulométrica entre 0,053 a 0,177 mm.

Após a filtragem, dividiu-se cada amostra de água em três alíquotas: uma de 1 litro para análise química, uma de 4 litros para análise de ^{226}Ra e o restante para análise de ^{228}Ra e urânio. A membrana utilizada na filtragem foi seca e pesada para a determinação da quantidade de sólidos em suspensão, parâmetro necessário para a avaliação de rádio nessa fase.

4.2. Análises químicas das águas

Para a caracterização química das águas, foram analisados os principais cátions e ânions, sílica, alcalinidade e tanino/lignina.

Para as análises de sílica, tanino/lignina, alcalinidade como HCO_3^- , K^+ , Mg^+ , Ca^{2+} , Ba^{2+} , NO_3^- , SO_4^{2-} e PO_4^{3-} foi utilizado o espectrofotômetro Hach modelo DR 2000 e as metodologias descritas no seu manual (HACH, 1992).

A medida de Na^+ foi conduzida por meio do método potenciométrico com eletrodo combinado Orion modelo 9811, acoplado ao medidor Analion modelo IA 601, conforme descrito por MANCINI (1997). Para a análise dos ânions Cl^- e F^- também foi utilizada a técnica potenciométrica, cuja descrição encontra-se detalhada em TONETTO (1996).

4.3. Análise radiométricas

Neste trabalho foi utilizada a técnica emanométrica, adaptada de LIMA (1993), para a determinação de ^{226}Ra nas águas e sólidos em suspensão, a espectrometria gama para a análise de ^{226}Ra nos sedimentos de fundo e de ^{228}Ra nas águas, sólidos em suspensão e sedimentos de fundo e a espectrometria alfa para a análise de urânio.

4.3.1. Determinação de ^{226}Ra nas águas e sólidos em suspensão

O princípio do método consiste em se fazer a emissão e extração do radônio (^{222}Rn) da amostra, proveniente do decaimento do rádio (^{226}Ra), e em se medir a sua atividade (e de seus produtos de decaimento de curta meia-vida).

As amostras de água foram armazenadas em frascos de vidro com capacidade para 4L, já adaptados para o processo. Para os sólidos em suspensão, os filtros foram introduzidos em frascos de vidro com capacidade para 1L, também adaptados para o processo.

O processo de extração constou de várias etapas, adaptadas de LIMA (1993):

- 1) Eliminação de ^{222}Rn residual;

2) Espera de no mínimo 26 dias para acúmulo do ^{222}Rn proveniente do decaimento do ^{226}Ra ;

3) Extração do ^{222}Rn da amostra através de sistema de circuito fechado, ficando o radônio retido em recipiente contendo carvão ativado a -80°C ;

4) Transferência do radônio para câmara de cintilação, por meio de um forno a 200°C ;

5) Mensuração do ^{222}Rn por meio de cintilometria alfa, através de câmara de cintilação acoplada a fotomultiplicadora.

Para se obter a atividade de ^{226}Ra , tanto para as águas como para os sólidos em suspensão, foram utilizadas várias equações descritas por LIMA (1993) que permitem encontrar a atividade calculada (A_p) para a amostra, através da expressão:

$$A_p = \frac{A_d}{F_k} \quad (01)$$

onde F_k é o fator de calibração para cada câmara e A_d é a atividade corrigida devido ao decaimento do ^{222}Rn durante o tempo compreendido entre o início do processo de extração e o final da realização da medida. O desvio padrão (σA_p) desta atividade é dado por:

$$\sigma A_p = \sqrt{\left(\frac{\sigma A_d}{A_d}\right)^2 + \left(\frac{\sigma F_k}{F_k}\right)^2} \cdot A_p \quad (02)$$

Esta atividade pode ser expressa em relação ao volume ou massa da amostra a partir equação:

$$A_{t_n} = \frac{A_p}{N} \quad (03)$$

onde N representa o volume ou a massa da amostra. Seu desvio padrão é dado por:

$$S_{An} = \frac{S_{Ap}}{N} \quad (04)$$

4.3.2. Determinação de ^{226}Ra nos sedimentos de fundo

A espectrometria gama baseada na emissão gama natural do ^{214}Bi com energia da ordem de 1,76 MeV foi utilizada para a quantificação de ^{226}Ra nas amostras de sedimentos de fundo. O sistema utilizado para detecção da radiação gama é composto de um detector de cintilação de NaI(Tl) do tipo plano, pré-amplificador, amplificador, e computador possuindo uma placa ACE 2k da EG&G Ortec, controlada por um software simulador de analisador multicanal (2048 canais) A técnica baseia-se na detecção, amplificação e contagem dos fótons gerados pela interação da radiação gama com o cristal de NaI(Tl).

Para a calibração em energia do sistema empregado, descrita por DUARTE & BONOTTO (2000), utilizaram-se fontes radioativas unielementares de energia conhecida, consistindo de ^{137}Cs e ^{60}Co . Na Tabela 4.1 estão apresentadas as energias de emissão e os canais de presença dos fotopicos. Com base nos dados da Tabela 4.1, traçou-se a curva de calibração para o sistema espectrométrico utilizado, representada na Figura 4.1.

Tabela 4.1 - Calibração em energia para o sistema utilizado.

Nuclídeo	Canal	Energia (keV)
^{137}Cs	402	661
^{60}Co	690	1.173
^{60}Co	778	1.322
^{60}Co	1.430	2.405

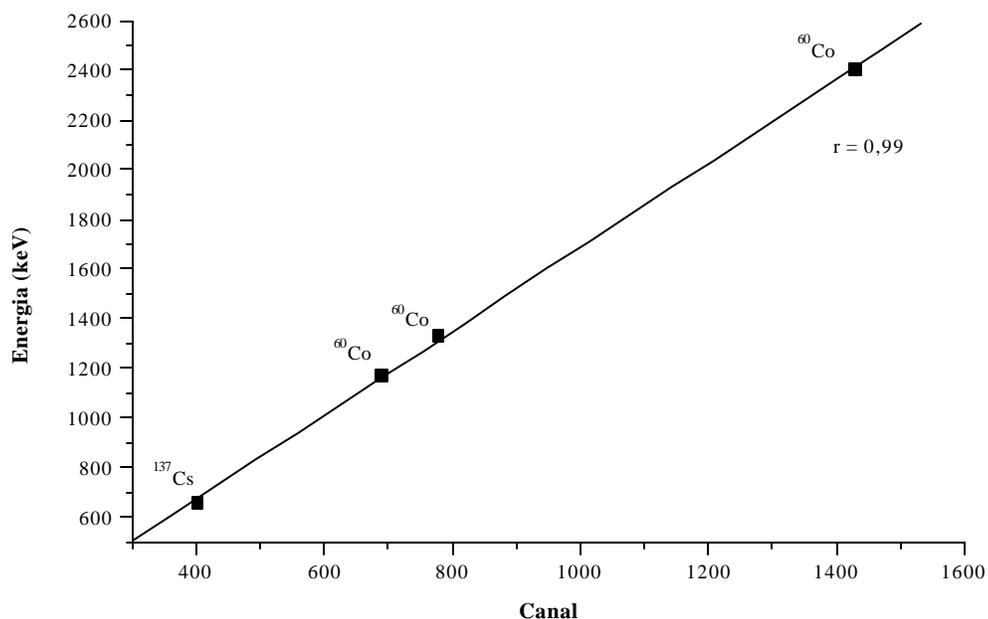


Figura 4.1 – Curva de calibração do espectrômetro gama para mensuração do ²¹⁴Bi.

O sistema espectrométrico utilizado foi calibrado em atividade, constando na Tabela 4.2 as atividades de ²²⁶Ra de cada padrão e a taxa de contagem determinada para o pico do ²¹⁴Bi, tendo sido os dois parâmetros normalizados em relação à massa. A Figura 4.2 mostra a curva de calibração para a atividade de ²²⁶Ra em função da taxa de contagem medida, a qual possibilita determinar a atividade de ²²⁶Ra para qualquer amostra a partir da equação:

$$\text{Log} (AT) = 1,06 \cdot \text{Log}(\text{Tef}) + 4,03 \quad (05)$$

onde AT corresponde à atividade de ²²⁶Ra por massa de amostra e Tef corresponde à taxa de contagem no pico do ²¹⁴Bi (energia de 1,76 MeV) pela massa de amostra, denominada de taxa efetiva.

Tabela 4.2 - Atividade de ^{226}Ra e taxa de contagem no pico do ^{214}Bi de cada padrão utilizado.

Padrão	Atividade de ^{226}Ra (pCi/g)	Taxa de contagem do ^{214}Bi ($\times 10^4$ cps/g)
NBL-110-A	0,13	0,26
NBL-109-A	1,34	2,00
NBL-105-A	3,35	4,20
NBL-104-A	33,48	44,67
NBL-103-A	167,38	228,07
NBL-102-A	334,76	436,01
NBL-101-A	3.347,57	2.922,42

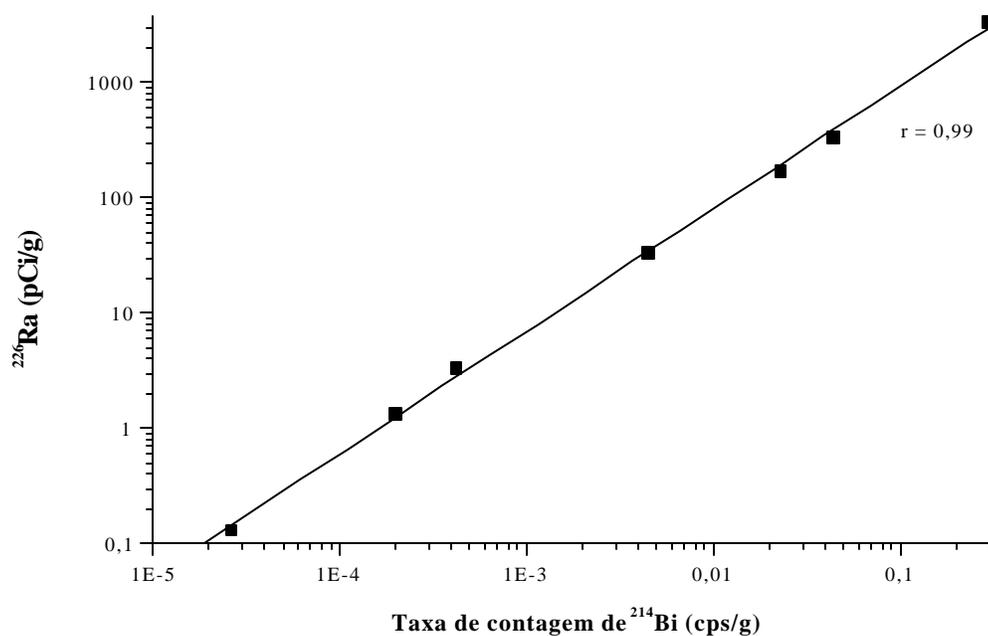


Figura 4.2 – Curva de calibração para determinar a atividade de ^{226}Ra a partir da taxa de contagem no pico do ^{214}Bi .

4.3.2.1. Avaliação da atividade

Para a obtenção da atividade de ^{226}Ra , foi determinada a taxa de contagem no pico do ^{214}Bi por intermédio das seguintes equações baseadas na Figura 4.3 do manual de uso do software da EG&G Ortec Maestro - 32 versão A65-BI:

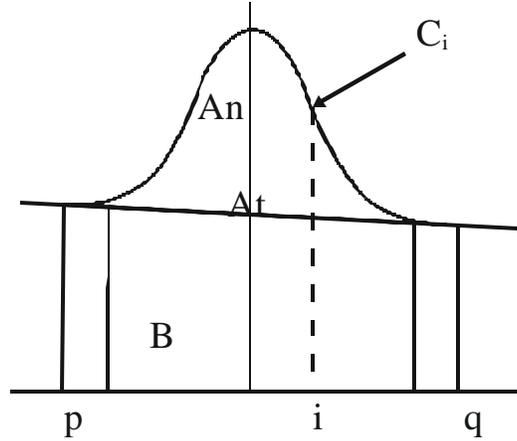


Figura 4.3 – Ilustração para cálculo da radiação de fundo e área do pico de ^{214}Bi .

$$B = \left(\sum_{i=p}^{p+2} C_i + \sum_{i=q-2}^q C_i \right) \cdot \frac{q-p+1}{6} \quad (06)$$

onde: B é a área da radiação de fundo; p é o limite inferior; q é o limite superior; C_i é a contagem no canal i; 6 é o número de canais adicionados (3 de cada lado).

$$A_t = \sum_{i=p+3}^{q-3} C_i \quad (07)$$

onde: A_t é a área total.

$$A_n = A_t - \frac{B \cdot (q-p-5)}{(q-p+1)} \quad (08)$$

onde: A_n é a área do pico.

A taxa de contagem T_c é definida por:

$$T_c = \frac{A_n}{t} \quad (09)$$

onde t é o tempo de realização da medida.

A taxa de contagem (T_c) após ser dividida pela massa da amostra é introduzida na equação 05 para a geração da atividade de interesse. A Figura 4.4 ilustra um espectro típico de amostra de sedimentos de fundo do Barreiro.

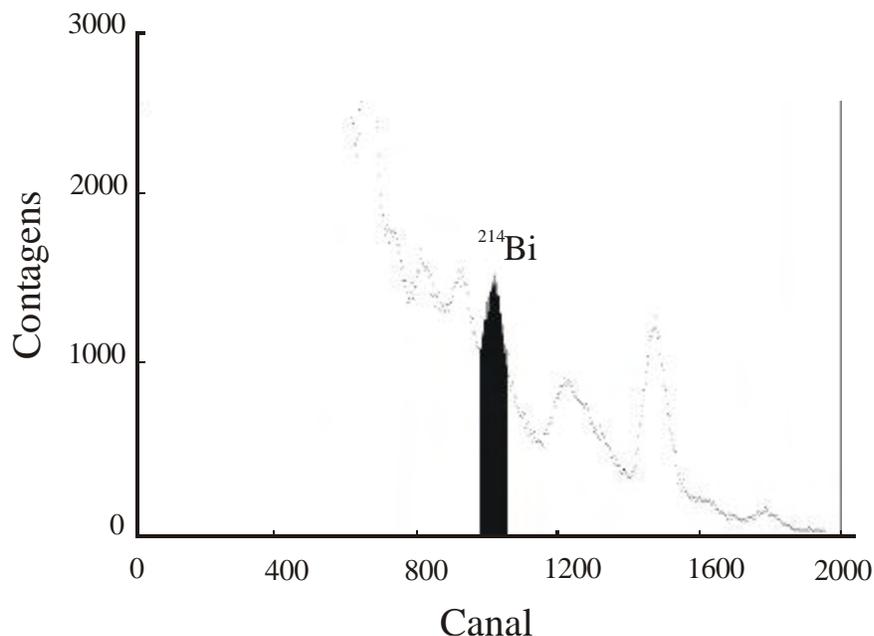


Figura 4.4 – Espectro gama obtido para a amostra 10sed para a determinação da atividade de ^{226}Ra (tempo de leitura = 80.879 s).

4.3.3. Determinação de ^{228}Ra nas águas e sedimentos de fundo

A técnica empregada para a determinação de ^{228}Ra foi adaptada de BONOTTO (1986) e MANCINI (1997), consistindo nas seguintes etapas:

- preparação prévia das amostras em laboratório;
- coprecipitação do Ra;
- espectrometria gama;
- avaliação da atividade do ^{228}Ra .

A alíquota de amostra de água reservada para análise de ^{228}Ra foi dividida em outras duas de igual volume, adicionando-se a uma delas o traçador radioativo ^{133}Ba (MANCINI, 1997), com atividade correspondente a 1324 pCi para a primeira etapa de coleta e 662 pCi para a segunda etapa. Nos sedimentos de fundo, pesou-se 1 g de

material e efetuou-se sua inserção em sistema de digestão tipo Parr descrito por BONOTTO (1996), juntando-se, então, à amostra volumes correspondentes a 5 mL de HF, 5 mL de HNO₃ e 5 mL de HCl. Uma vez concluída a solubilização, diluiu-se a amostra em água destilada até completar um volume de 200 mL e dividiu-se-a em duas alíquotas iguais, a uma delas adicionando-se o traçador radioativo ¹³³Ba (atividade correspondente a 662 pCi). A partir daí, estando as amostras em meio líquido e em duplicata (uma com traçador radioativo e outra sem), utilizaram-se os mesmos procedimentos analíticos.

Procedeu-se inicialmente a coprecipitação de Ra por intermédio da mesma metodologia utilizada para a coprecipitação de U, conforme descrito por BONOTTO (1986). Após a precipitação, descartou-se o sobrenadante, recuperou-se o precipitado por centrifugação, eliminou-se o ferro em excesso com solvente orgânico (éter isopropílico), reduziu-se a amostra a um volume de 10 mL e efetuou-se a sua transferência para um frasco de vidro próprio para posterior leitura no espectrômetro.

O sistema utilizado para detecção da radiação gama consistiu de detector de cintilação de NaI(Tl) do tipo poço, pré-amplificador, amplificador, e computador possuindo uma placa ACE 2k da EG&G Ortec, controlada por um software simulador de analisador multicanal (1024 canais). Procedeu-se a calibração do sistema como descrito por MANCINI (1997), isto é, definiram-se as emissões gama de interesse para a quantificação do ²²⁸Ac (Tabela 4.3), utilizaram-se de fontes radioativas unielementares (⁶⁰Co, ¹³⁷Cs e ¹³³Ba), estando os dados obtidos representados na Tabela 4.4 e Figura 4.5.

Tabela 4.3 - Emissões gama de interesse para a quantificação do ²²⁸Ac, segundo MICHEL et al (1982).

Nuclídeo	Energia (keV)	Probabilidade de emissão (%)
²²⁸ Ac	338	12,3
²²⁸ Ac	911	29,0
²²⁸ Ac	964-969	23,0

Tabela 4.4 - Emissões gama das fontes radioativas utilizadas para a calibração do sistema espectrométrico e canal de presença dos fotopicos (CHUKREEV, 1994; ADAMS & GASPARINI, 1970).

Radionuclídeo	Energia (keV)	Canal
^{133}Ba	389	201
^{137}Cs	661	333
^{60}Co	1.170	578
	1.330	653

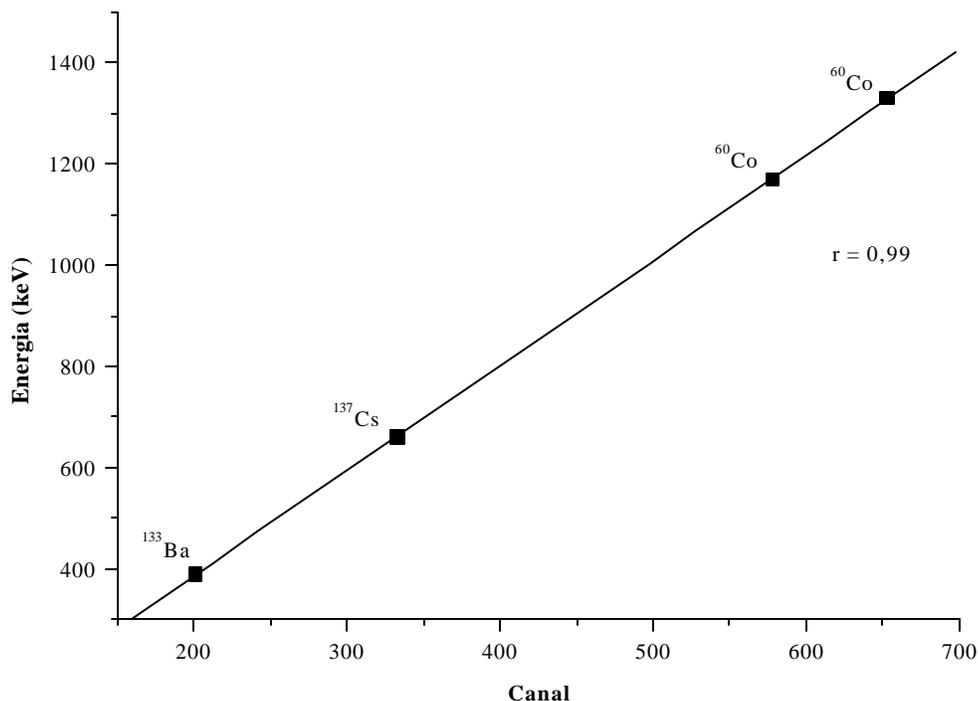


Figura 4.5 – Curva de calibração do espectrômetro gama para a mensuração do ^{228}Ac .

4.3.3.1. Cálculo da atividade

Para o cálculo da atividade de ^{228}Ra foi determinada a taxa de contagem nos fotopicos de ^{228}Ac e ^{133}Ba e obtida a razão de atividade (RA) entre o pico do ^{228}Ac de menor energia (1) e o de maior energia (2) para o espectro sem o traçador

radioativo (^{133}Ba), conforme descrito em MANCINI (1997). Para o espectro contendo ^{133}Ba , a razão foi efetuada entre o pico do ^{133}Ba sobreposto ao pico do ^{228}Ac (3) e o pico de maior energia do ^{228}Ac (4). Estas razões possibilitaram quantificar a atividade medida $T_{c_{\text{Ba}}}$ do traçador adicionado, a partir da seguinte equação:

$$T_{c_{\text{Ba}}} = (RA_{3/4} - RA_{1/2}) \cdot T_{c_4} \quad (10)$$

onde T_{c_4} é a taxa de contagem da amostra no pico de maior energia do ^{228}Ac , para o espectro contendo ^{133}Ba .

Para levar em conta o rendimento químico do processo de extração, a atividade medida $T_{c_{\text{Ba}}}$ foi comparada com a do traçador colocado na amostra (1324 ou 662 pCi), por intermédio da seguinte fórmula:

$$At_{\text{Ra}} = \frac{T_{c_4} \cdot 1324 (\text{ou } 662)}{T_{c_{\text{Ba}}}} \quad (11)$$

onde At_{Ra} corresponde à atividade do ^{228}Ra na amostra, em pCi.

Finalmente, a atividade normalizada (At_n) foi obtida a partir da equação:

$$At_n = \frac{At_{\text{Ra}}}{N} \quad (12)$$

onde N representa o volume ou a massa da amostra.

As Figuras 4.6 a 4.8 ilustram espectros típicos para amostras de águas superficiais, águas subterrâneas e sedimentos de fundo, os quais permitiram determinar a atividade de ^{228}Ra .

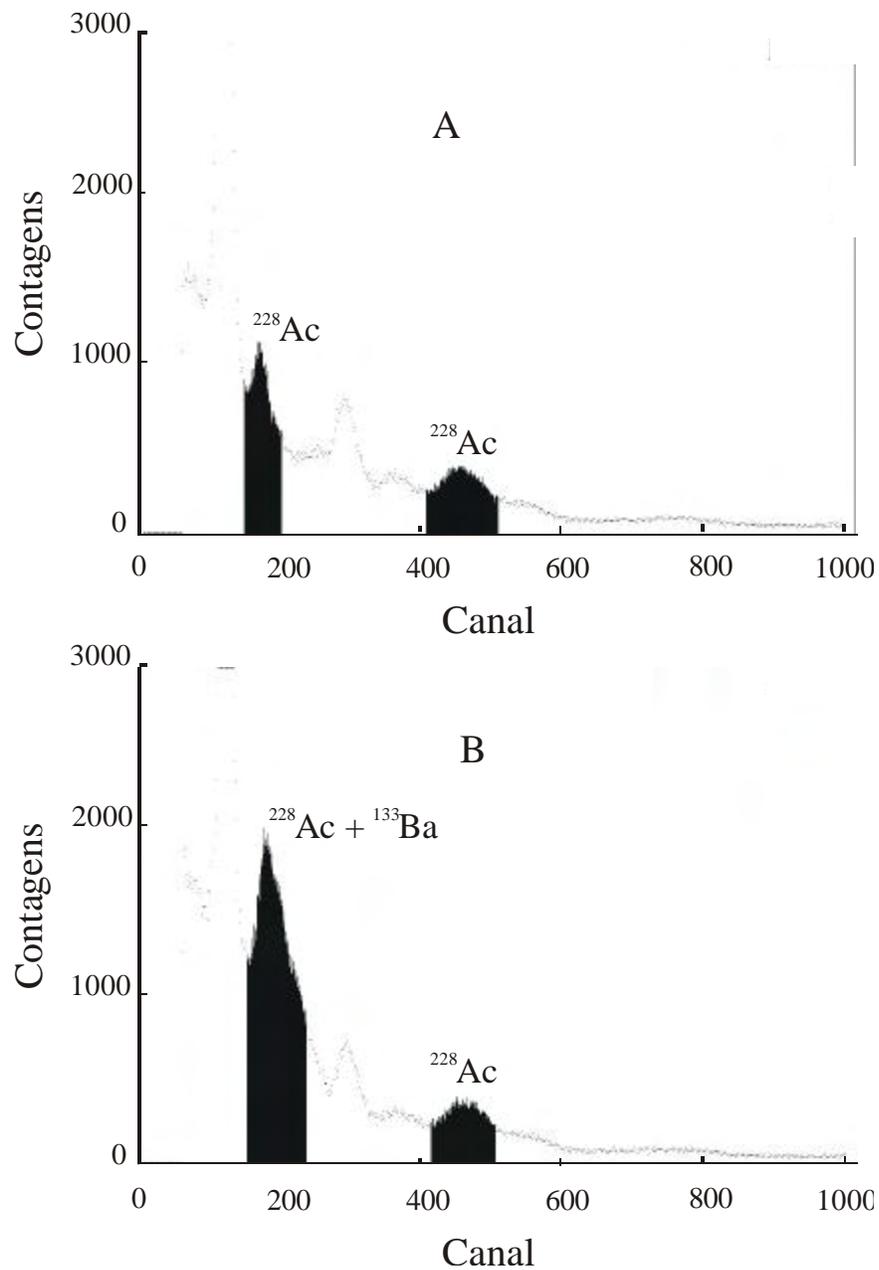


Figura 4.6 – Espectros gama obtidos para a amostra de água superficial 1sp da coleta 1 (A) sem traçador (tempo de leitura = 22.676 s) e (B) com traçador (tempo de leitura = 26.258 s).

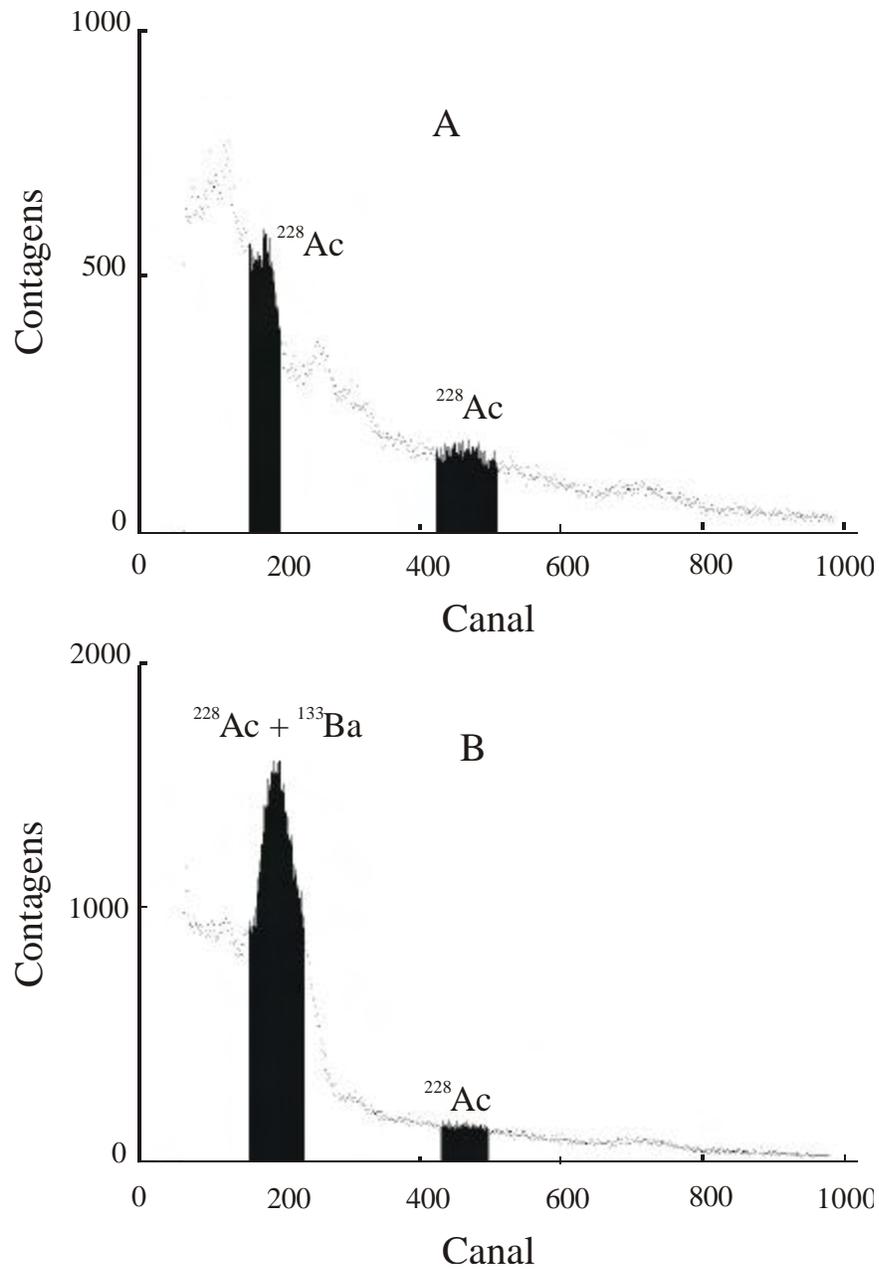


Figura 4.7 – Espectros gama obtidos para a amostra de água subterrânea 13sb da coleta 2 (A) sem traçador (tempo de leitura = 88.941 s) e (B) com traçador (tempo de leitura = 89.005 s).

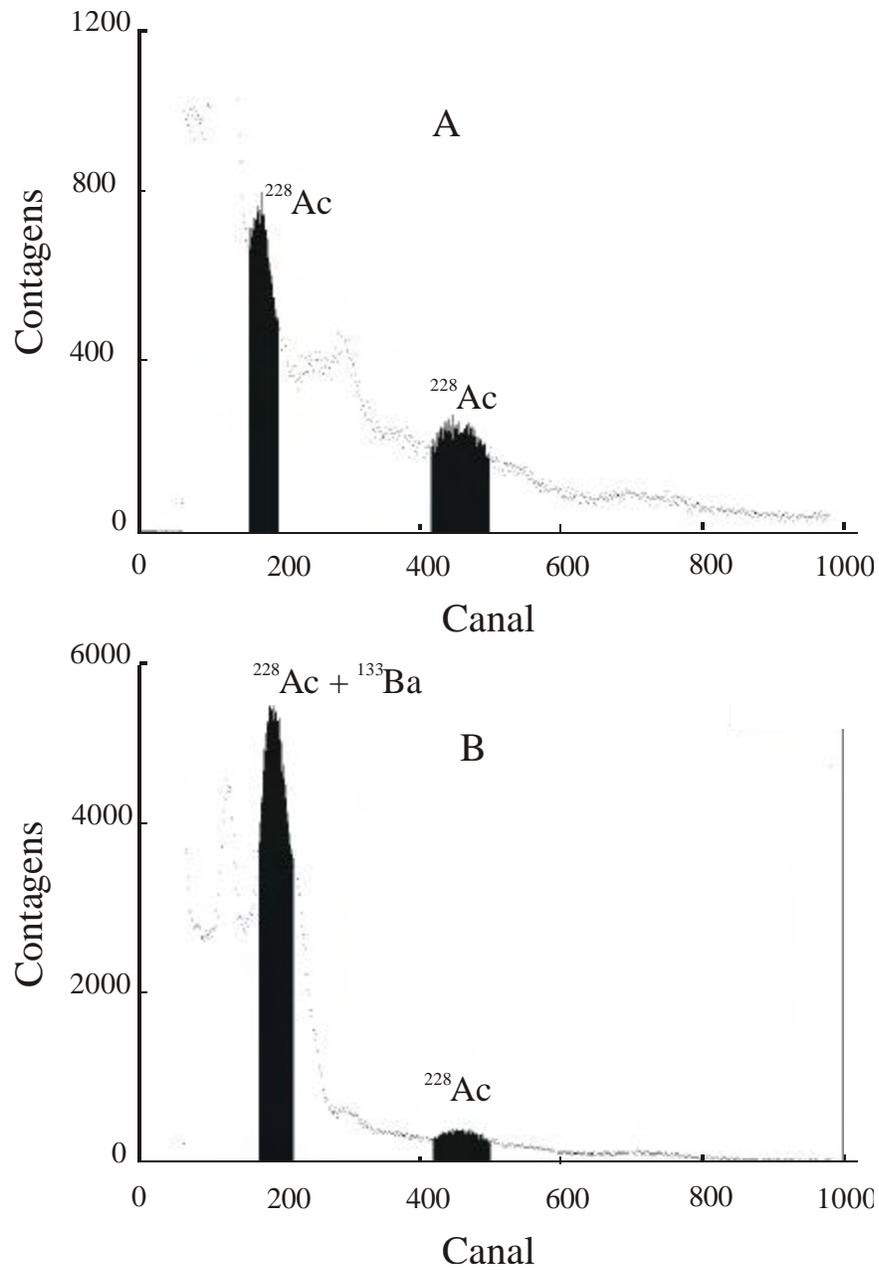


Figura 4.8 – Espectros gama obtidos para a amostra de sedimentos de fundo 9sed (A) sem traçador (tempo de leitura = 55.732 s) e (B) com traçador (tempo de leitura = 86.787 s).

4.3.4. Determinação de ^{228}Ra nos sólidos em suspensão

Para a mensuração da atividade de ^{228}Ra nos sólidos em suspensão utilizaram-se os filtros (membranas empregadas na filtração) sem prévio tratamento, os quais foram introduzidos nos mesmos frascos usados para a análise de água e sedimentos, e levados ao espectrômetro para leitura. O sistema espectrométrico utilizado para as medidas foi o mesmo descrito no item 4.3.3, com a mesma calibração em energia (Tabela 4.4 e Figura 4.5).

Para a obtenção da atividade de ^{228}Ra utilizando-se a emissão gama natural do ^{228}Ac com energia da ordem de 911 a 969 keV (Tabela 4.3), se fez necessária a calibração do espectrômetro e a produção de alguns padrões. Para isto, utilizaram-se 35 g de amostra de sedimentos de fundo proveniente do Morro do Ferro, Poços de Caldas (MG). Determinou-se a atividade deste material utilizando-se o espectrômetro com detector NaI(Tl) tipo plano, efetuando-se a calibração do sistema para leitura da emissão gama natural do ^{208}Tl com energia da ordem de 2,62 MeV (DUARTE & BONOTTO, 2000), similarmente ao descrito no item 4.3.2 para mensuração do ^{214}Bi . Na Tabela 4.5 consta a atividade de ^{228}Ra de cada padrão e a taxa de contagem determinada para o pico do ^{208}Tl , tendo sido os dois parâmetros normalizados em relação à massa. A Figura 4.9 mostra a curva de calibração para a atividade de ^{228}Ra em função da taxa de contagem medida, a qual possibilita determinar a atividade de ^{228}Ra para qualquer amostra a partir da equação:

$$\text{Log}(AT) = 1,07 \cdot \text{Log}(T_{\text{ef}}) + 4,09 \quad (14)$$

onde AT corresponde à atividade de ^{228}Ra por massa de amostra e T_{ef} corresponde à taxa de contagem no pico do ^{208}Tl (energia de 2,62 MeV) pela massa de amostra, denominada de taxa efetiva.

Tabela 4.5 - Atividade de ^{228}Ra e taxa de contagem no pico do ^{208}Tl de cada padrão utilizado.

Padrão	Atividade de ^{228}Ra (pCi/g)	Taxa de contagem do ^{208}Tl ($\times 10^3$ cps/g)
NBL-110-A1	0,28	0,11
NBL-110-A1	0,55	0,21
NBL-110-A	1,10	0,61
NBL-109-A	10,97	5,80
NBL-108-A	54,85	20,37
NBL-107-A	109,70	49,18
NBL-106-A	1.097,03	467,55

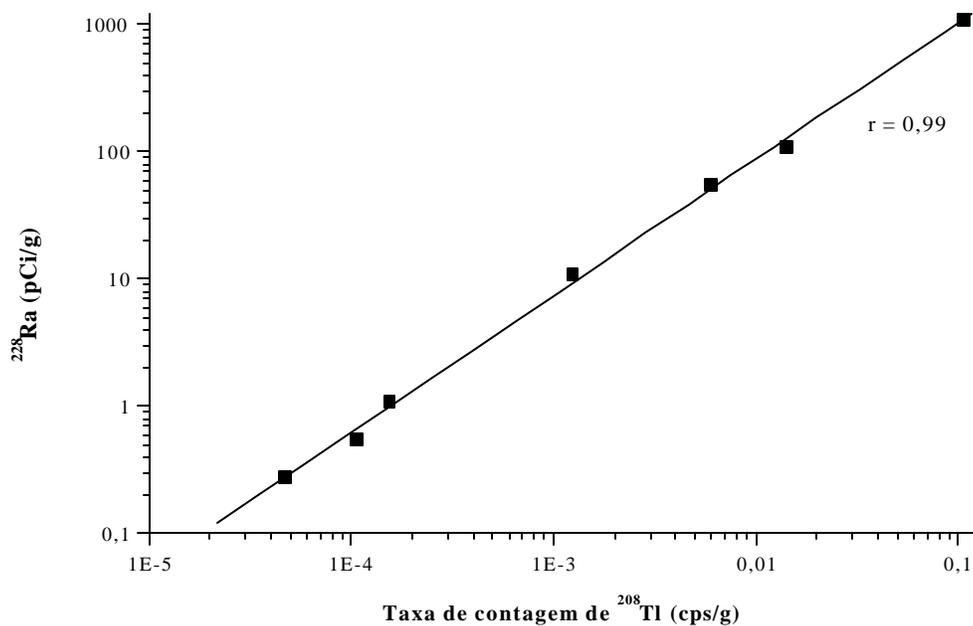


Figura 4.9 – Curva de calibração para determinar a atividade de ^{228}Ra a partir da taxa de contagem no pico do ^{208}Tl .

Com base na curva de calibração representada na Figura 4.9 foi possível determinar para o material do Morro do Ferro (35 g) uma atividade de ^{228}Ra correspondente a 2116,1 pCi, estando ilustrado na Figura 4.10 o espectro obtido que permitiu essa quantificação. A partir deste material foram preparados quatro padrões denominados LI-Ra-1, LI-Ra-2, LI-Ra-3 e LI-Ra-4 (LI – Laboratório de Isótopos e Hidroquímica, padrões de rádio), sendo cada um introduzido no mesmo frasco de vidro utilizado para os filtros. Cada frasco foi complementado com sílica pura até perfazer 13 g, que foi a massa utilizada para a normalização, por constituir a quantidade máxima admitida pelo frasco. A única exceção disto foi para LI-Ra-1, que correspondeu a 13 g do material do Morro do Ferro.

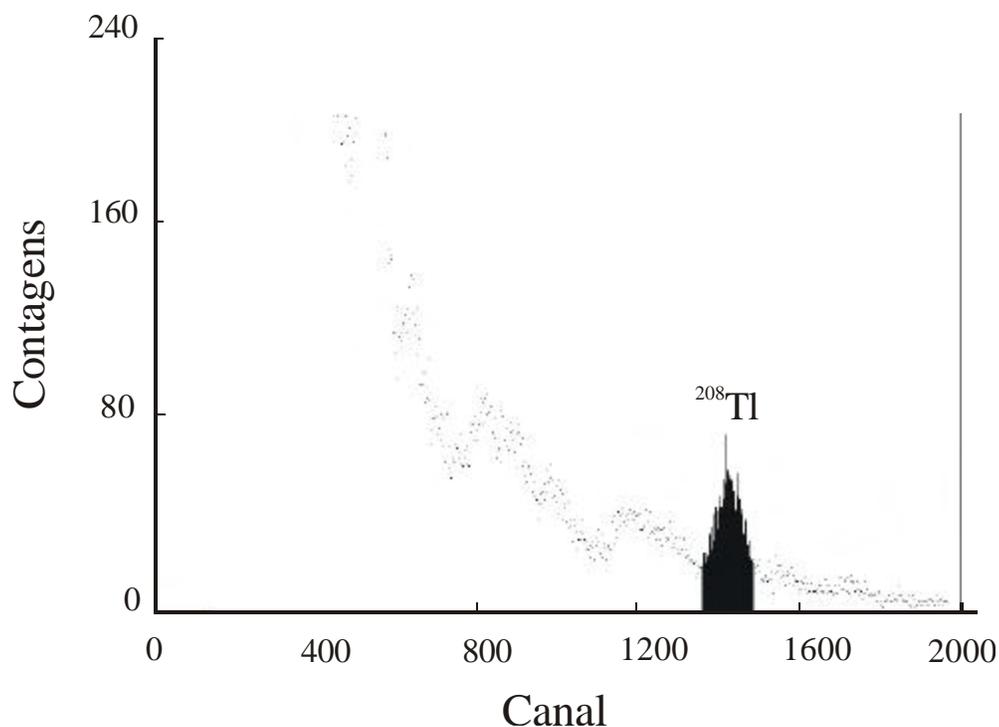


Figura 4.10 – Espectro gama da amostra de sedimentos de fundo do Morro do Ferro, Poços de Caldas (MG). Tempo de leitura = 17.486 s. Atividade de ^{228}Ra = 2.116,1 pCi.

Na Tabela 4.6 constam os dados referentes a cada padrão preparado, a respectiva atividade de ^{228}Ra e a taxa de contagem determinada para o pico do ^{228}Ac , com energia de 911 a 969 keV, tendo sido esses dois parâmetros normalizados em

relação à massa. A Figura 4.11 mostra a curva de calibração para determinar a atividade de ^{228}Ra em função da taxa de contagem medida, a qual possibilita determinar a atividade de ^{228}Ra para qualquer amostra a partir da equação:

$$\text{Log (AT)} = 1,05 \cdot \text{Log(Tef)} + 3,34 \quad (15)$$

onde AT corresponde à atividade de ^{228}Ra por massa de amostra e Tef corresponde à taxa de contagem no pico do ^{228}Ac (energia de 911 a 969 keV) pela massa de amostra, denominada de taxa efetiva.

Tabela 4.6 – Características dos padrões produzidos no LABIDRO - Laboratório de Isótopos e Hidroquímica.

Padrão	Massa de material do Morro do Ferro (g)	Massa de sílica pura (g)	Massa do padrão (g)	Atividade de ^{228}Ra (pCi/g)	Taxa de contagem do ^{228}Ac ($\times 10^{-2}$ cps/g)
LI-Ra-4	1,0	12,0	13	4,95	0,31
LI-Ra-3	3,5	9,5	13	13,95	0,73
LI-Ra-2	6,9	6,1	13	32,09	1,92
LI-Ra-1	13,0	0	13	60,46	3,31

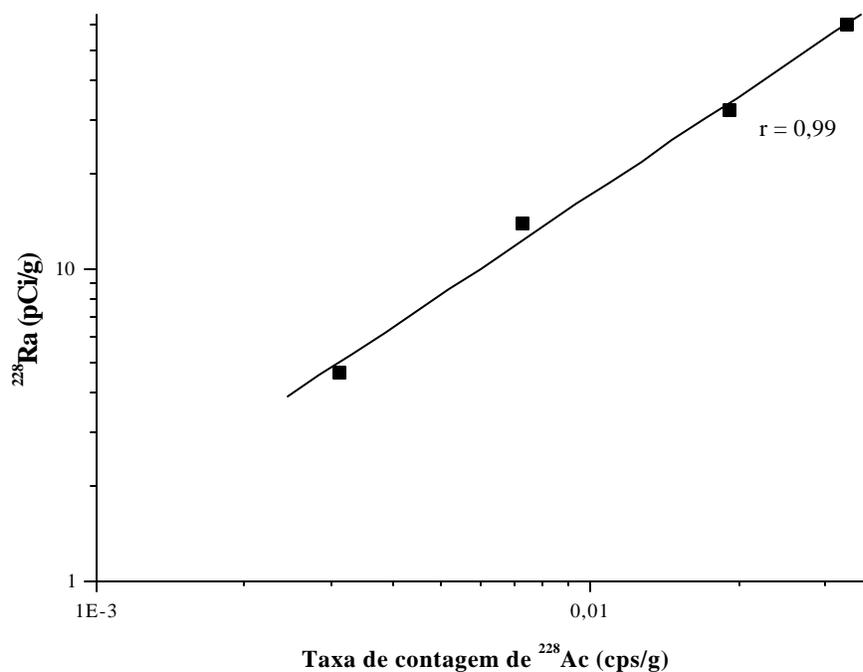


Figura 4.11 - Curva de calibração para determinar a atividade de ^{228}Ra a partir da taxa de contagem no pico do ^{228}Ac .

As Figuras 4.12 e 4.13 ilustram espectros típicos obtidos para sólidos em suspensão provenientes das águas superficiais e subterrâneas da área estudada.

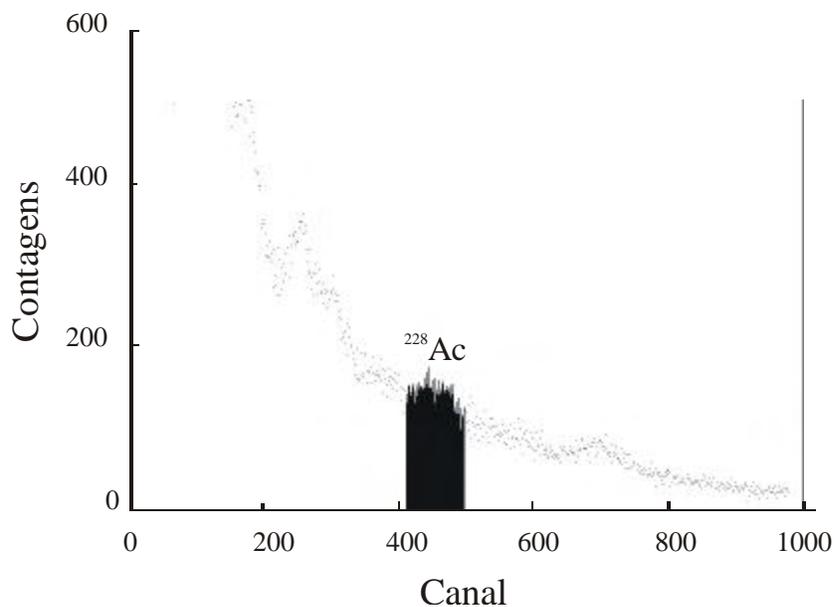


Figura 4.12 – Espectro gama obtido para os sólidos em suspensão da amostra de água superficial 11sp da coleta 1 (tempo de leitura = 70.891 s).

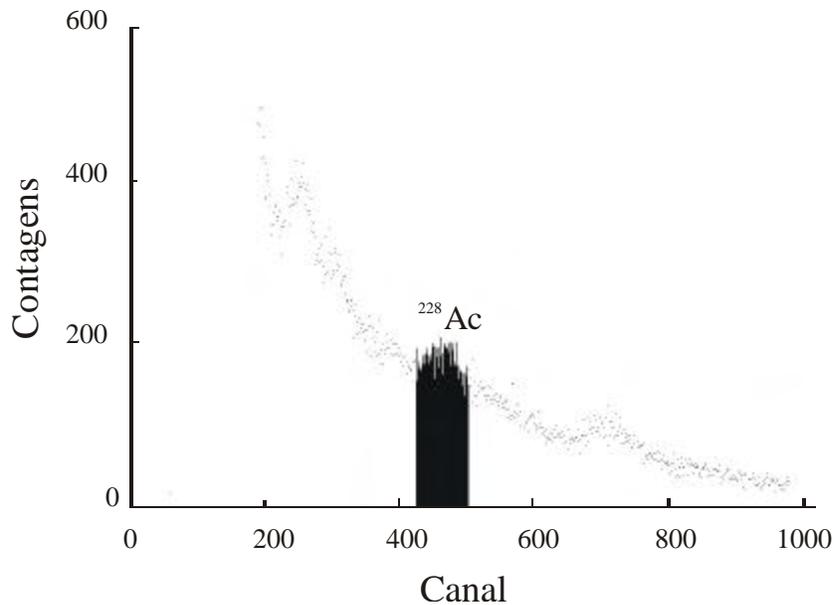


Figura 4.13 – Espectro gama obtido para os sólidos em suspensão da amostra de água subterrânea 17sb da coleta 1 (tempo de leitura = 92.361 s).

4.3.5. Determinação de U nas águas

Para a determinação da concentração de U e da razão de atividade (RA) $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ foi utilizada a espectrometria alfa com detector semiconductor de barreira de superfície de Si(Au). A metodologia empregada foi descrita, com detalhes por BONOTTO (1996), consistindo das seguintes etapas:

- 1) Filtragem da amostra em membrana 0,45 μm ;
- 2) Eliminação do gás carbônico contido na amostra;
- 3) Adição de traçador radioativo (^{232}U) e de FeCl_3 ;
- 4) Coprecipitação do U com o ferro, adicionando-se NH_4OH ;
- 5) Recuperação do precipitado por centrifugação;
- 6) Eliminação do ferro com solvente orgânico;
- 7) Passagem em resina de troca iônica e recuperação do U;
- 8) Eletrodeposição do U;
- 9) Espectrometria alfa.

Para a obtenção da concentração de U utilizou-se a expressão (BONOTTO, 1982):

$$C_{238} = \frac{1}{0,74 \cdot V} \cdot A_{232} \cdot \frac{N_{238}}{N_{232}} \quad (16)$$

onde C_{238} é a concentração de U; N_{238} e N_{232} correspondem ao número de contagens nos picos do ^{238}U e ^{232}U , respectivamente; V é o volume da amostra e A_{232} é a atividade do traçador utilizado (100 μL de ^{232}U - $A_{232} = 3,39$ dpm).

A razão de atividade (RA) $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ foi determinada pela expressão:

$$RA = \frac{N_{234}}{N_{238}} \quad (17)$$

onde N_{234} e N_{238} representam o número de contagens dos picos de ^{234}U e ^{238}U , respectivamente.

As Figuras 4.14 e 4.15 ilustram os espectros típicos obtidos para amostras de águas superficiais e subterrâneas da área de estudo.

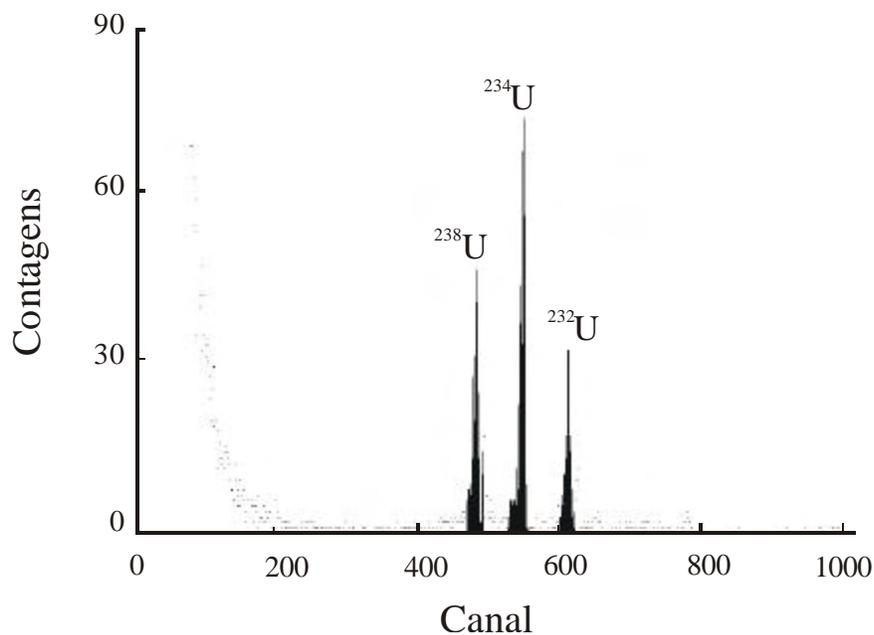


Figura 4.14 – Espectro alfa obtido para a amostra de água superficial 1sp da coleta 1 (tempo de leitura = 171.835 s).

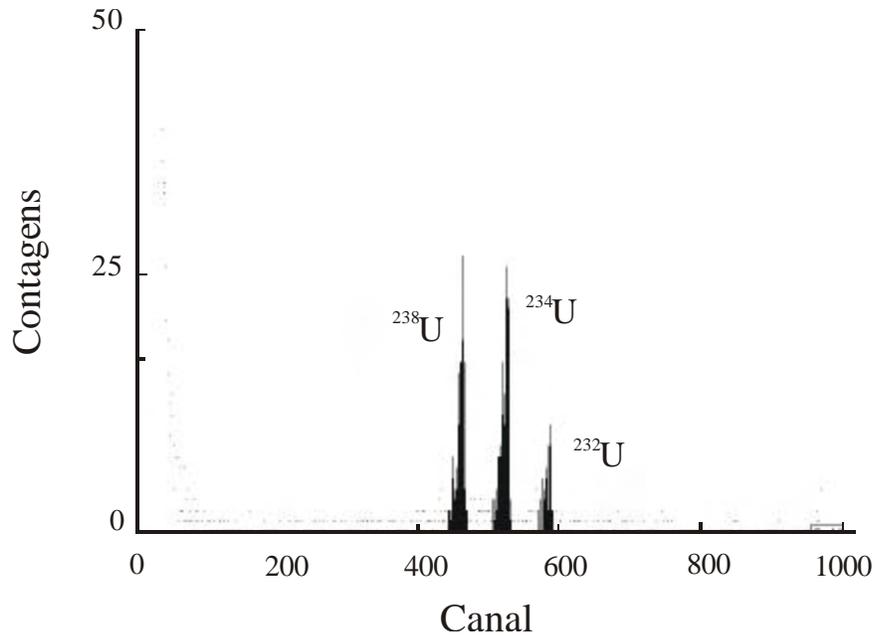


Figura 4.15 – Espectro alfa obtido para a amostra de água subterrânea 14sb da coleta 1 (tempo de leitura = 171.042 s).

4.3.6. Incertezas analíticas

4.3.6.1. Erros na espectrometria gama

O software da EG&G Ortec Maestro - 32 versão A65-BI, fornece, conjuntamente com a área do pico (A_n) analisado, a incerteza associada a esta área, expressa por:

$$s_{A_n} = \sqrt{A_t + B \cdot \left(\frac{q - p - 5}{6} \right) \cdot \left(\frac{q - p - 5}{q - p - 1} \right)} \quad (18)$$

onde: σ_{N_a} é a incerteza na área do pico analisado, A_t é a área total, B é a área da radiação de fundo, p é o limite inferior e q é o limite superior.

A partir desta incerteza foram determinados os erros para as atividades obtidas, levando-se em conta que neste trabalho foram usados dois métodos de quantificação da atividade: 1) a espectrometria gama direta, com base em curva padrão; 2) a espectrometria gama indireta, utilizando um traçador radioativo (^{133}Ba) de rendimento químico.

Para a espectrometria gama direta, determinou-se o erro da taxa de contagem efetiva (T_{ef}) no pico de interesse assumindo a inexistência de incerteza na leitura do tempo e da massa. Considerando a combinação linear das medidas (LYONS, 1991), têm-se:

$$sT_c = \frac{sAn}{t} \quad (19)$$

$$sT_{ef} = \frac{sT_c}{m} \quad (20)$$

onde σT_c é o erro da taxa de contagem, t é o tempo de leitura, σT_{ef} é o erro da taxa efetiva e m a massa da amostra.

Assim, determinou-se o erro da atividade da amostra por intermédio da expressão:

$$sAT = 10^{(A+B \cdot \log(T_{ef}))} \cdot \frac{B}{T_{ef}} \cdot sT_{ef} \quad (21)$$

onde σAT é o erro da atividade, T_{ef} é a taxa efetiva da amostra, A é o coeficiente linear e B é o coeficiente angular da reta utilizada.

Para a espectrometria gama indireta, determinou-se o desvio da taxa de contagem (T_c), nos picos analisados (item 4.3.3.1), assumindo a inexistência de incerteza na leitura do tempo. Considerando a combinação linear das medidas (LYONS, 1991), obtém-se para os quatro picos analisados parâmetros equivalentes ao expresso na equação 19. Assim, o erro para cada razão de atividade é representado por:

$$sRA_{\frac{1}{2}} = \sqrt{\left(\frac{sTc_1}{Tc_1}\right)^2 + \left(\frac{sTc_2}{Tc_2}\right)^2} \cdot RA_{\frac{1}{2}} \quad (22)$$

$$sRA_{\frac{3}{4}} = \sqrt{\left(\frac{sTc_3}{Tc_3}\right)^2 + \left(\frac{sTc_4}{Tc_4}\right)^2} \cdot RA_{\frac{3}{4}} \quad (23)$$

onde $\sigma RA_{1/2}$ e $\sigma RA_{3/4}$ correspondem aos erros das razões dos picos analisados ($RA_{1/2}$ e $RA_{3/4}$).

O erro da taxa de contagem relativa ao ^{133}Ba (σTc_{Ba}) é expresso por:

$$sRA_{1/2} = \sqrt{\left(sRA_{3/4}\right)^2 + \left(sRA_{1/2}\right)^2} \cdot sTc_4 \quad (24)$$

Então, pode-se escrever que:

$$sAt_{Ra} = \sqrt{\left(\frac{sTc_{Ba}}{Tc_{Ba}}\right)^2 + \left(\frac{sTc_4}{Tc_4}\right)^2} \cdot At_{Ra} \quad (25)$$

onde σAt_{Ra} é o desvio da atividade da amostra.

Da mesma forma que a atividade determinada para a amostra foi normalizada em função do volume (para amostras de água) e da massa (para amostras de sólidos em suspensão e sedimentos de fundo) e assumindo a inexistência de erro na leitura do volume e da massa, pode-se escrever:

$$sAtn = \frac{sAt_{Ra}}{N} \quad (26)$$

onde N representa o volume ou a massa da amostra.

4.3.6.2. Avaliação dos erros para espectrometria alfa

Utilizando-se dos erros fornecidos pelo software Maestro-32 para o número de contagens (N) dos picos analisados, assumindo a inexistência de erro na leitura do volume da amostra e na quantidade de traçador adicionado à amostra e utilizando-se das equações descritas por BONOTTO (1982) têm-se:

$$sRA = \sqrt{\left(\frac{sN_{234}}{N_{234}}\right)^2 + \left(\frac{sN_{238}}{N_{238}}\right)^2} \cdot RA \quad (27)$$

$$sC_{238} = \sqrt{\left(\frac{sN_{238}}{N_{238}}\right)^2 + \left(\frac{sN_{232}}{N_{232}}\right)^2} \cdot C_{238} \quad (28)$$

onde σN_{238} , σN_{234} e σN_{232} correspondem aos erros para os picos analisados, respectivamente, para o ^{238}U , ^{234}U e ^{232}U , σRA é o erro da razão de atividade e σC_{238} é o erro da concentração de urânio.

4.3.6.3. Limite crítico de detecção de ^{228}Ra

Em virtude da baixa taxa de contagem verificada no fotopico do ^{228}Ac de alguns espectros gama obtidos para os sólidos em suspensão, foi necessário decidir se o pico desejado realmente foi detectado na observação experimental efetuada, ou seja, se o sinal foi “verdadeiro” ou “falso”.

O limite crítico (L_c) estabelecido por CURRIE (1968) determina estatisticamente se um pico é ou não verdadeiro. Para a sua determinação, assume-se que a radiação de fundo se distribui normalmente, sendo L_c expresso por:

$$L_c = 2,33 \cdot \sqrt{N_B} \quad (29)$$

onde N_B é o número de contagens devido a radiação de fundo.

Neste trabalho foram realizadas 26 leituras de radiação de fundo, constando na Tabela 4.7 os valores médios obtidos para a região dos picos de interesse, isto é, ^{133}Ba (356-389 keV) e ^{228}Ac (911-967 keV).

Tabela 4.7 - Taxa de contagem da radiação de fundo.

Região de energia (keV)	Tempo médio de contagem (s)	Média do número de contagens	L_c médio
356-389	136.404	40.928	443
911-967	136.404	26.511	357

Quando as contagens líquidas no pico (A_n) excederam L_c , considerou-se que o radionuclídeo de interesse (^{228}Ac) foi detectado na amostra. Na

situação oposta, estabeleceu-se o limite de detecção L_d (CURRIE, 1968), em número de contagens, a partir da equação:

$$L_d = 2,71 + 4,61 \cdot \sqrt{N_B} \quad (30)$$

Quando foi calculado o limite de detecção L_d para as amostras de água e sedimentos de fundo procedeu-se a sua divisão pelo tempo de leitura da amostra e fez-se a substituição como T_{c4} na equação (11). Para os sólidos em suspensão, dividiu-se L_d pelo tempo de leitura e massa da amostra e substituiu-se como T_{ef} na equação (15) para o cálculo da atividade. Portanto, dessa maneira é que foi determinada a mínima atividade possível de detecção para a amostra.

5. Relações hidroquímicas

5.1. Resultados das determinações “in situ”

Nas Tabelas 5.1 e 5.2 estão relacionados os parâmetros medidos no campo para as águas superficiais, para as duas etapas de campo, quais sejam: temperatura, condutividade elétrica, pH e Eh. Para a primeira etapa de campo o pH e o Eh foram determinados em laboratório face à indisponibilidade instrumental naquela época, sendo este aspecto levado em conta na discussão dos dados realizada no item 5.3.1.

Tabela 5.1 - Valores de temperatura (Temp.), condutividade elétrica (Cond.), pH e Eh medidos no campo/laboratório para as águas superficiais do Barreiro coletadas entre 16 e 19/02/2000.

Amostra	Temp. (°C)	Cond. (mS/cm)	pH	Eh (mV)
1sp	25,0	0,348	7,33	164
2sp	23,2	1,50	6,60	192
3sp	25,1	0,511	7,15	164
4sp	26,8	0,336	7,32	158
5sp	29,9	—	7,07	180
6sp	28,0	0,084	7,13	120
7sp	27,6	0,143	7,28	161
8sp	23,7	0,294	6,57	201
9sp	27,9	0,632	7,06	175
10sp	28,3	0,081	7,15	119
11sp	20,9	0,048	7,42	149
12sp	22,7	0,091	7,25	142

Tabela 5.2 - Valores de temperatura (Temp.), condutividade elétrica (Cond.), pH e Eh medidos no campo para as águas superficiais do Barreiro coletadas entre 12 e 16/09/2000.

Amostra	Temp. (°C)	Cond. (mS/cm)	pH	Eh (mV)
1sp	25,5	0,386	7,20	144
2sp	24,0	0,437	7,06	101
3sp	24,7	1,610	6,73	119
4sp	26,2	0,344	7,68	143
5sp	26,5	0,349	8,15	99
6sp	24,6	0,121	8,76	64
7sp	25,8	0,156	7,48	120
8sp	24,0	0,363	6,55	232
9sp	22,0	0,132	7,20	200
10sp	24,2	0,109	9,70	71
11sp	22,4	0,059	7,20	186
12sp	24,5	0,151	7,65	169

Nas Tabelas 5.3 e 5.4 estão relacionados os parâmetros medidos no campo e no laboratório para as águas subterrâneas, para as duas etapas de campo, quais sejam: temperatura, condutividade elétrica, pH, Eh e profundidade do nível d'água. Assim como para as águas superficiais, para a primeira etapa de campo, o pH e o Eh foram determinados em laboratório.

Tabela 5.3 - Valores de temperatura (Temp.), condutividade elétrica (Cond.), pH, Eh e profundidade do nível d'água (NA-1) medidos no campo/laboratório para as águas subterrâneas do Barreiro coletadas entre 16 e 19/02/2000.

Amostra	Temp. (°C)	Cond. (mS/cm)	pH	Eh (mV)	NA-1 (m)
1sb	31,2	6,53	9,98	-32	—
2sb	24,9	1,22	9,59	45	2,44
3sb	24	0,12	6,83	193	6,71
4sb	22,6	0,17	7,01	186	21,64
5sb	22,5	0,208	7,56	156	18,59
6sb	23,4	0,174	7,27	176	—
7sb	23,4	0,142	6,32	207	6,71
8sb	23,7	0,198	6,54	210	17,68
9sb	22,9	0,049	7,98	124	36,58
10sb	23,3	0,146	6,25	215	4,87
11sb	22,5	0,072	5,69	194	23,16
12sb	22,1	0,178	6,84	140	43,59
13sb	—	—	—	—	—
14sb	21,9	0,052	5,6	181	28,65
15sb	19,8	0,078	5,51	203	19,81
16sb	—	—	—	—	—
17sb	25,2	0,136	8,05	126	—

— não analisado.

Tabela 5.4. - Valores de temperatura (Temp.), condutividade elétrica (Cond.), pH, Eh e profundidade do nível d'água (NA-2) medidos no campo para as águas subterrâneas do Barreiro coletadas entre 12 e 16/09/2000.

Amostra	Temp. (°C)	Cond. (mS/cm)	pH	Eh (mV)	NA-2 (m)
1sb	31,4	6,550	10,08	-270	—
2sb	23,8	1,560	9,77	-104	2,4
3sb	22,8	0,134	7,00	196	6,7
4sb	22,3	0,178	7,26	162	21,6
5sb	22,3	0,219	7,55	150	18,9
6sb	22,1	0,195	7,21	165	
7sb	22,5	0,137	6,59	210	5,5
8sb	—	—	—	—	—
9sb	22,5	0,051	7,07	101	36,6
10sb	21,4	0,434	6,92	101	6,1
11sb	22,3	0,059	5,88	248	23,5
12sb	—	—	—	—	—
13sb	22,1	0,080	6,58	69	30,2
14sb	22,5	0,032	5,45	257	26,8
15sb	20,6	0,045	6,09	186	21,3
16sb	22,1	0,032	6,23	239	25,3
17sb	27,8	0,106	7,73	177	—

— não analisado.

Ao se analisar a variação da profundidade do nível d'água para as duas etapas de campo (Figura 5.1) verifica-se diferenças mais acentuadas para os pontos 7sb, 10sb, 14sb e 15sb, as quais não são sistemáticas, pois, a profundidade nem sempre foi menor para a coleta realizada no período de maior índice pluviométrico. Os pontos 8sb e 12sb estavam secos durante a segunda etapa de campo, ocasião em que foi possível medir a profundidade desses poços, sendo de 20,5 m para o ponto 8sb e de 44,2 m para o ponto 12sb.

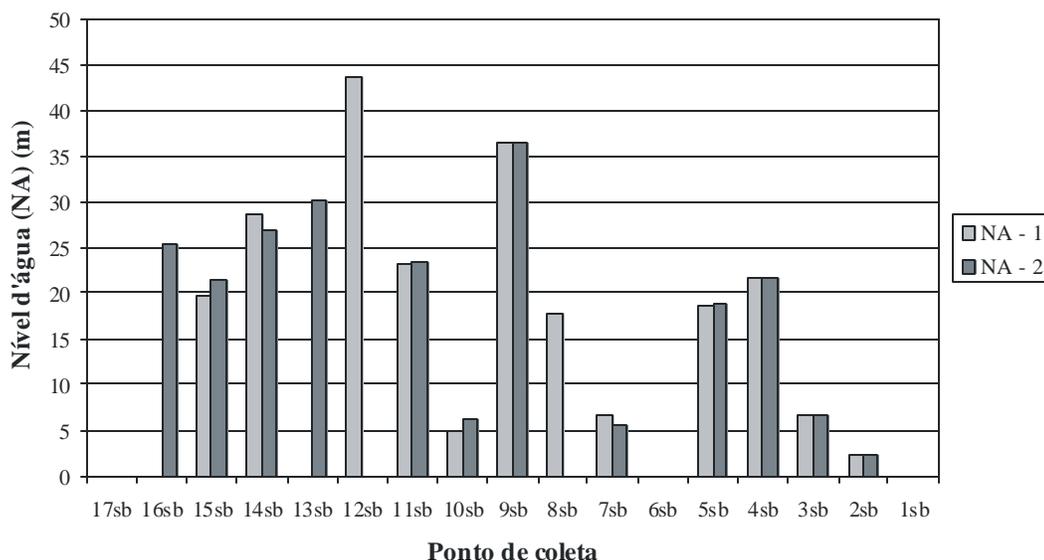


Figura 5.1 – Representação da profundidade do nível d'água durante as duas etapas de campo para os poços analisados no Barreiro, Araxá (MG).

Na Figura 5.2 está representada a cota do nível piezométrico para cada poço, bem como da fonte Dona Beija (ponto 6sb) e do ponto coletado na mina de fosfato (ponto 17sb). Conforme se verifica, a maioria dos poços analisados tem seu nível piezométrico entre 950 e 970 m, os quais estão localizados no Parque das Águas e no Parque das Ruínas do Hotel Rádio. Apesar de não se dispor do valor da profundidade para todos os poços desta área, acredita-se situar entre 15 e 50 m.

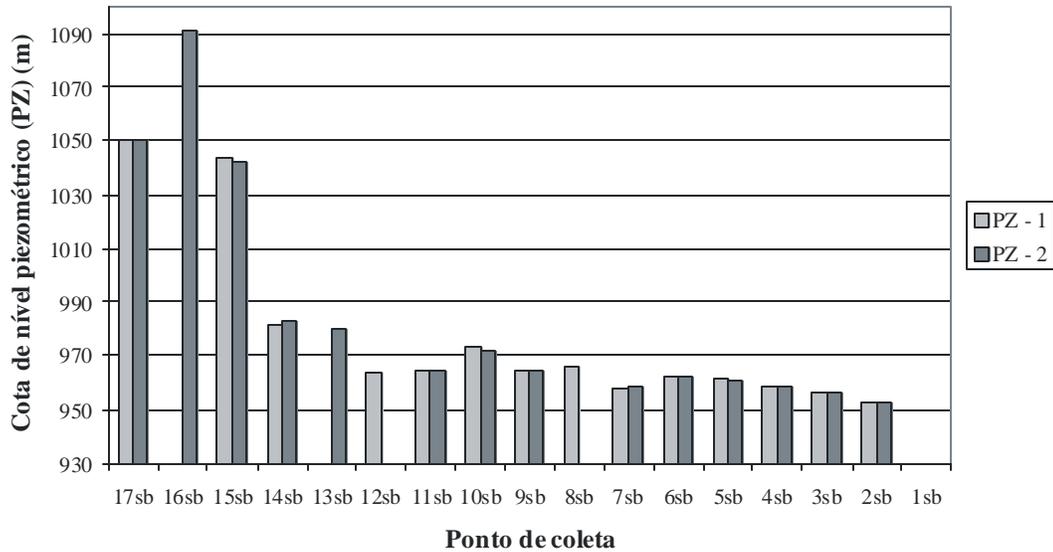


Figura 5.2 – Representação da cota do nível piezométrico durante as duas etapas de coleta de amostras de águas subterrâneas do Barreiro, Araxá (MG).

A não sistemática variação do nível piezométrico durante as duas etapas de campo pode ser também atribuída, dentre outros fatores, ao fornecimento de água, através de infiltração, pelas barragens “E”, “F”, “BCM” e água acumulada pelo dique da mina de fosfato. Dessa forma, não se observa na área estudada influência perceptível no nível d’água dos períodos chuvoso e seco, caracterizados, respectivamente, pelas medidas conduzidas na primeira e segunda etapa de campo.

5.2. Resultados das análises químicas em laboratório

Nas Tabelas 5.5 a 5.8 estão relacionados os valores obtidos nas análises químicas dos principais cátions e ânions dissolvidos, a qual foi realizada para a classificação das águas superficiais e subterrâneas coletadas nas duas campanhas de amostragem.

Tabela 5.5 - Análises químicas (em mg/L) das águas superficiais do Barreiro coletadas entre 16 e 19/02/2000.

Amostra	K ⁺	Na ⁺	Ba ²⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	F ⁻	SO ₄ ²⁻	PO ₄ ³⁻	NO ₃ ⁻	Alca.*	Sílica	Tan/Lig**
1sp	10,5	7,50	3	0,03	0,39	31,9	0,20	7	0,30	< 0,1	60	16,2	< 0,05
2sp	30,0	31,62	7	0,03	0,03	> 200	0,14	41	0,08	0,4	24	14,8	0,4
3sp	38,0	15,40	6	< 0,02	0,05	> 200	0,15	19	0,26	0,3	46	13,8	< 0,05
4sp	--	0,65	6	0,06	0,25	36,4	0,22	2	0,30	0,3	76	17,4	< 0,05
5sp	4,8	0,49	5	0,05	< 0,01	44,4	0,20	7	0,20	< 0,1	68	16	< 0,05
6sp	1,9	6,04	2	0,02	0,59	0,1	0,24	8	0,40	0,2	36	10,5	< 0,05
7sp	2,8	0,49	5	0	0,48	3,8	0,18	2	0,36	0,1	68	12,8	< 0,050
8sp	9,0	1,54	6	0,06	0,25	85,7	0,16	7	0,66	0,3	40	12,4	< 0,05
9sp	1,9	0,45	6	< 0,02	0,68	2,3	0,20	12	0,47	1,5	44	13,5	< 0,05
10sp	1,8	0,27	3	< 0,02	0,65	0,1	0,18	6	0,25	< 0,1	52	10,3	< 0,05
11sp	30,0	0,24	5	< 0,02	0,03	0,1	0,09	41	0,08	0,4	20	7,0	0,1
12sp	2,2	0,60	3	0,03	0,37	0,1	0,13	5	0,03	0,3	34	11,9	0,2

* alcalinidade como bicarbonato; ** Tanino/Lignina.

Tabela 5.6 - Análises químicas (em mg/L) das águas superficiais do Barreiro coletadas entre 12 e 16/09/2000.

Amostra	K ⁺	Na ⁺	Ba ²⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	F ⁻	SO ₄ ²⁻	PO ₄ ³⁻	NO ₃ ⁻	Alca.*	Sílica	Tan/Lig**
1 sp	3,10	1,9	2	0,14	< 0,01	59,2	0,4	16	> 2,75	0,2	74	14,5	< 0,05
2 sp	5,40	7,5	3	0,02	< 0,01	99,7	0,2	22	> 2,75	0,1	28	12,9	< 0,05
3 sp	3,62	86,6	1	< 0,02	< 0,01	456,3	0,1	38	> 2,75	< 0,1	14	12,9	14
4 sp	4,28	1,1	2	0,02	< 0,01	47,7	0,3	1	0,33	0,1	56	12,4	< 0,05
5 sp	4,37	1,8	3	< 0,02	0,02	54,3	0,2	1	0,45	0,2	60	14,0	< 0,05
6 sp	1,80	0,3	2	< 0,02	< 0,01	1,5	0,3	3	0,52	0,5	50	6,0	< 0,05
7 sp	1,76	10,7	3	< 0,02	< 0,01	13,5	0,2	9	0,60	< 0,1	40	7,5	< 0,05
8 sp	2,87	2,2	9	< 0,02	< 0,01	83,8	0,2	4	> 2,75	0,3	30	10,8	< 0,05
9 sp	15,30	0,2	1	< 0,02	< 0,01	12,9	0,2	4	0,53	0,1	30	6,1	< 0,05
10 sp	1,52	0,3	1	0,02	< 0,01	1,3	0,3	2	0,52	1,0	44	8,4	< 0,05
11 sp	4,10	0,3	< 1	< 0,02	0,06	3,8	0,1	1	0,21	0,1	16	6,0	< 0,05
12 sp	4,21	0,9	1	< 0,02	< 0,01	2,6	0,3	3	0,36	0,1	46	12,5	< 0,05

* alcalinidade como bicarbonato; ** Tanino/Lignina.

Tabela 5.7 - Análises químicas (em mg/L) das águas subterrâneas do Barreiro coletadas entre 16 e 19/02/2000.

Amostra	K ⁺	Na ⁺	Ba ²⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	F ⁻	SO ₄ ²⁻	PO ₄ ³⁻	NO ₃ ⁻	Alca.*	Sílica	Tan/Lig**
1sb	1,29	205,35	1	0,39	0,16	1,12	16,77	200	1,64	0,1	184 [#]	9,9	< 0,05
2sb	39,20	6,04	5	0,40	0,62	20,17	1,73	47	0,58	0,4	92 [#]	19,1	< 0,05
3sb	--	0,22	5	0,04	0,45	0,25	0,17	0	0,76	0,3	78	16,2	< 0,05
4sb	--	0,49	5	0,11	0,36	10,45	0,30	3	0,42	0,6	60	12,1	< 0,05
5sb	4,43	0,56	4	0,05	0,35	13,59	0,18	2	0,35	0,6	70	19,1	< 0,05
6sb	4,59	0,45	6	0,06	0,4	2,62	0,26	1	0,78	0,5	64	20,6	< 0,05
7sb	--	0,49	4	< 0,02	0,47	0,20	0,26	2	0,90	0,4	64	16,5	< 0,05
8sb	15,00	0,93	5	0,03	0,37	0,51	0,26	0	0,41	0,2	126	15,6	0,6
9sb	10,80	0,81	4	< 0,02	0,95	0,25	0,15	2	1,27	0,3	38	7,6	< 0,05
10sb	4,79	0,45	6	0,02	0,42	9,16	0,50	5	1,69	0,5	44	11,1	< 0,05
11sb	1,40	1,00	5	< 0,02	0,78	0,98	0,42	3	> 2,75	1,8	20	21,2	< 0,05
12sb	1,67	0,75	5	0,07	0,41	1,00	0,30	3	0,63	0,7	58	28,9	< 0,05
13sb	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
14sb	1,12	0,49	2	< 0,02	0,78	0,18	0,34	1	> 2,75	0,1	20	14,7	< 0,05
15sb	2,09	0,27	5	< 0,02	0,33	0,08	0,11	1	0,03	0,3	32	14,4	0,7
16sb	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
17sb	3,66	0,19	9	0,03	0,54	0,08	0,22	5	0,47	0,3	60	21,3	< 0,05

*alcalinidade como bicarbonato; [#] alcalinidade como hidróxido; ** Tanino/Lignina; --não analisado.

Tabela 5.8 - Análises químicas (em mg/L) das águas subterrâneas do Barreiro coletadas entre 12 e 16/09/2000.

Amostra	K ⁺	Na ⁺	Ba ²⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	F ⁻	SO ₄ ²⁻	PO ₄ ³⁻	NO ₃ ⁻	Alca.*	Sílica	Tan/Lig>**
1sb	3,06	124,10	< 1	0,32	0,02	9,5	11,2	220	1,64	< 0,1	804 [#]	8,1	< 0,05
2sb	3,93	45,30	< 1	0,11	0,14	20,9	2,7	69	0,73	0,3	140 [#]	5,4	< 0,05
3sb	1,76	0,30	2	< 0,02	< 0,01	1,5	0,2	3	0,86	0,2	50	9,5	< 0,05
4sb	3,13	0,80	1	< 0,02	< 0,01	19,1	1,3	4	0,5	0,4	64	12,8	< 0,05
5sb	2,78	0,50	2	< 0,02	< 0,01	21,8	0,2	4	0,45	0,4	76	9,9	< 0,05
6sb	4,88	0,30	1	0,02	< 0,01	8,8	0,2	3	0,64	0,2	84	20,5	< 0,05
7sb	2,90	1,20	1	0,04	< 0,01	6,2	0,4	8	1,18	0,2	68	10	< 0,05
8sb	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
9sb	4,65	0,70	< 1	< 0,02	< 0,01	3,2	0,2	7	> 2,75	0,5	28	4,3	< 0,05
10sb	4,47	2,10	3	< 0,02	0,04	8,0	0,4	5	> 2,75	1,0	70	24,2	< 0,05
11sb	0,58	1,50	2	< 0,02	< 0,01	5,0	0,3	2	2,75	0,9	10	11,2	< 0,05
12sb	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
13sb	1,12	0,20	1	< 0,02	0,52	3,0	0,1	4	0,61	0,6	34	18,4	< 0,05
14sb	0,30	8,10	1	< 0,02	0,92	3,7	0,2	1	2,74	0,1	10	11,2	< 0,05
15sb	0,68	0,60	1	< 0,02	0,58	1,5	0,5	2	0,81	0,2	16	12,3	< 0,05
16sb	5,56	0,60	2	< 0,02	< 0,01	7,0	0,4	11	0,26	1,2	22	7,8	< 0,05
17sb	0,85	0,20	< 1	< 0,02	< 0,01	1,2	0,3	3	1,57	< 0,1	40	6,6	< 0,05

* alcalinidade como bicarbonato; [#] alcalinidade como hidróxido; ** Tanino/Lignina; --não analisado.

5.3. Medidas de pH e Eh "in situ" e no laboratório para as águas superficiais e subterrâneas

Os resultados das medidas de pH e Eh realizadas no laboratório e no campo para águas superficiais e subterrâneas foram representados nas Figuras 5.3 a 5.6.

O pH das águas superficiais (Figura 5.3) exibiu uma variação pequena para a maioria das análises, sugerindo não existir diferença entre as leituras no campo e no laboratório, sendo atribuídas às variações de maior amplitude a efeitos sazonais.

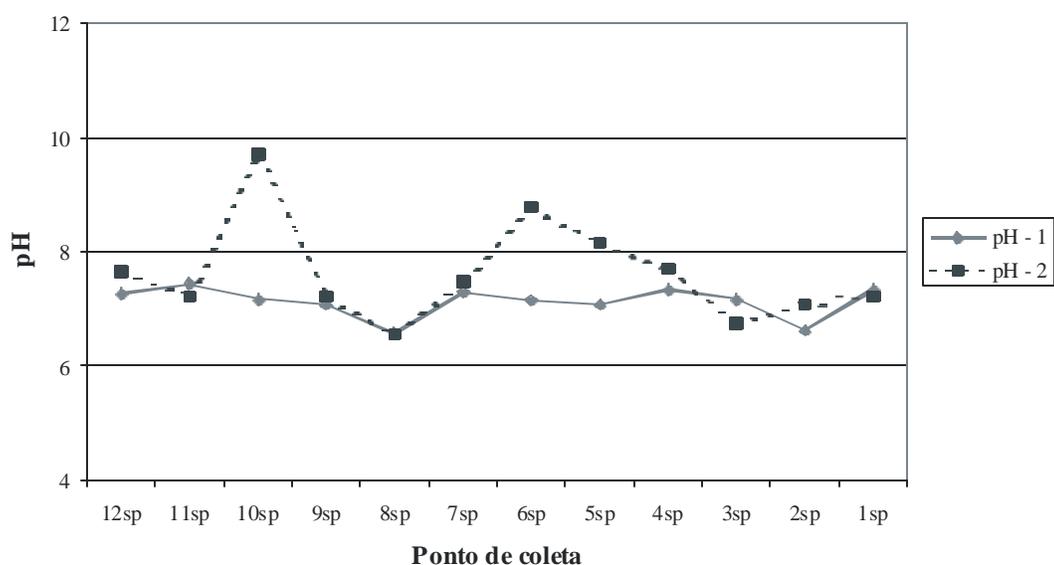


Figura 5.3 – Representação dos valores determinados para pH nas águas superficiais do Barreiro; pH – 1 (laboratório) e pH – 2 (campo).

No caso do Eh das águas superficiais (Figura 5.4) verificou-se que as variações de maior amplitude na leitura do pH (pontos 5sp, 6sp e 10sp) também foram observadas para o Eh.

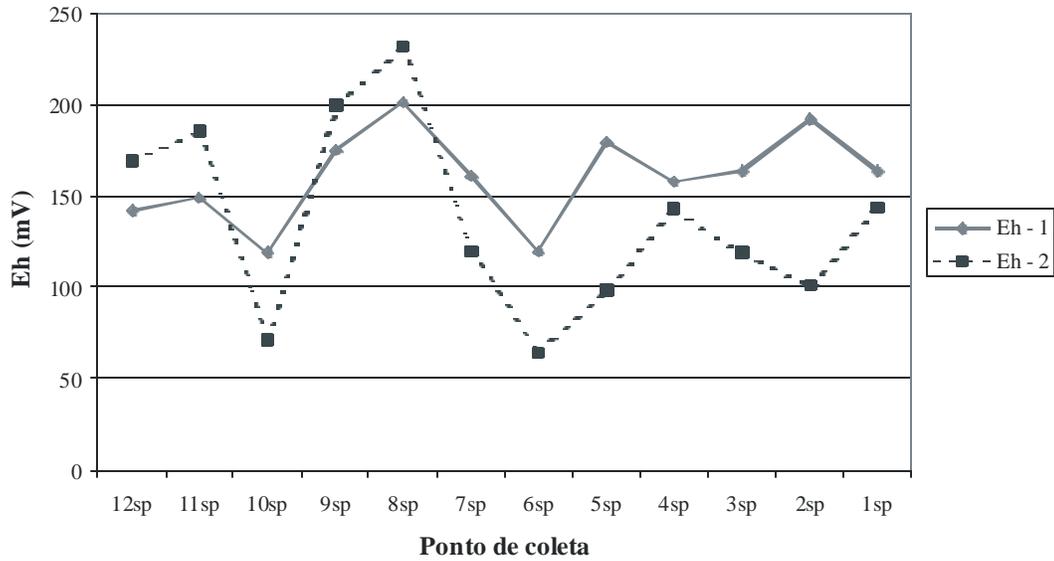


Figura 5.4 – Representação dos valores determinados para Eh nas águas superficiais do Barreiro; Eh – 1 (laboratório) e Eh – 2 (campo).

As leituras de pH e Eh efetuadas no campo e no laboratório para as águas subterrâneas variaram menos que o verificado para as águas superficiais, sendo as diferenças mais acentuadas observadas para o Eh nos pontos 1sb e 2sb (Figuras 5.5 e 5.6).

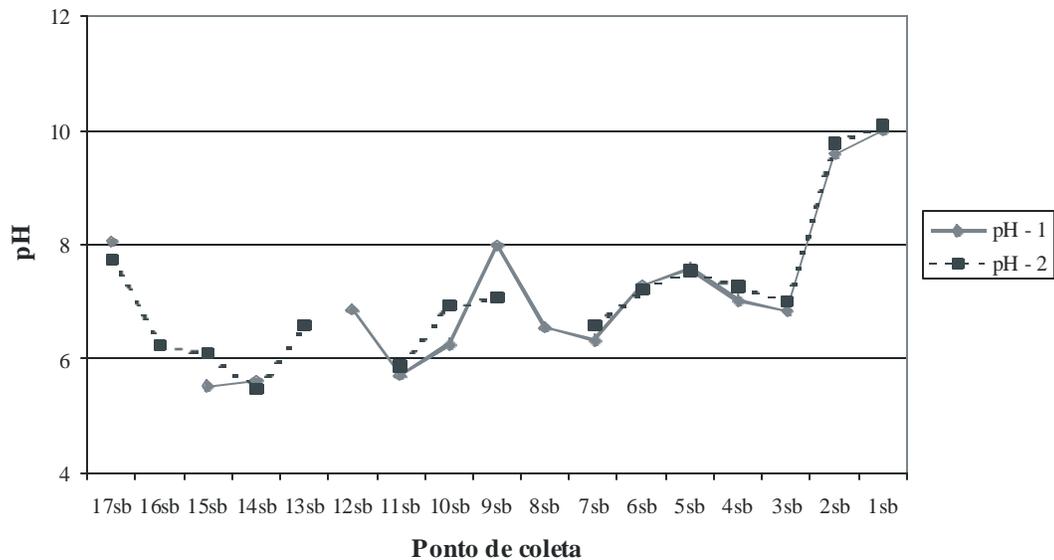


Figura 5.5 – Representação dos valores determinados para pH nas águas subterrâneas do Barreiro; pH – 1 (laboratório) e pH – 2 (campo).

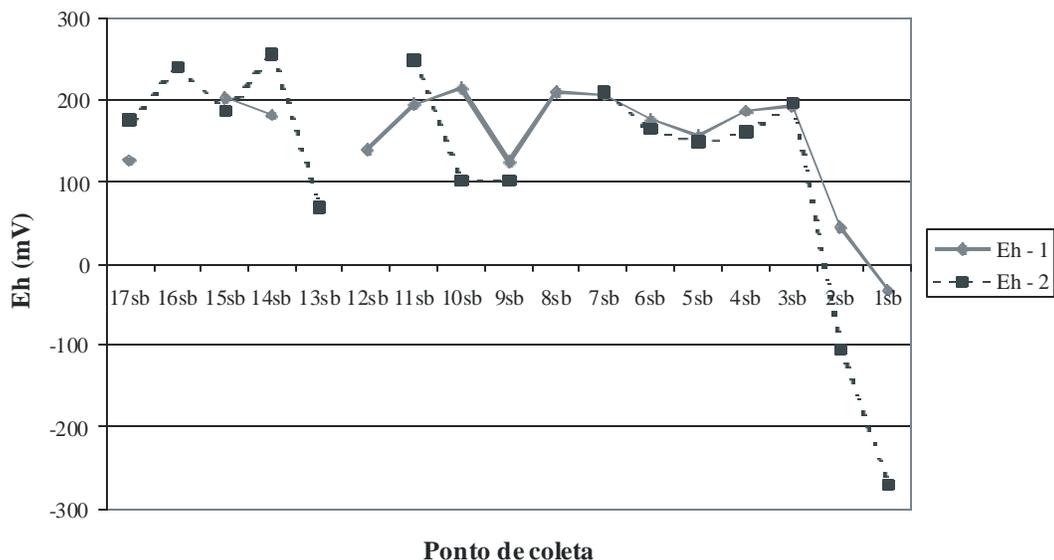


Figura 5.6 – Representação dos valores determinados para Eh nas águas subterrâneas do Barreiro; Eh – 1 (laboratório) e Eh – 2 (campo).

5.4. Águas superficiais

De acordo com a Figura 3.5 da seção 3.3.2, verifica-se que existem duas drenagens principais na Bacia do Barreiro, uma formada a Leste da área pelos córregos da Baritina, da Mata e seus afluentes e outra, a Oeste, formada pelos córregos da Cascatinha e do Borges, com saída principal a Norte, pelo córrego do Sal.

Isto sugeriu que fosse efetuada uma avaliação dos dados de forma a separar as amostras em dois grupos: grupo 1, a Leste (contendo os pontos 2sp, 3sp, 7sp, 8sp e 9sp); grupo 2, a Oeste (contendo os pontos 4sp, 6sp, 10sp, 11sp e 12sp). Os pontos 1sp e 5sp não foram incluídos em nenhum dos grupos, pois, o ponto 1sp é mistura das águas do grupo 1 e 2 e o ponto 5sp é proveniente do lago formado pelas águas da fonte Dona Beija, de maneira que é conveniente a sua análise em separado.

Dessa forma, os dados obtidos para as análises químicas (Tabelas 5.5 e 5.6) foram representados em histogramas que consideraram sua separação em grupos 1 e 2, a primeira etapa de campo (período chuvoso) e a segunda etapa de campo (período seco) (Figuras 5.7 a 5.12). Relativamente aos parâmetros analisados, destacam-se os valores elevados encontrados para o elemento Ba, principalmente para o período chuvoso

(Figuras 5.7 e 5.10), nos dois grupos analisados, o que já era esperado, devido à região possuir minerais contendo este elemento. O mesmo ocorre para alguns valores de Cl e Na, que podem caracterizar uma poluição antrópica, pois, as drenagens recebem esgotos domésticos e efluentes mínero-industriais produzidos no Barreiro (Figuras 5.7, 5.8, 5.10 e 5.11).

Verifica-se também nessas águas a presença de PO_4 nas duas drenagens, mas com valores mais acentuados para o grupo 1 no período seco (Figuras 5.9 e 5.12), o que se deve à presença de minerais contendo o P na área.

Num diagrama de Schoeller-Berkaloff (modificado) foram representados os valores médios dos resultados obtidos para as análises químicas dos cátions e ânions para o grupo 1 e para o grupo 2, bem como os dados obtidos para o ponto 1sp, para as duas etapas de campo (Figura 5.13). Características hidroquímicas semelhantes são verificadas dentro de cada grupo, quando comparados os valores para as duas etapas de campo, ocorrendo para a maioria dos cátions e ânions analisados a diminuição da concentração para a segunda etapa de campo (período seco).

Quando se comparam os dois grupos, verifica-se que as médias obtidas para o grupo 1 são, na sua maioria, maiores que para o grupo 2, para as duas etapas de campo. As águas do grupo 1 tendem ser sódico-cloretadas para as duas etapas de campo, enquanto as águas do grupo 2 são mais potássico-bicarbonatadas para as duas etapas de campo.

Observa-se também na Figura 5.13 que o ponto 1sp exhibe praticamente uma composição intermediária, caracterizando, assim, a mistura das águas das duas drenagens que originam o córrego do Sal.

A Figura 5.14 mostra os valores obtidos para as análises químicas do ponto 5sp para as duas etapas de campo, onde se nota o alto teor determinado para o Cl, provavelmente associado à poluição antrópica. Verifica-se também que este ponto parece influenciar diretamente o ponto 4sp, principalmente em termos de Cl, uma vez que as águas do Lago do Grande Hotel (ponto 5sp) têm sua saída pelo córrego da Cascatinha (ponto 4sp).

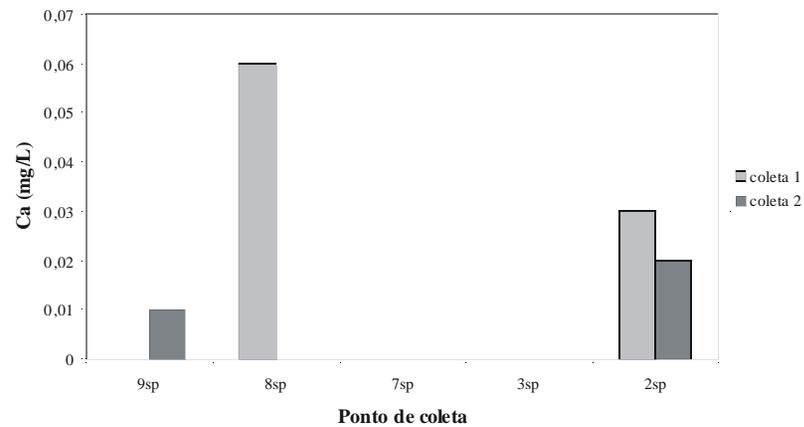
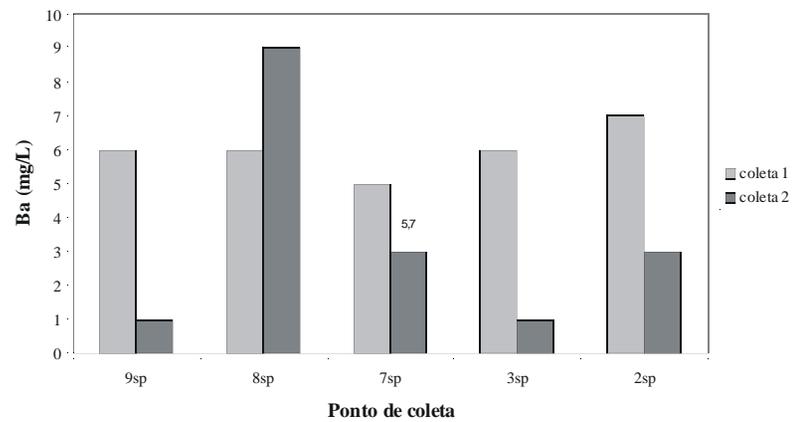
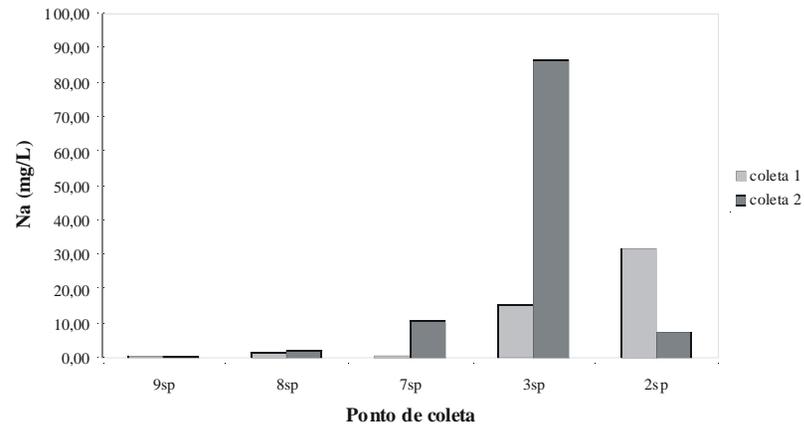
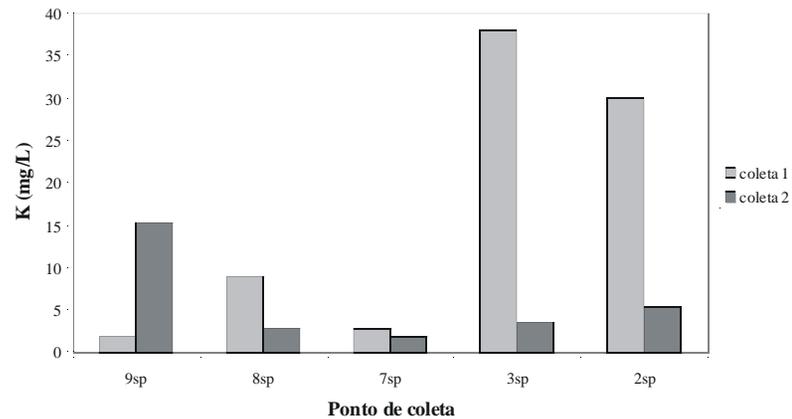


Figura 5.7 – Representação dos teores de K^{++} , Na^{+} , Ba^{++} e Ca^{++} nas águas superficiais do Barreiro (grupo 1) amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

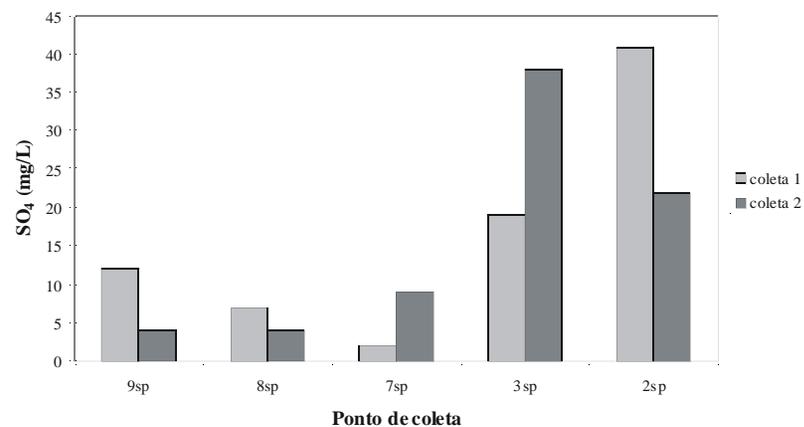
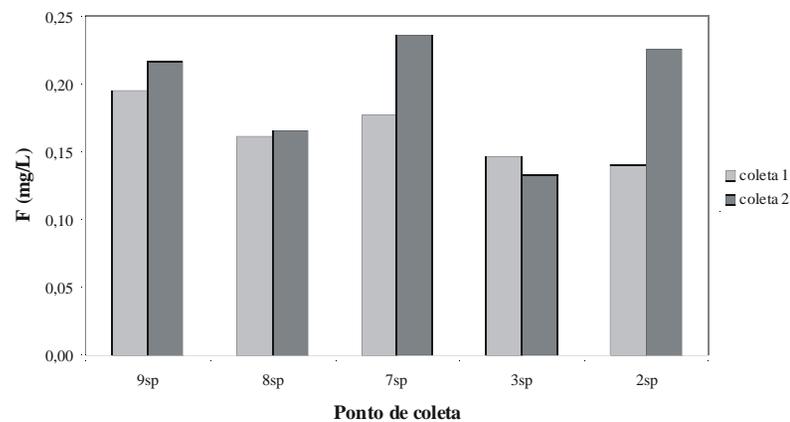
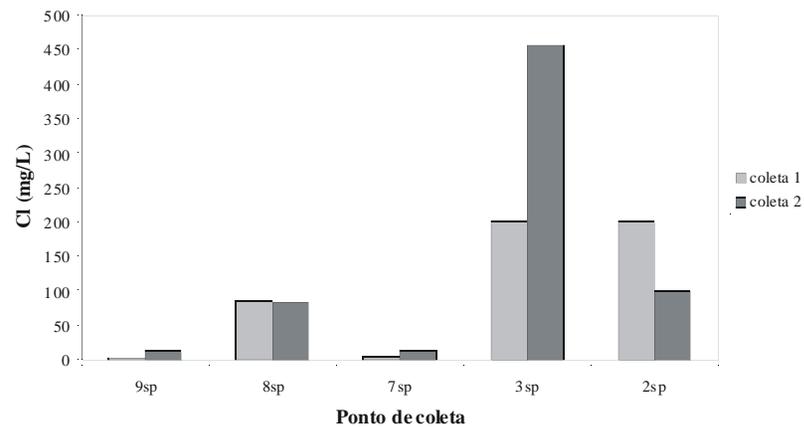
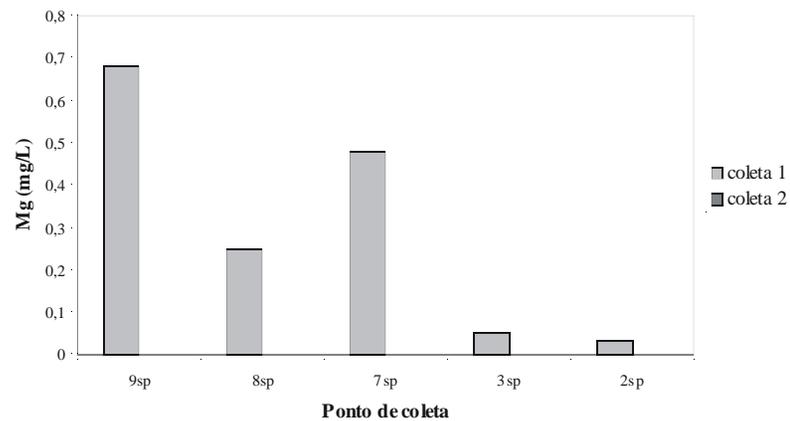


Figura 5.8 – Representação dos teores de Mg⁺⁺, Cl, F e SO₄⁻ nas águas superficiais do Barreiro (grupo 1) amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

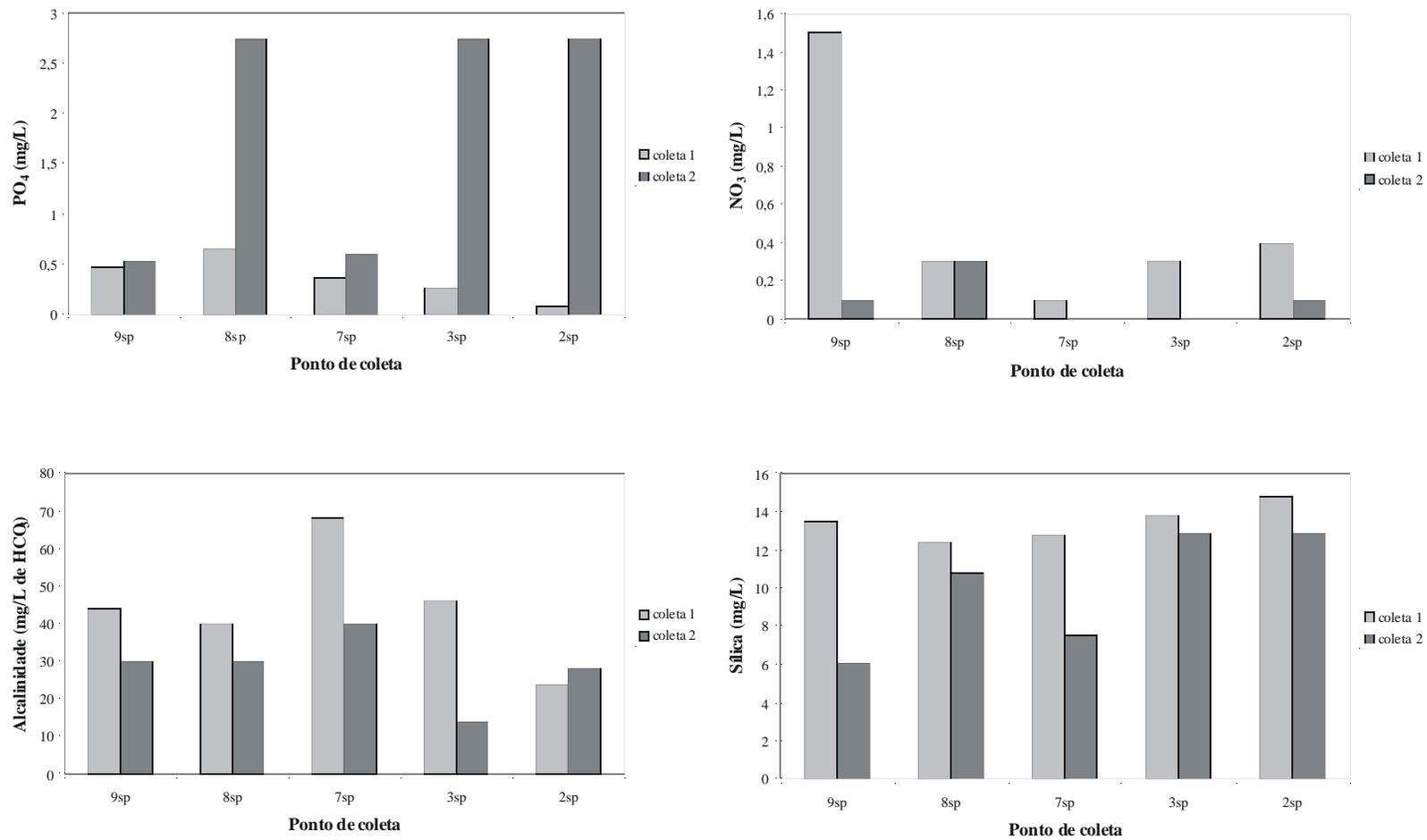


Figura 5.9 – Representação dos teores de PO₄³⁻, NO₃⁻, alcalinidade e sílica nas águas superficiais do Barreiro (grupo 1) amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

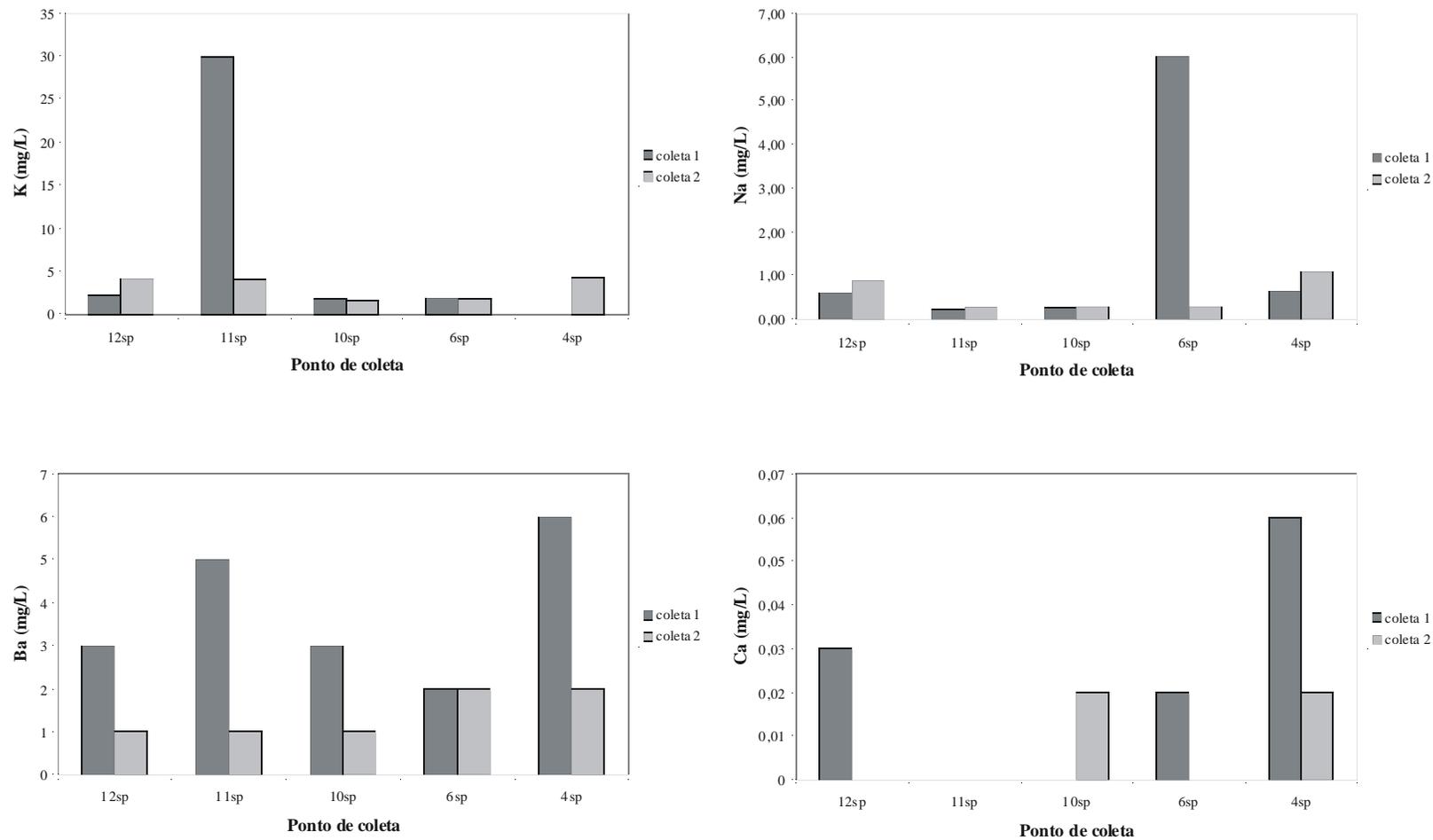


Figura 5.10 – Representação dos teores de K^{++} , Na^{+} , Ba^{++} e Ca^{++} nas águas superficiais do Barreiro (grupo 2) amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

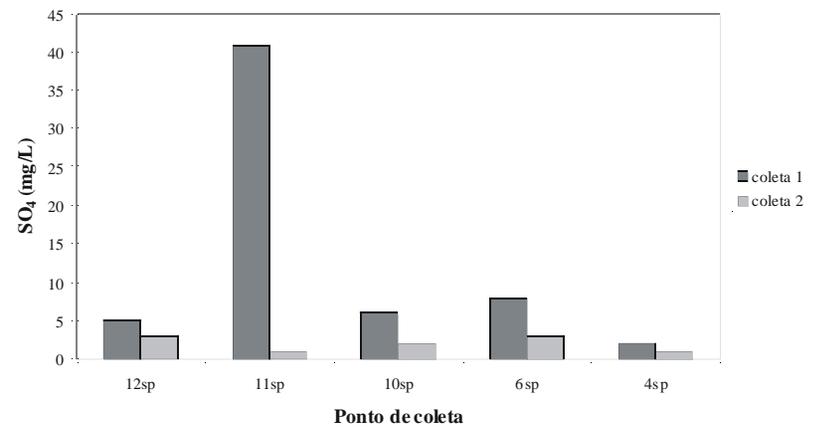
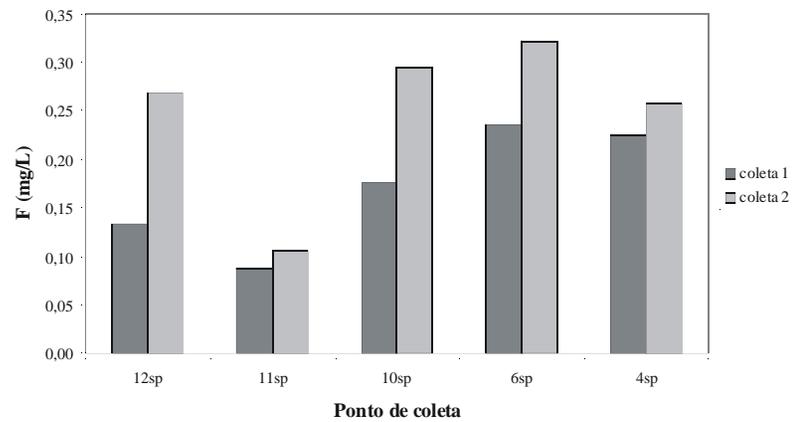
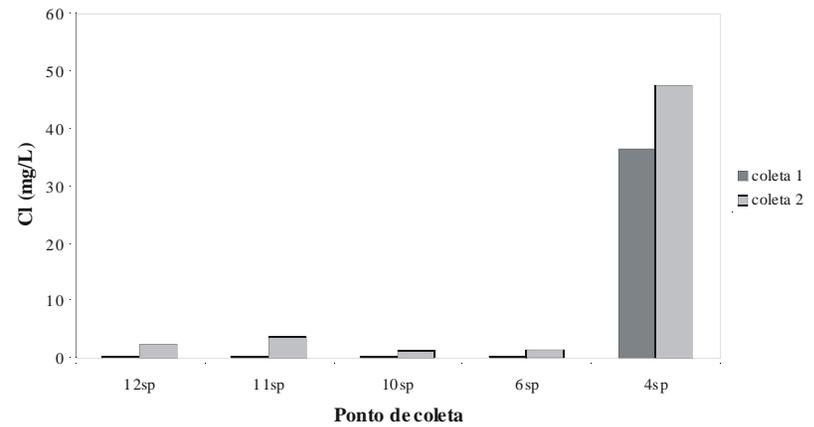
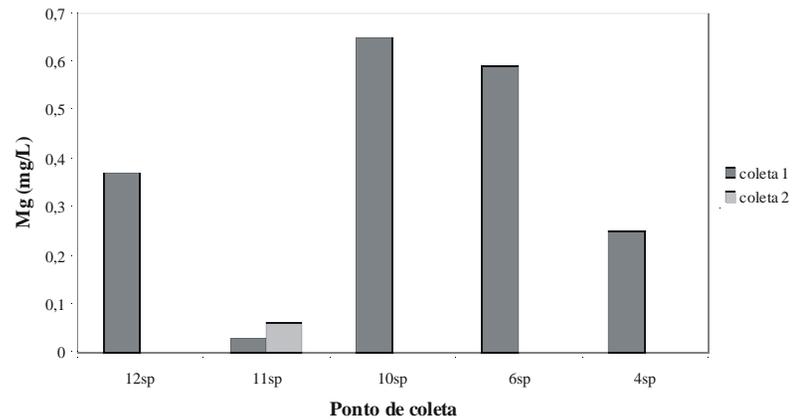


Figura 5.11 Representação dos teores de Mg⁺⁺, Cl⁻, F⁻ e SO₄⁻ nas águas superficiais do Barreiro (grupo 2) amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

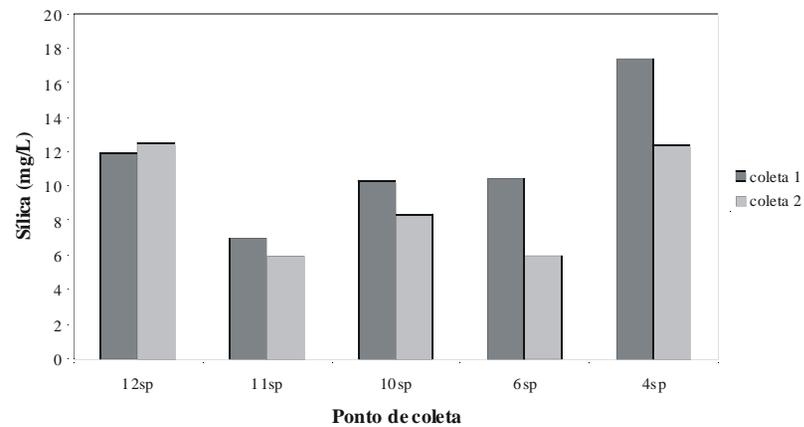
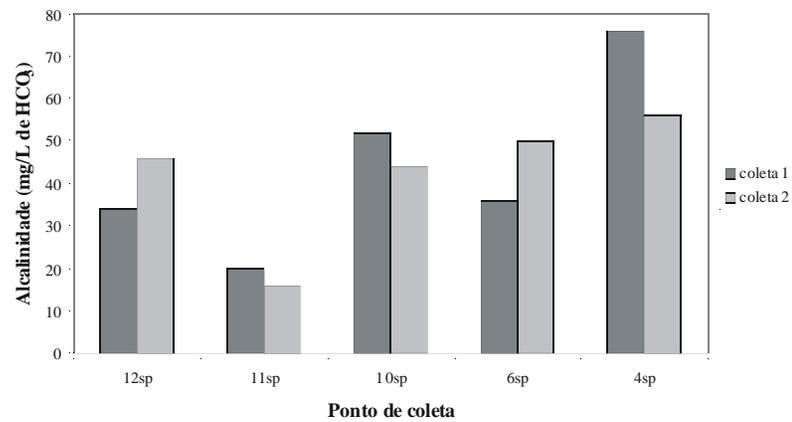
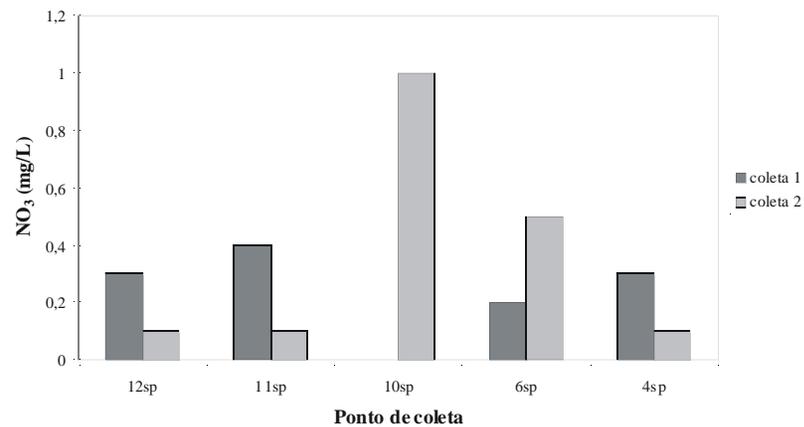
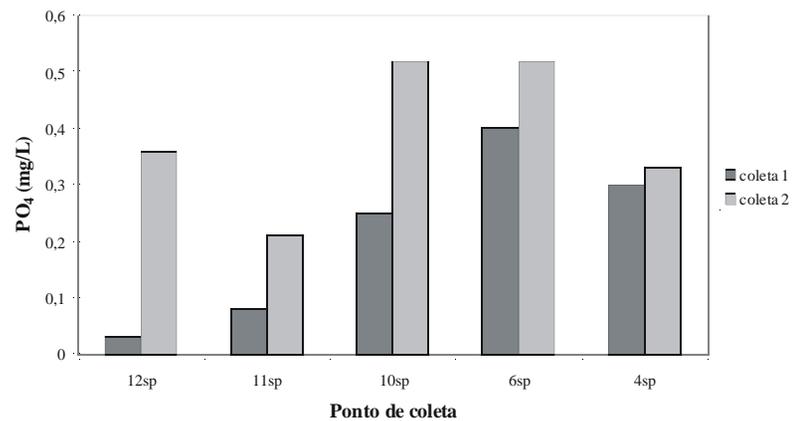


Figura 5.12 – Representação dos teores de PO₄³⁻, NO₃⁻, alcalinidade e sílica nas águas superficiais do Barreiro (grupo 2) amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

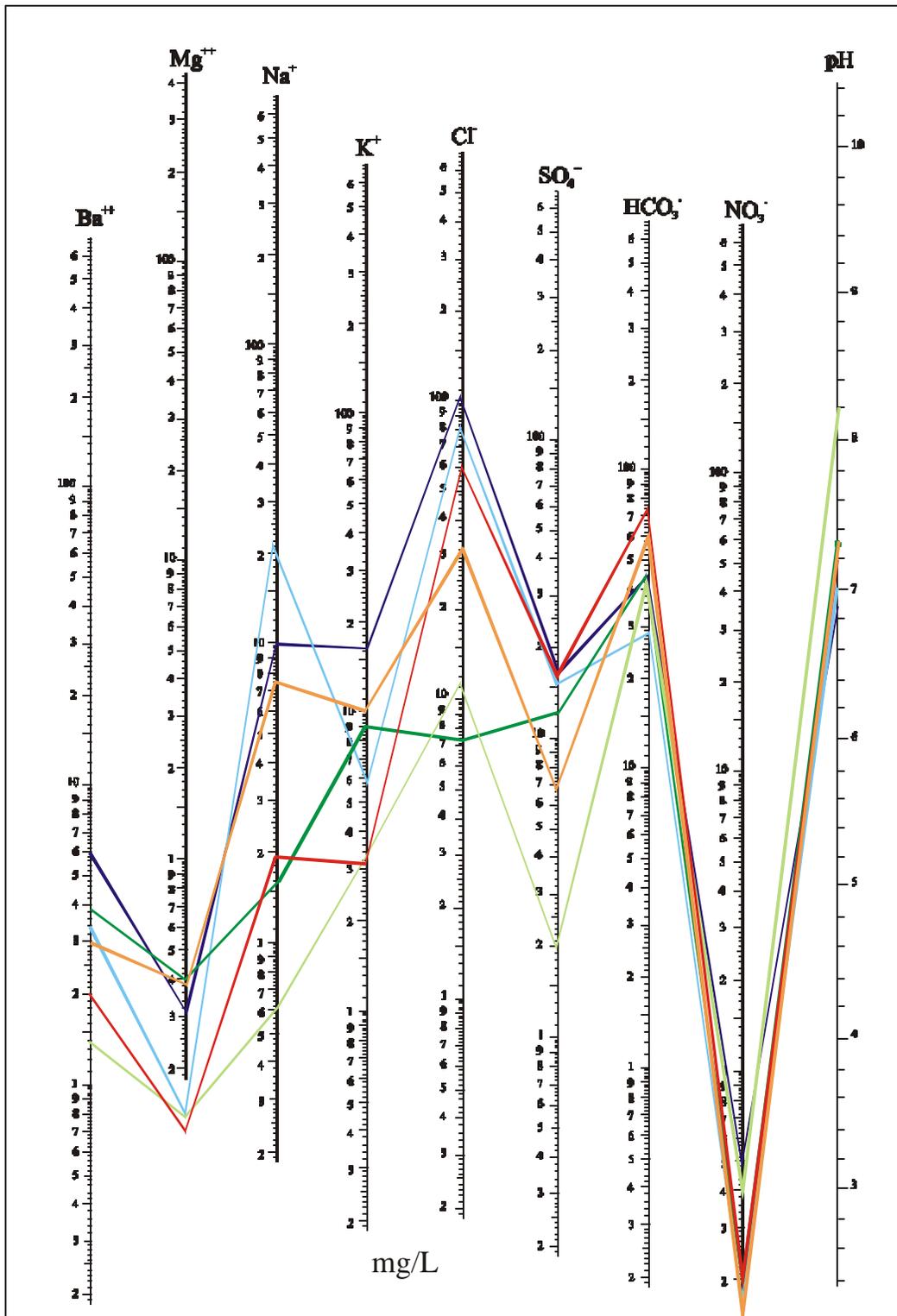


Figura 5.13 – Diagrama de Schoeller-Berkaloff modificado para a média dos resultados das análises de águas superficiais do Barreiro: média grupo 1 (etapa 1 e etapa 2), média grupo 2 (etapa 1 e etapa2) e ponto 1sp (etapa 1 e etapa 2).

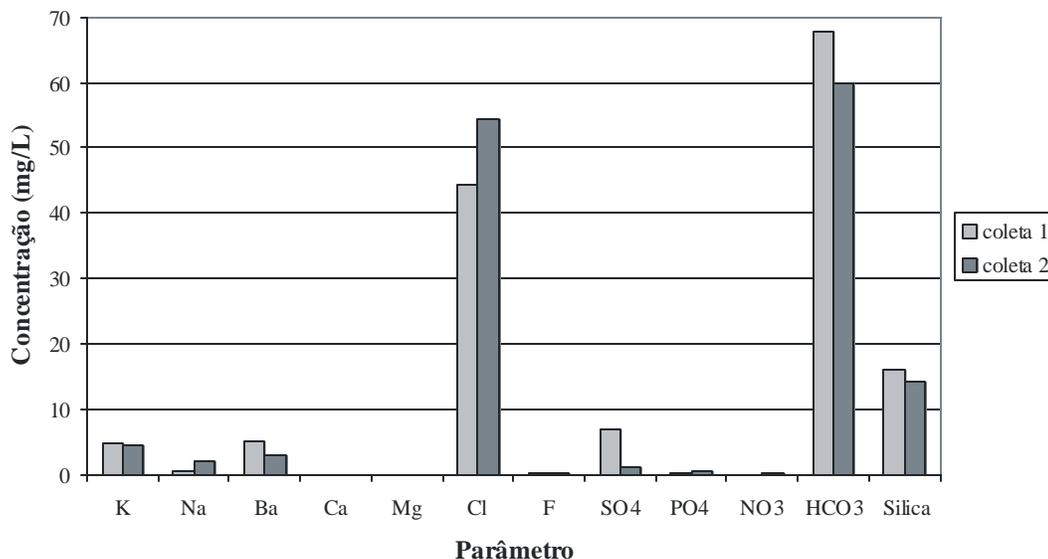


Figura 5.14 – Resultados das análises químicas para o ponto 5sp amostrado entre 16 e 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

Os dados obtidos para o pH e Eh durante as duas etapas de campo foram representados num diagrama Eh-pH (Figuras 5.15 e 5.16), verificando-se que nas duas situações os pontos se inserem numa zona de transição com tendência redutora. A comparação do grupo 1 com o grupo 2 para a primeira etapa de campo indica um comportamento diferenciado entre as drenagens (Figura 5.15), o que não se observa para a segunda etapa de campo (Figura 5.16).

Quando são analisados os grupos de forma individual e comparados os resultados da primeira etapa de campo com os da segunda (Figuras 5.15 e 5.16) verifica-se que: para o grupo 1 na primeira etapa de campo há um comportamento mais linear em relação ao da segunda, que exibe maior dispersão; para o grupo 2 observa-se um comportamento linear, que muda de direção da primeira para a segunda coleta. Isto reforça as características diferentes e comportamentos diferenciados das drenagens quanto a sazonalidade.

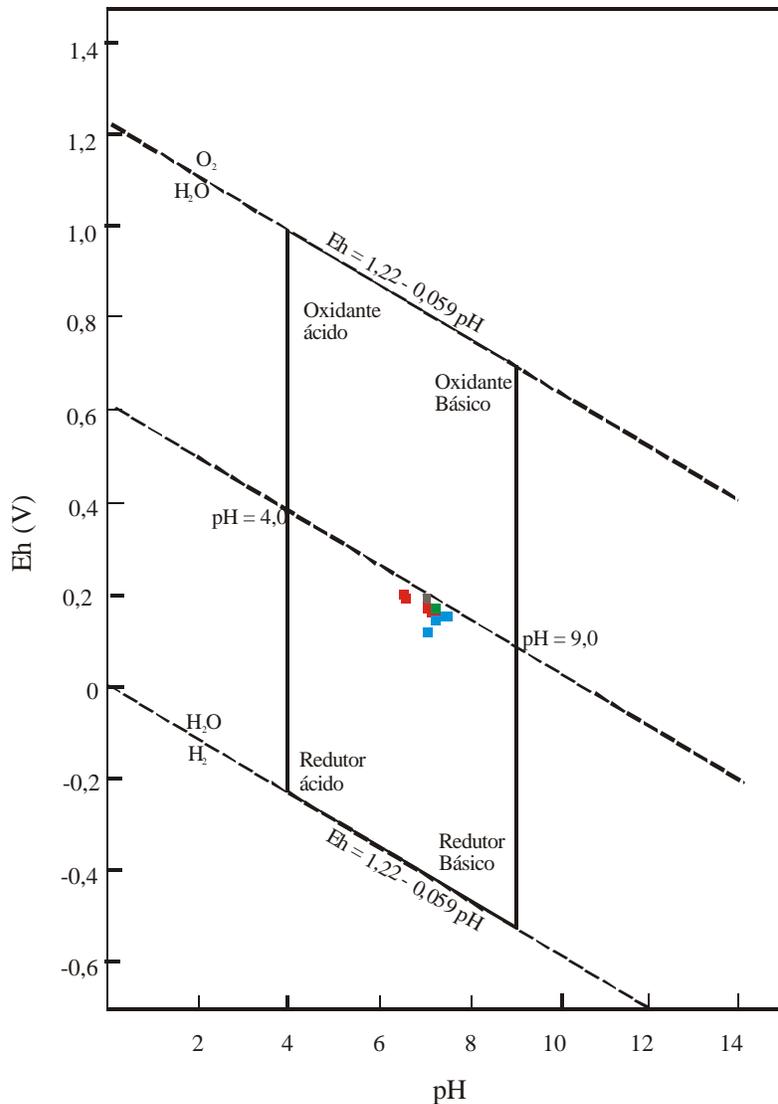


Figura 5.15 – Diagrama Eh-pH para as águas superficiais do Barreiro coletadas de 16 a 19/02/2000: grupo 1, grupo 2 e os pontos lsp e 5sp.

Os resultados obtidos foram submetidos à análise estatística de correlação, usando dois critérios: 1) o geográfico (a independência das drenagens) e o 2) o climatológico (período chuvoso e seco).

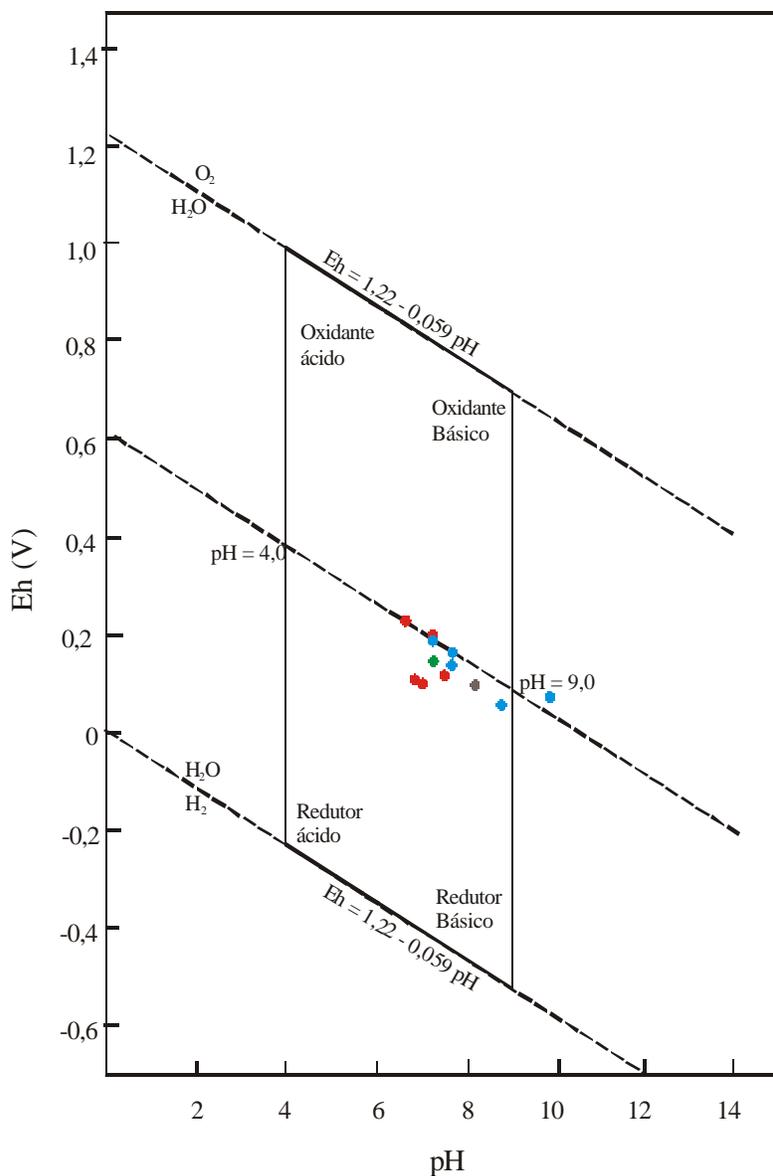


Figura 5.16 – Diagrama Eh-pH para as águas superficiais do Barreiro coletadas de 12 a 16/09/2000: grupo 1 grupo 2 e os pontos 1sp e 5sp.

As águas coletadas a Leste (grupo 1) durante o período chuvoso exibiram correlações significativas entre: a condutividade elétrica e os elementos Ba e Na; o SO_4 e os elementos Ba e Na; o SO_4 e a sílica; o Eh e o pH (Figuras 5.17 a 5.22). A correlação entre o Eh e o pH é inversa e está de acordo com a ilustrada no diagrama Eh-pH (Figura 5.15).

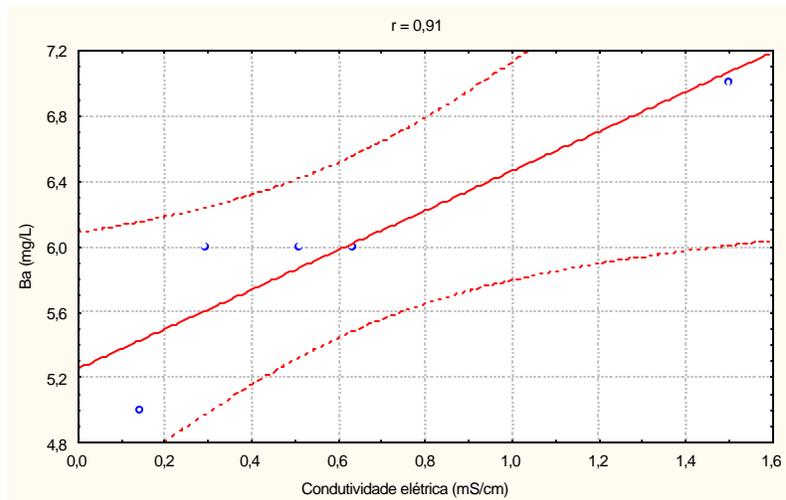


Figura 5.17 – Curva de correlação entre a condutividade elétrica e o elemento Ba para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 16 a 19/02/2000.

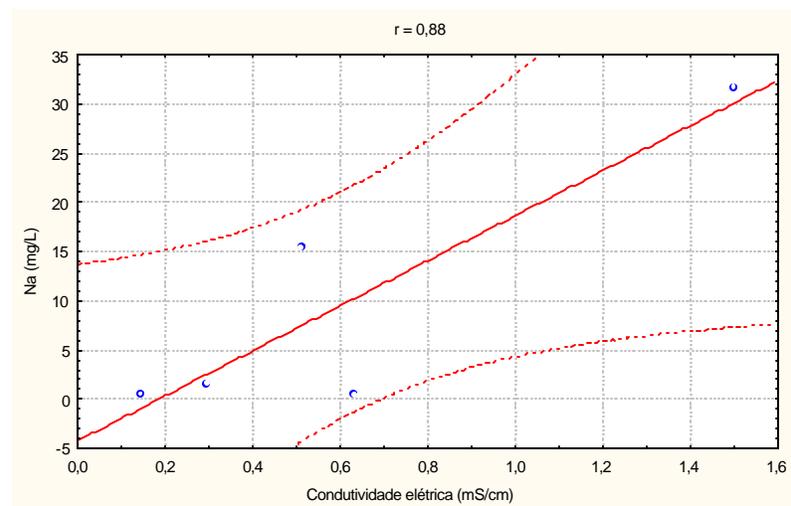


Figura 5.18 – Curva de correlação entre a condutividade elétrica e o elemento Na para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 16 a 19/02/2000.

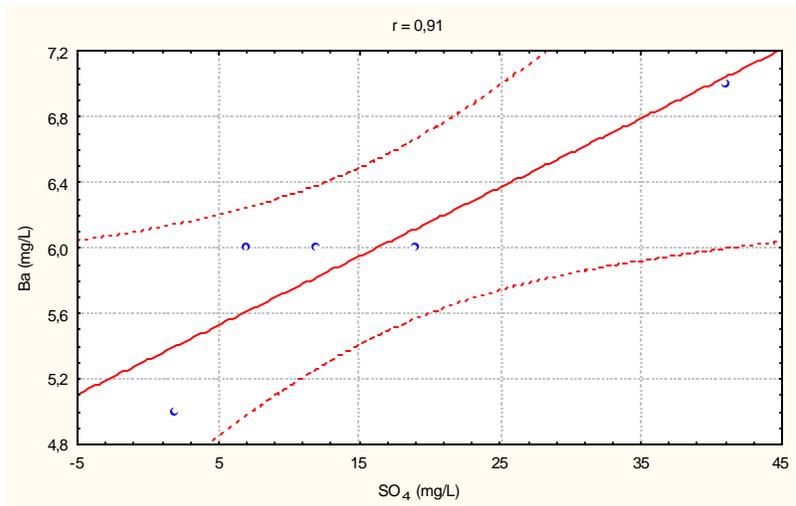


Figura 5.19 – Curva de correlação entre o SO_4 e o elemento Ba para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 16 a 19/02/2000.

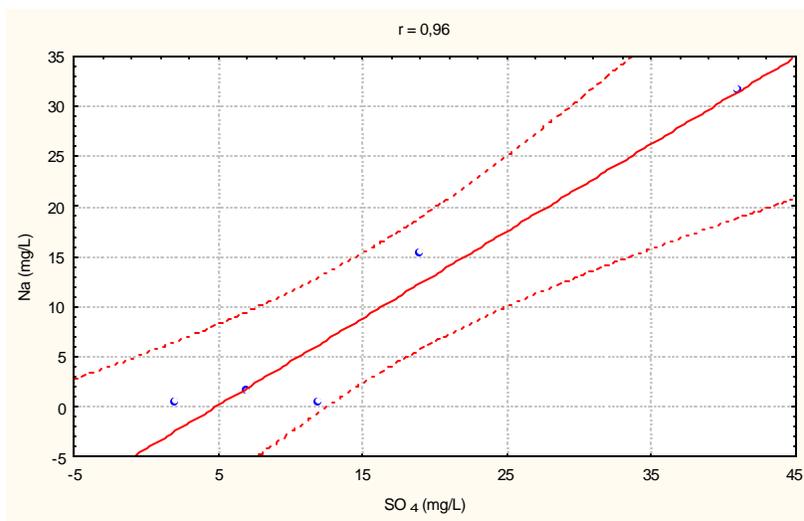


Figura 5.20 – Curva de correlação entre o SO_4 e o elemento Na para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 16 a 19/02/2000.

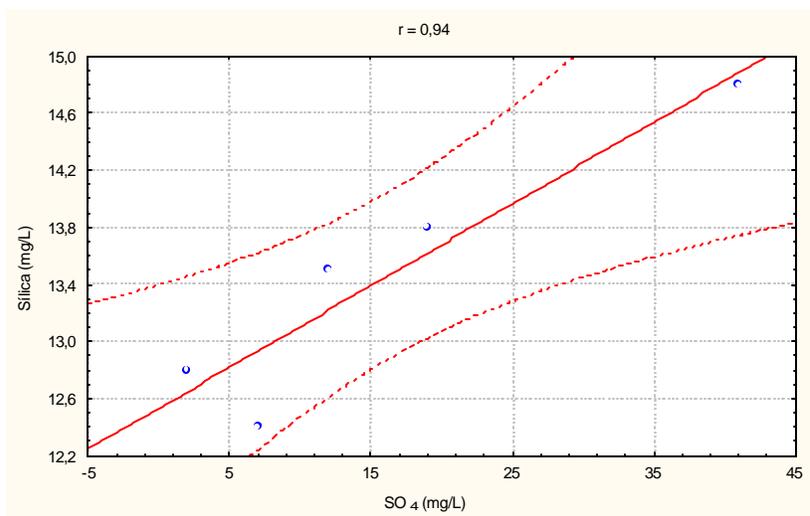


Figura 5.21 – Curva de correlação entre o SO₄ e a sílica para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 16 a 19/02/2000.

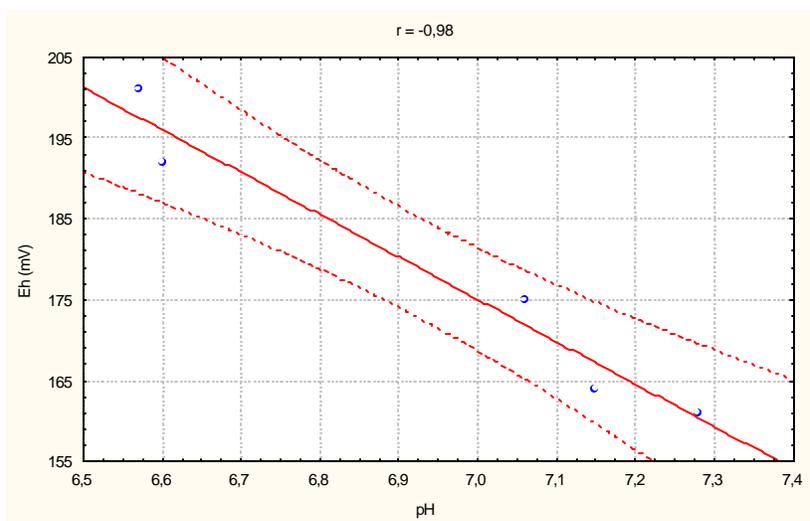


Figura 5.22 – Curva de correlação entre o pH e o Eh para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 16 a 19/02/2000.

Para o grupo 1 e período seco, foram encontradas correlações significativas entre: a condutividade elétrica e os elementos Na e Cl; o SO₄ e os elementos Na e Cl; o Cl e o elemento Na (Figuras 5.23 a 5.27). Para este período não ocorreu correlação significativa entre o Eh e o pH, conforme também indicou o diagrama Eh-pH (Figura 5.16). Algumas correlações se repetiram como o caso da condutividade elétrica e o

elemento Na e também entre o Na e o SO_4 . Outras correlações não foram repetidas e novas ocorreram, como é o caso do Cl e do Na, denotando a influência sazonal no comportamento hidroquímico diferenciado das drenagens.

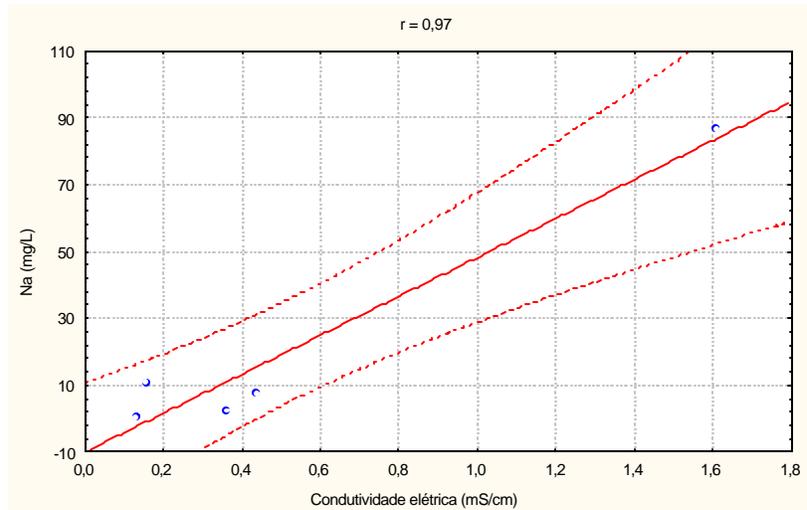


Figura 5.23. – Curva de correlação entre a condutividade elétrica e o elemento Na para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1), coletadas no período de 12 a 16/09/2000.

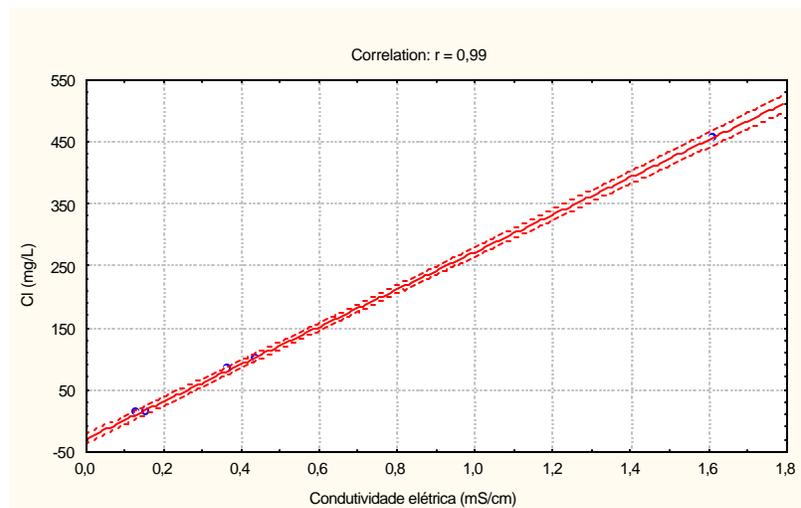


Figura 5.24 – Curva de correlação entre a condutividade elétrica e o elemento Cl para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 12 a 16/09/2000.

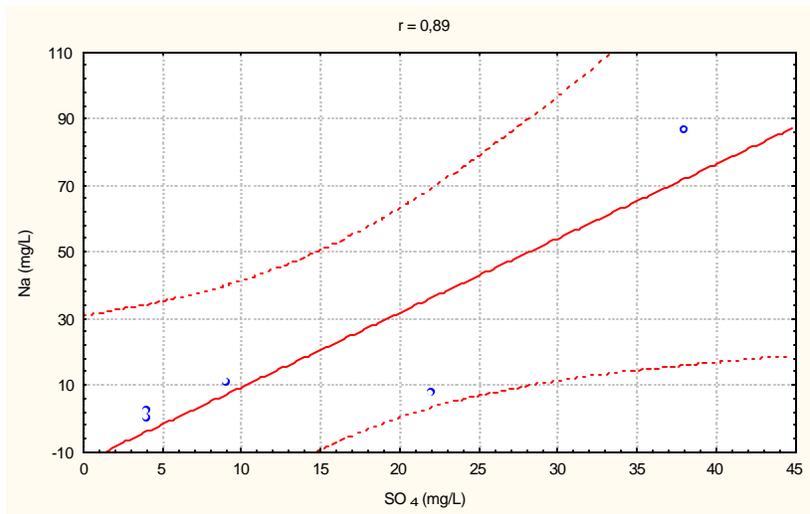


Figura 5.25 – Curva de correlação entre o SO₄ e o elemento Na para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 12 a 16/09/2000.

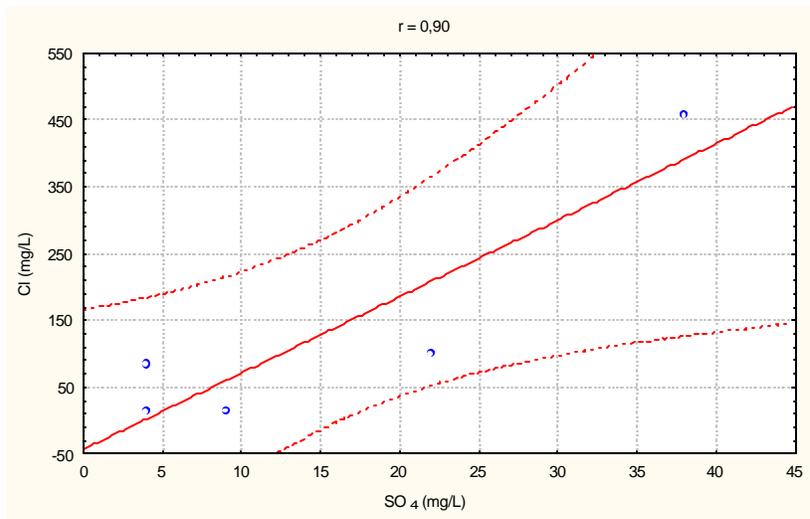


Figura 5.26 – Curva de correlação entre o SO₄ e o elemento Cl para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 12 a 16/09/2000.

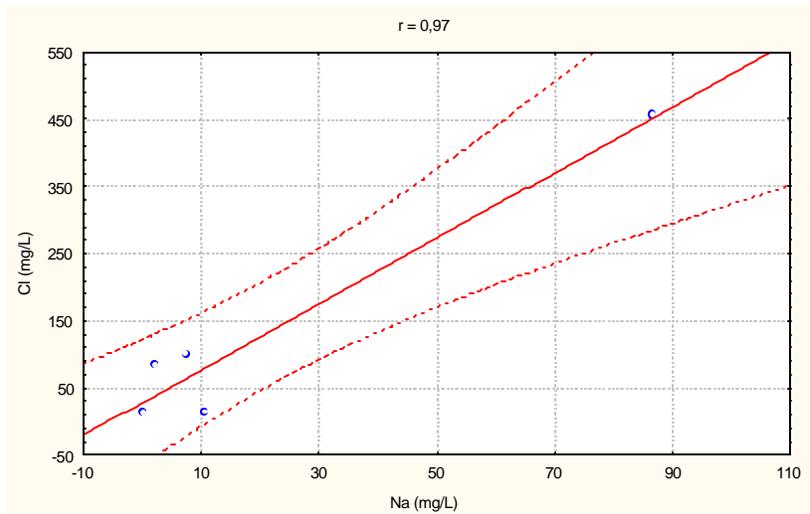


Figura 5.27 – Curva de correlação entre o Na e o elemento Cl para as águas superficiais do Barreiro (grupo 1) coletadas no período de 12 a 16/09/2000.

Analisando-se as águas coletadas a Oeste (grupo 2) para o período chuvoso, não foram encontradas correlações significativas para os parâmetros analisados, à exceção da correlação direta entre o Eh e pH (Figura 5.28), também visualizada no diagrama Eh-pH (Figura 5.15).

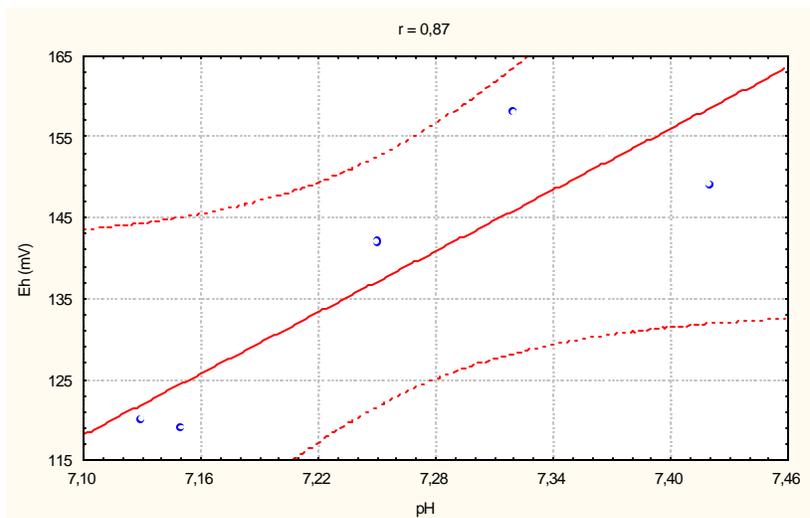


Figura 5.28 – Curva de correlação entre o pH e Eh para as águas superficiais do Barreiro (grupo 2) coletadas no período de 16 a 19/02/2000.

Para o grupo 2 e período seco, também não foram encontradas correlações significativas entre os parâmetros analisados, à exceção da correlação inversa entre o Eh e pH (Figura 5.29), também visualizada no diagrama Eh-pH (Figura 5.16).

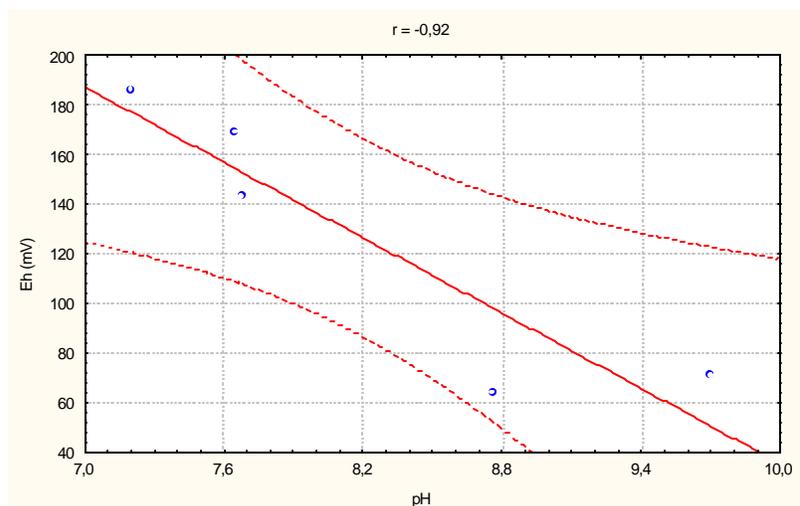


Figura 5.29 – Curva de correlação entre o pH e Eh para as águas superficiais do Barreiro (grupo 2) coletadas no período de 12 a 16/09/2000.

Para justificar as características hidroquímicas diferenciadas de cada drenagem, deve-se levar em conta a distribuição dos vários depósitos minerais existentes no Barreiro, além da influência causada pelas minerações, principalmente pela CBMM, que possui uma lagoa de efluentes do beneficiamento de nióbio (hoje desativada) a montante do córrego da Mata.

A drenagem que constitui o grupo 1 está localizada entre os principais depósitos minerais do Barreiro. O córrego da Baritina tem sua origem nas minas de nióbio e fosfato, o córrego da “CBMM” corta os depósitos de barita, o córrego da Mata e seus afluentes estão distribuídos por uma região onde predomina a canga e tem na sua margem esquerda um depósito de terras raras, além de sofrer influência da barragem de efluentes da mineração de nióbio. O grupo 2 está em uma área onde predomina o solo laterítico e a canga. O córrego da Cascatinha tem sua nascente e parte do seu leito sobre a Canga até a barragem “F” e o córrego do Borges está sobre solo laterítico até a barragem “E”. As construções da barragem “BCM” e do dique da mina de fosfato também podem influenciar na composição e na qualidade das águas superficiais, tanto retendo quanto fornecendo determinados elementos.

5.5. Águas subterrâneas

Os dados obtidos para as amostras de águas subterrâneas das duas etapas de campo (período chuvoso e seco) foram inseridos em diagramas de Piper (parcial) (Figuras 5.30 e 5.31). As amostras quimicamente mais diferenciadas são 1sb e 2sb, que são sulfatadas para as duas etapas de campo. Isto pode ser explicado por ser a amostra 1sb proveniente da fonte Andrade Jr., que apresenta características diferenciadas em relação às das demais águas subterrâneas, como já foi apresentado no capítulo 3. Nota-se também que o ponto 2sb sofre influência direta desta fonte, devido à proximidade deste poço à fonte, ao lago formado por essas águas e à localização em cota topográfica menos elevada (baixo topográfico) do Barreiro, o que implica no posicionamento do seu nível d'água a menos de 3 m de profundidade (Tabelas 5.3 e 5.4).

Para a primeira etapa de campo observa-se que as águas do aquífero granular (pontos 3sb a 17sb), apresentam uma predominância de Na e K para os cátions e de bicarbonato para os ânions (Figura 5.30). A falta de dados de K para os pontos 3sb, 4sb e 7sb torna essas águas magnesianas, como também o ponto 14sb, onde o magnésio se torna predominante devido aos menores teores encontrados de Na e K. (Tabela 5.7).

Na segunda etapa de campo observa-se que as águas são na sua maioria sódico-potássicas, à exceção das amostras 13sb e 15sb que são magnesianas; quanto aos ânions elas são bicarbonatadas, com uma maior influência de Cl para os pontos 11sb e 16sb (Figura 5.31).

Numa análise mais particular, destacam-se os valores encontrados para o elemento Ba, principalmente para o período chuvoso (Figura 5.32). Este elemento faz parte dos principais depósitos minerais encontrados no Barreiro, como a barita e o pirocloro, aparecendo também possivelmente devido à pluma de contaminação ($BaCl_2$) existente na área em virtude da barragem de efluentes da mineração de nióbio.

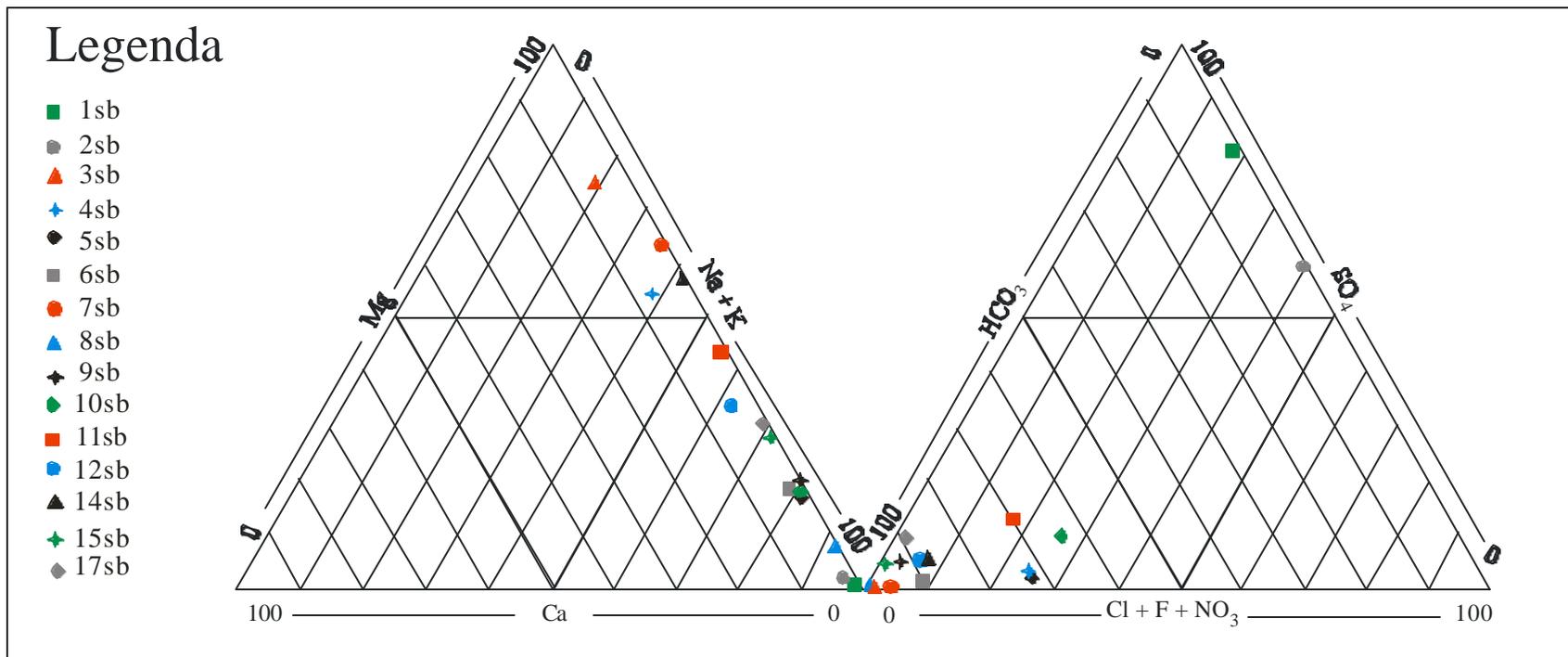


Figura 5.30 – Diagrama de Piper parcial para as águas subterrâneas do Barreiro amostradas de 16 a 19/02/2000.

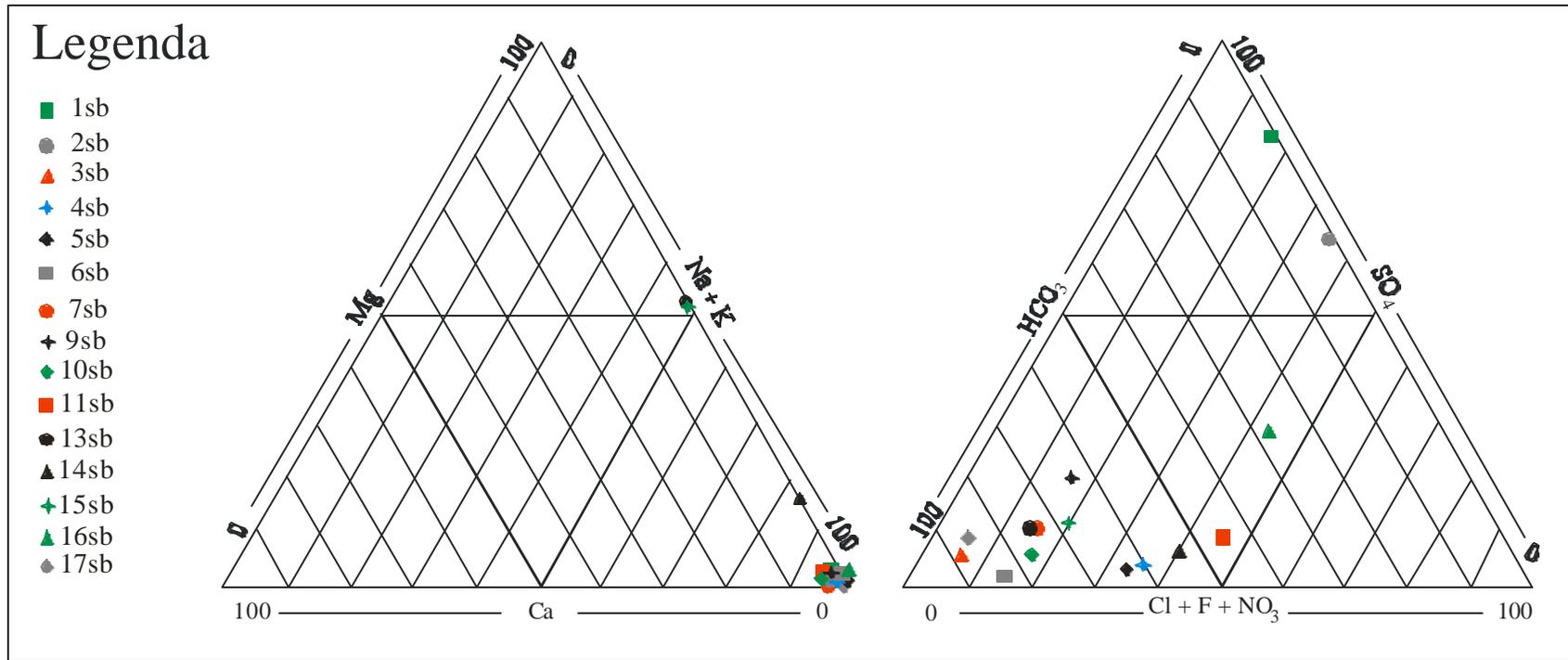


Figura 5.31 – Diagrama de Piper parcial para as águas subterrâneas do Barreiro amostradas de 12 a 16/09/2000.

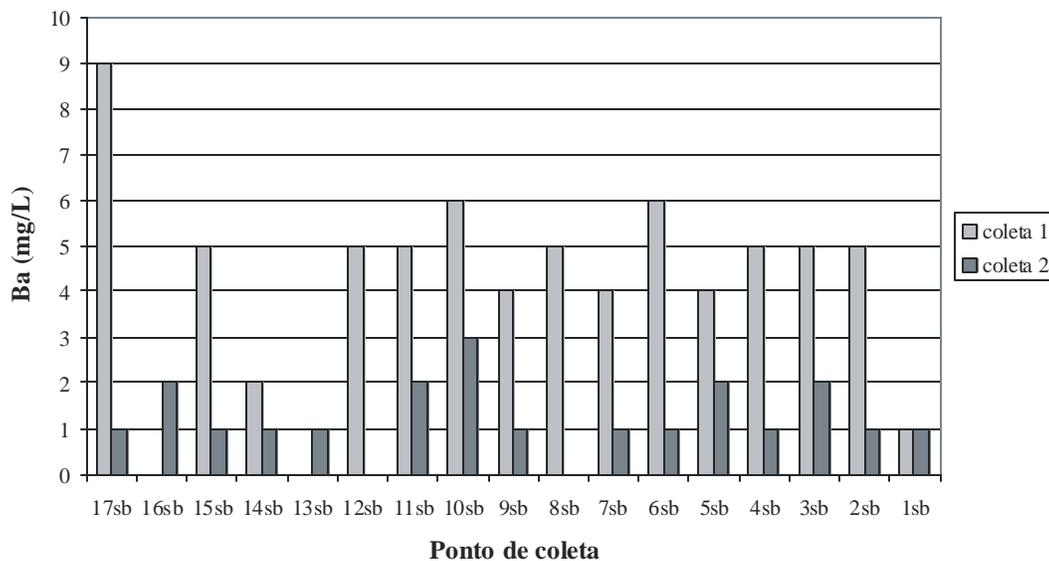


Figura 5.32 – Teor de Ba dissolvido nas águas subterrâneas do Barreiro, Araxá (MG). Amostragem de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

Alguns pontos apresentaram valores elevados para o ânion PO_4^{3-} (Figura 5.33), devido a mineralização de fosfato existente na área, que está disposta em vários níveis de profundidade.

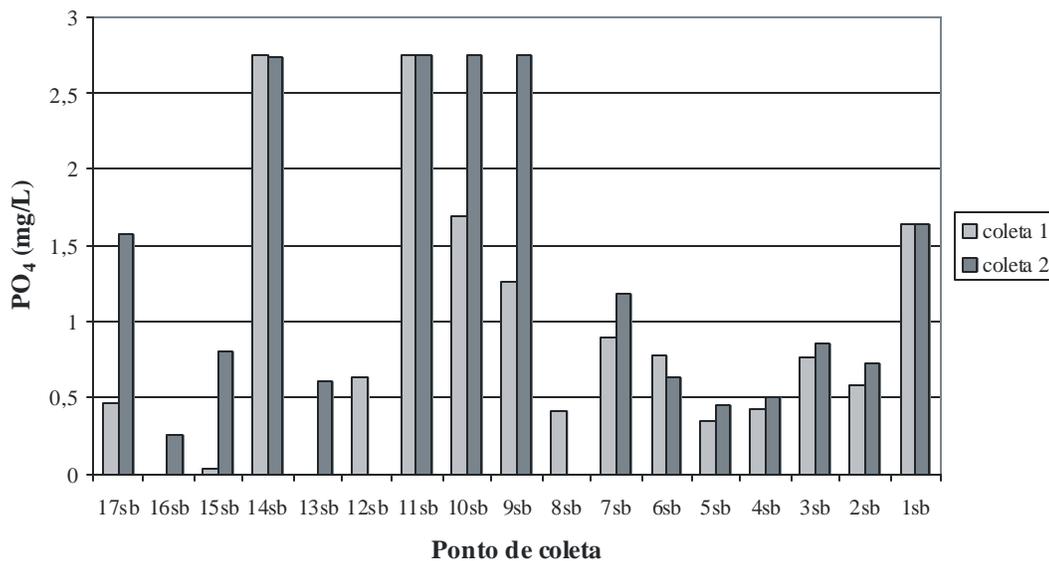


Figura 5.33 – Teor de PO_4^{3-} dissolvido nas águas subterrâneas do Barreiro, Araxá (MG). Amostragem de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

Os dados obtidos nos dois períodos de coleta foram representados em diagramas de Eh-pH (Figuras 5.34 e 5.35), os quais indicam que os pontos estão inseridos em uma zona de transição com tendência redutora, similarmente ao verificado para as águas superficiais. Um caráter fortemente redutor foi verificado para as amostras dos pontos 1sb e 2sb, na segunda campanha de amostragem, que se destacam dos demais face às características hidroquímicas diferenciadas.

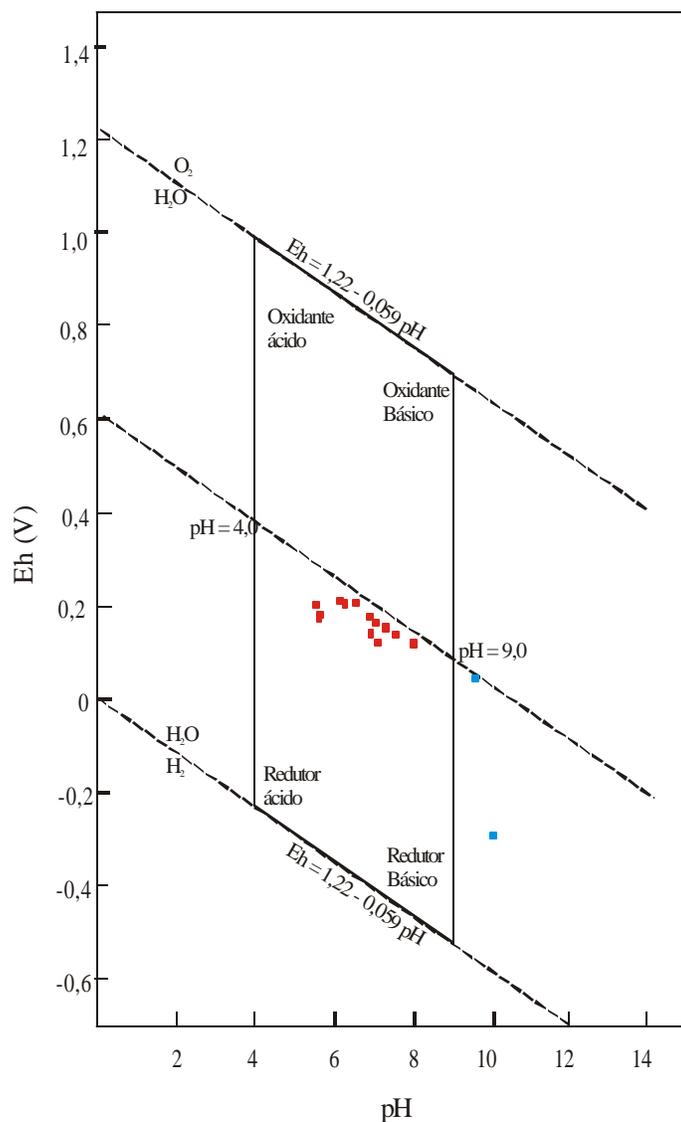


Figura 5.34 – Diagrama Eh-pH para as águas subterrâneas do Barreiro (pontos 3sb a 17sb) e pontos 1sb e 2sb. Amostragem entre 16 e 19/02/2000.

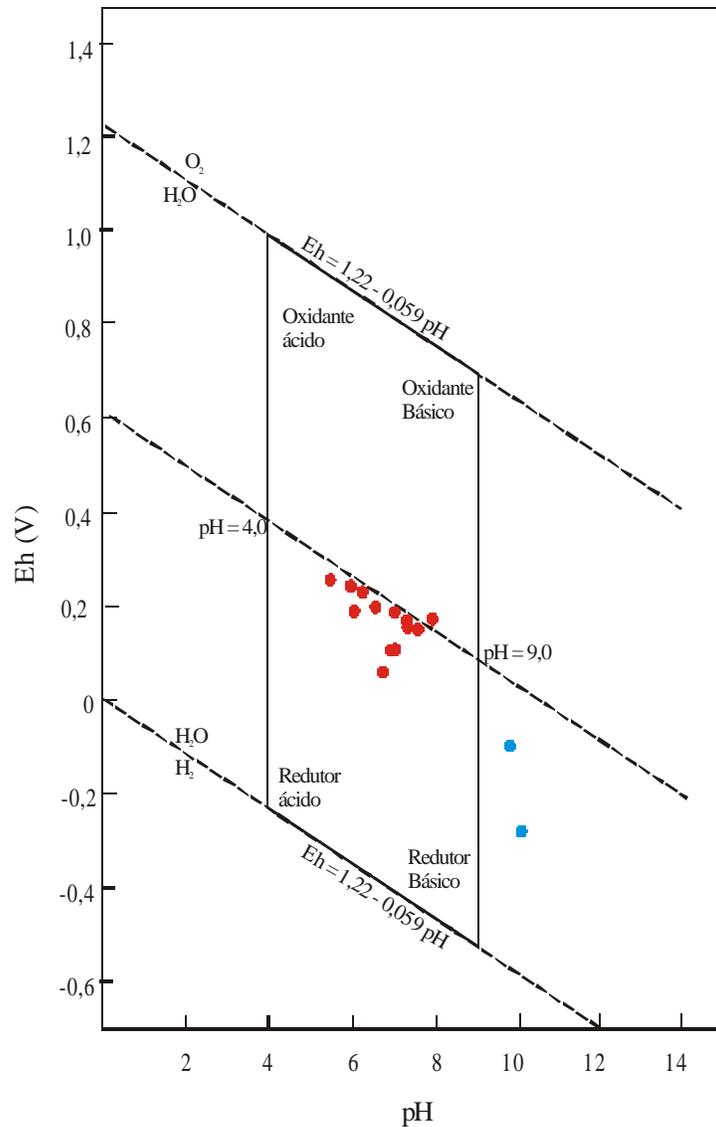


Figura 5.35 – Diagrama Eh-pH para as águas subterrâneas do Barreiro (pontos 3sb a 17sb) e pontos 1sb e 2sb. Amostragem entre 12 e 16/09/2000.

Uma análise de correlação foi efetuada para os resultados obtidos durante as duas etapas de amostragem, tendo sido desconsiderados os pontos 1sb e 2sb por não representarem o aquífero mais superficial estudado.

Para o período chuvoso foi encontrada uma correlação direta significativa entre o Ba e SO_4 e uma correlação inversa entre o Eh e pH (Figuras 5.36 e 5.37), esta última condizente com a representação dos dados no diagrama Eh-pH (Figura 5.34).

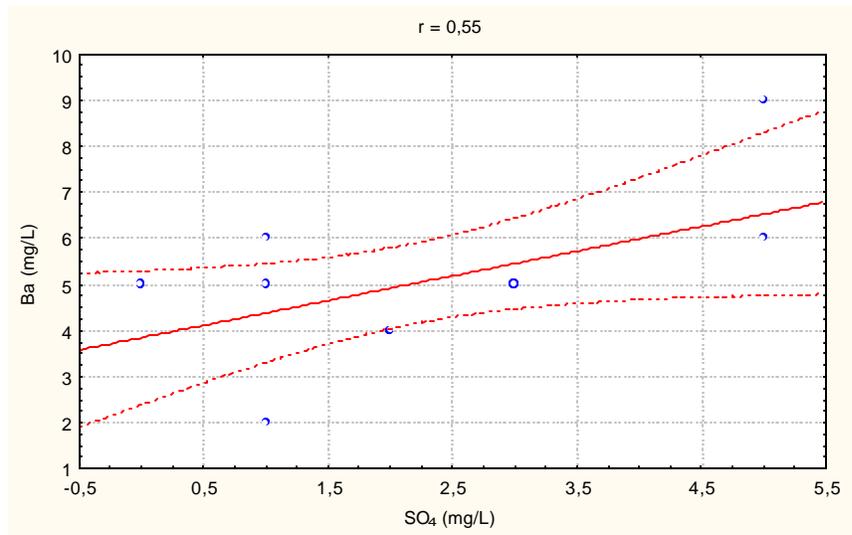


Figura 5.36 – Curva de correlação entre o SO₄ e Ba para as águas subterrâneas do Barreiro coletadas no período de 16 a 19/02/2000.

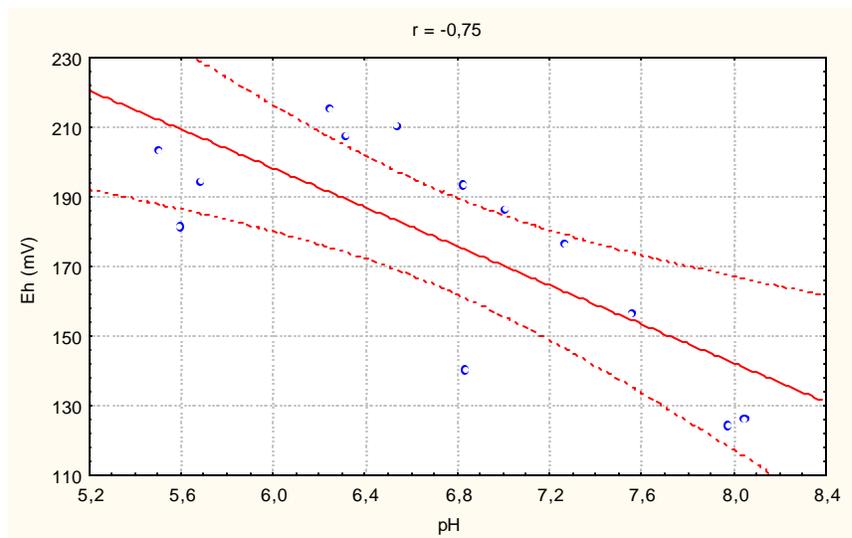


Figura 5.37 – Curva de correlação entre o pH e Eh para as águas subterrâneas do Barreiro coletadas no período de 16 a 19/02/2000.

Para o período seco foi encontrada uma correlação significativa entre K e SO₄ (Figura 5.38), bem como uma tendência de correlação inversa entre o Eh e o pH ($r=-0,55$), que não é estatisticamente significativa, porém, está de acordo com a tendência verificada no diagrama Eh-pH (Figura 5.35), que indica ocorrer uma maior dispersão dos pontos em relação ao período chuvoso (Figura 5.34).

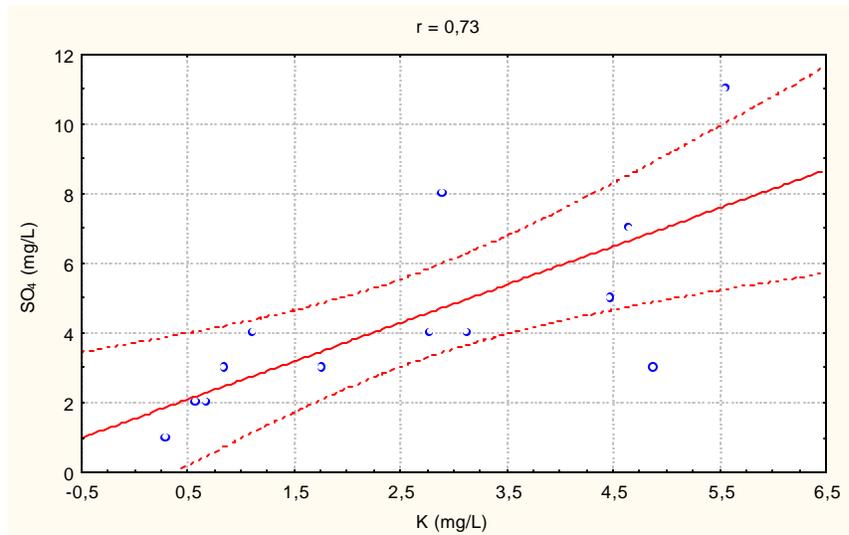


Figura 5.38 – Curva de correlação entre o K e SO₄ para as águas subterrâneas do Barreiro coletadas no período de 12 a 16/09/2000.

Pelo fato do aquífero estar sujeito a mudanças significativas de comportamento em pequenas áreas e períodos curtos de tempo (mensal, ou mesmo semanal) devido às alterações provocadas pelas minerações de fosfato no fluxo d'água e no nível piezométrico, e também do avanço e da retração da pluma de contaminação existente na parte Leste da área, como verificado por BEATO et al. (2000); é difícil classificar o aquífero quanto à predominância de um ou outro elemento, ou quanto a um comportamento hidroquímico específico.

6. Relações radiométricas

6.1. ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas superficiais

Na Tabela 6.1 estão relacionados os valores obtidos para as análises de ^{226}Ra nas águas superficiais das duas etapas de campo.

Tabela 6.1 – Atividade de ^{226}Ra dissolvido nas águas superficiais do Barreiro nas duas etapas de coleta.

Amostra	Coleta 1 (16 a 19/02/2000)			Coleta 2 (12 a 16/09/2000)		
	Atividade (pCi)	Volume (L)	Ativ./Vol. (pCi/L)	Atividade (pCi)	Volume (L)	Ativ./Vol. (pCi/L)
1sp	113,47 ± 3,74	4,3	26,4 ± 0,9	137,02 ± 5,80	4,0	34,3 ± 1,5
2sp	23,22 ± 1,51	3,8	6,1 ± 0,4	67,93 ± 2,83	4,0	17,0 ± 0,7
3sp	79,06 ± 2,86	4,0	19,8 ± 0,7	24,66 ± 1,41	4,0	6,2 ± 0,4
4sp	113,74 ± 6,51	4,0	28,4 ± 1,6	46,79 ± 1,73	1,0	46,8 ± 1,7
5sp	10,10 ± 0,70	4,0	2,5 ± 0,2	41,80 ± 2,06	4,0	10,5 ± 0,5
6sp	66,31 ± 3,97	4,0	16,6 ± 1,0	29,87 ± 1,57	3,9	7,7 ± 0,4
7sp	160,05 ± 6,04	4,0	40,0 ± 1,5	11,12 ± 0,83	4,0	2,8 ± 0,2
8sp	180,57 ± 9,35	4,0	45,1 ± 2,3	231,63 ± 8,82	3,6	64,3 ± 2,5
9sp	97,86 ± 4,66	4,0	24,5 ± 1,2	26,43 ± 1,12	4,0	6,6 ± 0,3
10sp	66,15 ± 3,01	4,0	16,5 ± 0,8	58,81 ± 2,71	3,7	15,9 ± 0,7
11sp	104,53 ± 6,13	4,0	26,1 ± 1,5	34,60 ± 1,54	4,0	8,7 ± 0,4
12sp	224,08 ± 11,41	4,0	56,0 ± 2,9	38,31 ± 1,92	1,0	38,3 ± 1,9

Considerando a mesma nomenclatura utilizada no capítulo 5 verifica-se que para o grupo 1 ocorre uma variação da atividade de ^{226}Ra entre 6,1 e 45,1 pCi/L (média de 25,1 pCi/L) para a primeira etapa de campo e de 2,8 a 64,3 pCi/L (média de 19,4 pCi/L) para a segunda etapa de campo. A Figura 6.1 mostra que os valores são muito variáveis entre as duas etapas de campo, tendo o ponto 8sp registrado um aumento significativo na segunda etapa de campo, também verificado para essas águas relativamente ao Ba e PO_4 (Tabela 5.6). Já o ponto 7sp apresentou uma diminuição significativa na atividade de ^{226}Ra para a segunda etapa de campo, provavelmente associada a um maior volume de água proveniente do dique da mina de fosfato (ponto 9sp).

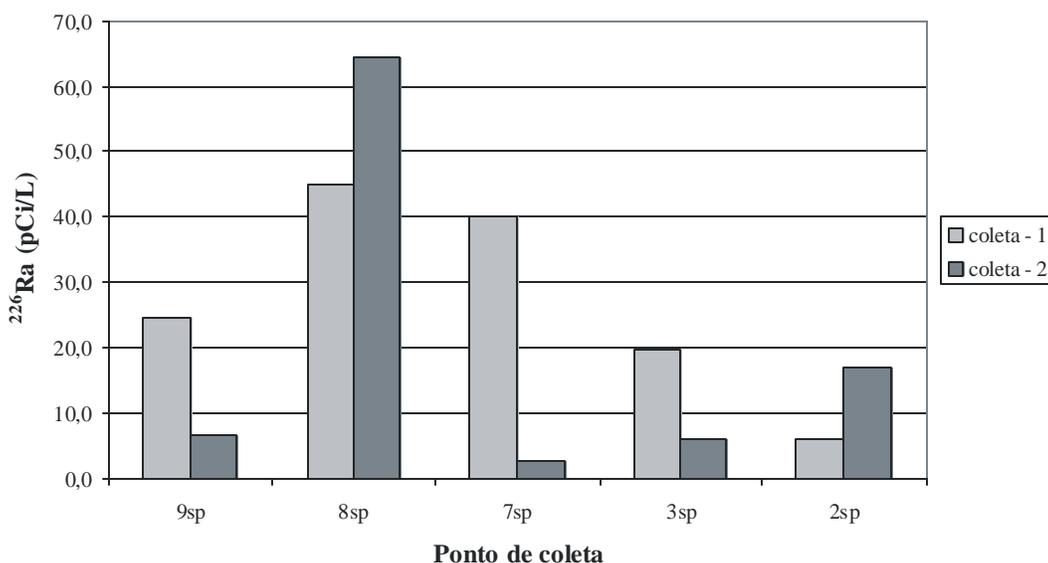


Figura 6.1 – Atividade de ^{226}Ra dissolvido nas águas superficiais do grupo 1 amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

Para o grupo 2 obteve-se uma variação da atividade de ^{226}Ra entre 16,5 e 56,0 pCi/L (média de 28,7 pCi/L) para a primeira etapa de campo e de 7,7 a 46,8 pCi/L (média de 23,5 pCi/L) para a segunda etapa de campo. A Figura 6.2 mostra que os maiores valores estão nos extremos da drenagem, isto é, pontos 12sp e 4sp, nos quais também se observa um aumento de Cl (Tabelas 5.5 e 5.6), que pode estar influenciando na solubilização do Ra. Além disso, o ponto 12sp está numa região de cobertura laterítica

preservada e tem, a montante de sua nascente, rejeitos retirados da mina de fosfato, que podem estar contribuindo para elevar a atividade de ^{226}Ra nas águas.

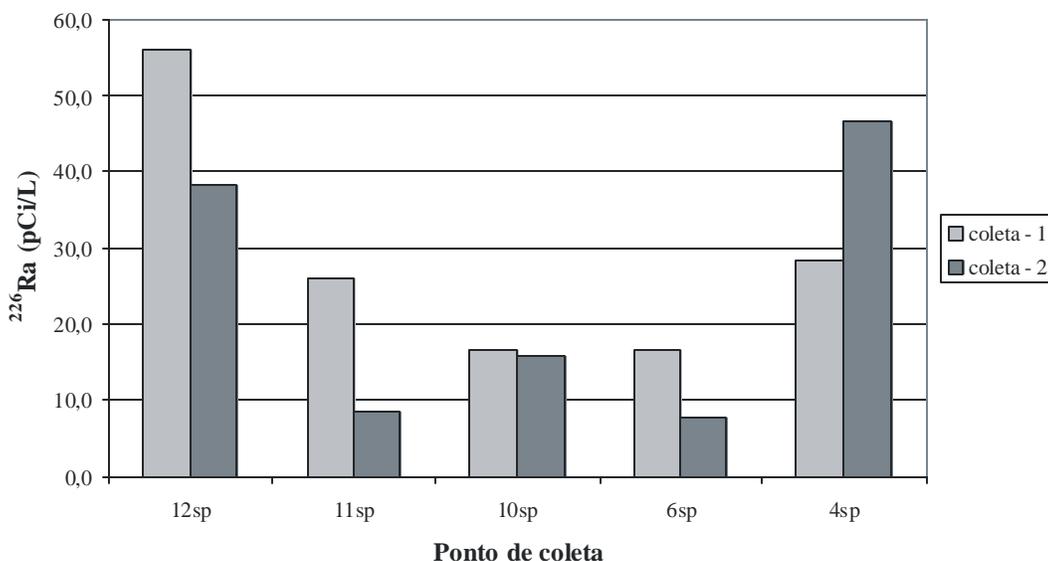


Figura 6.2 - Atividade de ^{226}Ra dissolvido nas águas superficiais do grupo 2 amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

Na Tabela 6.2 estão relacionados os valores obtidos para a atividade de ^{228}Ra nas águas superficiais das duas etapas de campo.

Para o grupo 1 obteve-se uma variação da atividade de ^{228}Ra entre 3,9 e 6,8 pCi/L (média de 5,1 pCi/L) para a primeira etapa de campo e de 2,5 a 6,0 pCi/L (média de 4,5 pCi/L) para a segunda etapa. A Figura 6.3 mostra que ocorre uma pequena variação na atividade de ^{228}Ra para as duas etapas de campo, a redução mais significativa verificando-se para o ponto 3sp.

Para o grupo 2 ocorreu uma variação da atividade de ^{228}Ra entre 1,5 e 9,8 pCi/L (média de 3,7 pCi/L) para a primeira etapa de campo e de 1,3 a 4,0 pCi/L (média de 2,0 pCi/L) para a segunda etapa. A Figura 6.4 mostra que os maiores valores para a atividade de ^{228}Ra também estão nos extremos da drenagem, ou seja, pontos 12sp e 4sp, similarmente ao verificado para ^{226}Ra . Para o ponto 12sp, a elevação na atividade de ^{228}Ra também pode ser atribuída à presença dos rejeitos da mina de fosfato.

Tabela 6.2 – Atividade de ^{228}Ra dissolvido nas águas superficiais do Barreiro nas duas etapas de coleta.

Coleta 1 (16 a 19/02/2000)				Coleta 2 (12 a 16/09/2000)		
Amostra	Atividade (pCi)	Volume (L)	Ativ./Vol. (pCi/L)	Atividade (pCi)	Volume (L)	Ativ./Vol. (pCi/L)
1sp	543,5 ± 29,7	10,2	53,3 ± 2,9	33,5 ± 5,3	10,2	3,3 ± 0,5
2sp	46,8 ± 6,3	10	4,7 ± 0,6	61,5 ± 6,1	10,2	6,0 ± 0,6
3sp	60,5 ± 11,8	10,3	5,9 ± 1,2	24,7 ± 2,2	9,85	2,5 ± 0,2
4sp	95,5 ± 17,2	9,7	9,8 ± 1,8	44,3 ± 7,4	11,2	4,0 ± 0,7
5sp	58,0 ± 6,1	9,4	6,2 ± 0,7	72,2 ± 8,6	10,9	6,6 ± 0,8
6sp	16,2 ± 3,3	10,8	1,5 ± 0,3	15,8 ± 2,2	10	1,6 ± 0,2
7sp	42,3 ± 6,3	10	4,2 ± 0,6	57,0 ± 3,9	10,5	5,3 ± 0,4
8sp	67,8 ± 5,3	10	6,8 ± 0,5	49,3 ± 8,5	10	4,9 ± 0,9
9sp	40,4 ± 4,5	10,4	3,9 ± 0,4	40,8 ± 5,4	10,4	3,9 ± 0,5
10sp	18,9 ± 2,2	10,8	1,8 ± 0,2	13,3 ± 1,5	10,5	1,3 ± 0,1
11sp	19,2 ± 2,5	11,3	1,7 ± 0,2	14,0 ± 2,0	10,2	1,4 ± 0,2
12sp	42,5 ± 3,3	9,7	4,4 ± 0,3	17,1 ± 3,5	10	1,7 ± 0,4

Obteve-se para o ponto 1sp o valor de 53,3 pCi/L para a atividade de ^{228}Ra nas águas superficiais, para a primeira etapa de campo, o qual é superior aos demais. Como o mesmo não ocorre para a atividade de ^{226}Ra , é possível ter havido a passagem de material particulado pelo filtro, o que justificaria o valor anômalo encontrado.

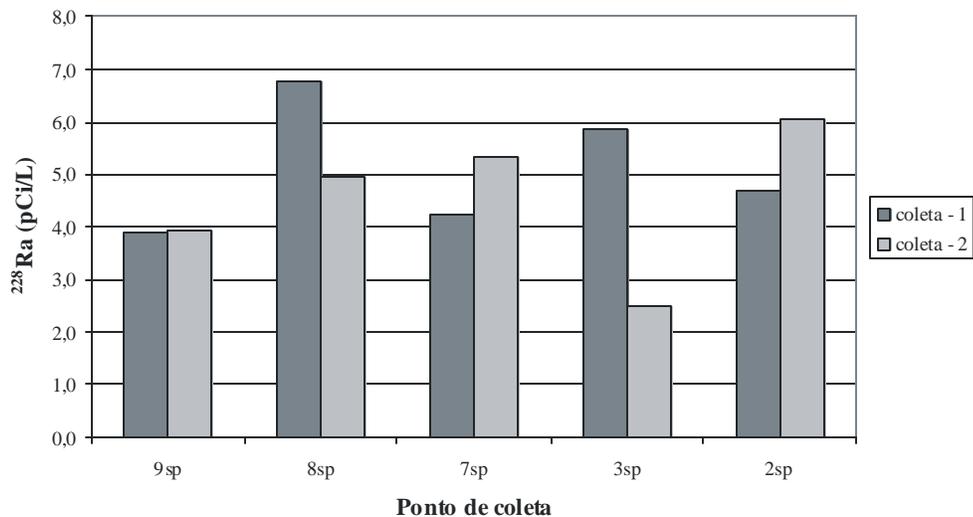


Figura 6.3 - Atividade de ^{228}Ra dissolvido nas águas superficiais do grupo 1 amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

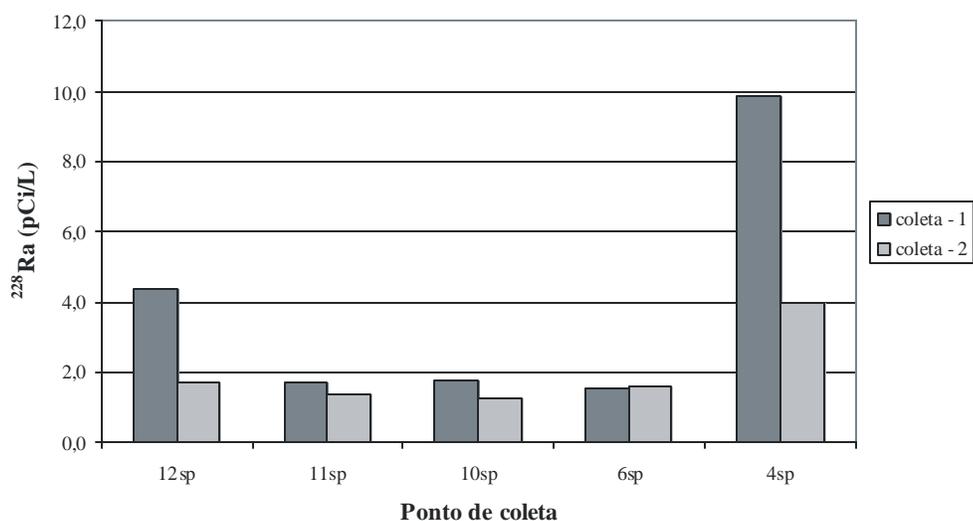


Figura 6.4 - Atividade de ^{228}Ra dissolvido nas águas superficiais do grupo 2 amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

As águas analisadas não são utilizadas para o consumo humano, de maneira que é sem importância a comparação com os limites estabelecidos pelo Ministério da Saúde do Brasil para a radioatividade alfa e beta total.

Testes estatísticos de correlação foram efetuados entre a atividade de ^{226}Ra e demais parâmetros analisados. Para o grupo 1 não foram encontradas correlações significativas para a primeira etapa de campo, porém, para a segunda, foram encontradas correlações significativas entre a atividade de ^{226}Ra e teores de Ba e NO_3 (Figuras 6.5 e 6.6). Para o grupo 2, também não foram encontradas correlações significativas para a primeira etapa de campo, porém, uma correlação significativa entre a atividade de ^{226}Ra e a sílica foi determinada para a segunda etapa de campo (Figura 6.7), mostrando mais uma vez o comportamento diferenciado entre as drenagens.

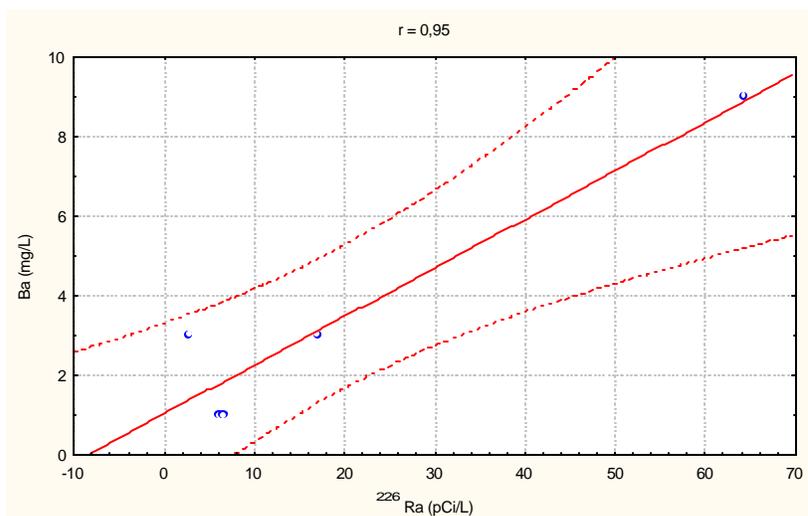


Figura 6.5 – Correlação entre a atividade de ^{226}Ra e Ba dissolvidos nas águas superficiais do grupo 1 coletadas no período de 12 a 16/09/2000.

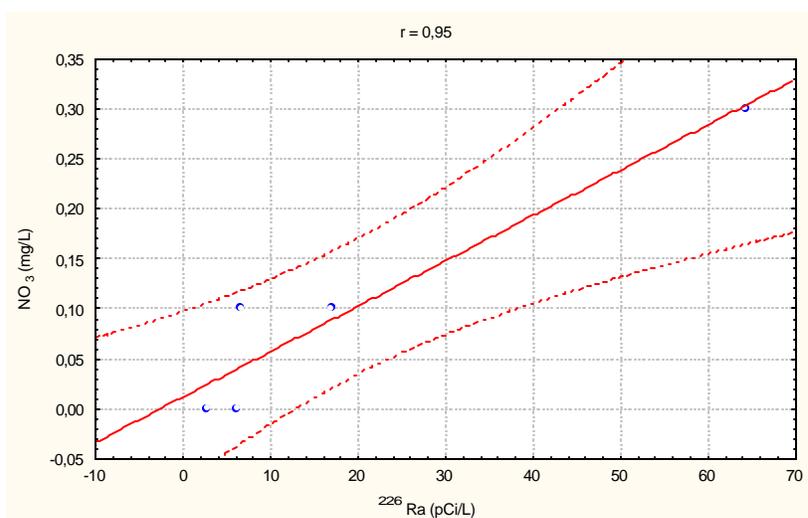


Figura 6.6 – Correlação entre a atividade de ^{226}Ra e NO_3 dissolvidos nas águas superficiais do grupo 1 coletadas no período de 12 a 16/09/2000.

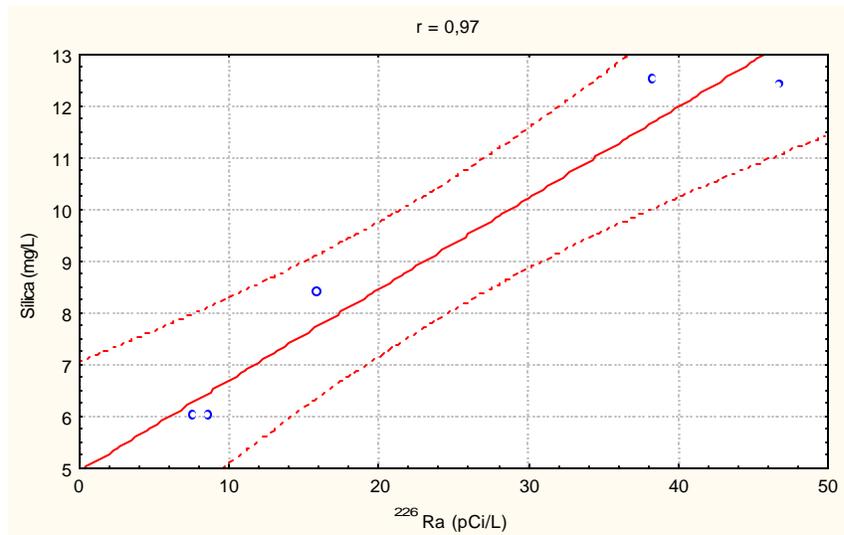


Figura 6.7 – Correlação entre a atividade de ^{226}Ra e sílica dissolvidos nas águas superficiais do grupo 2 coletadas no período de 12 a 16/09/2000.

Para a atividade de ^{228}Ra também foi realizada uma análise estatística de correlação envolvendo os demais parâmetros analisados. Para o grupo 1 nenhuma correlação significativa foi encontrada para as duas etapas de campo, porém, para o grupo 2 foram encontradas correlações significativas entre a atividade de ^{228}Ra e teores de Cl e sílica (Figuras 6.8 e 6.9) para a primeira etapa de campo e entre a atividade de ^{228}Ra e o Cl e o Na para a segunda etapa de campo (Figuras 6.10 e 6.11).

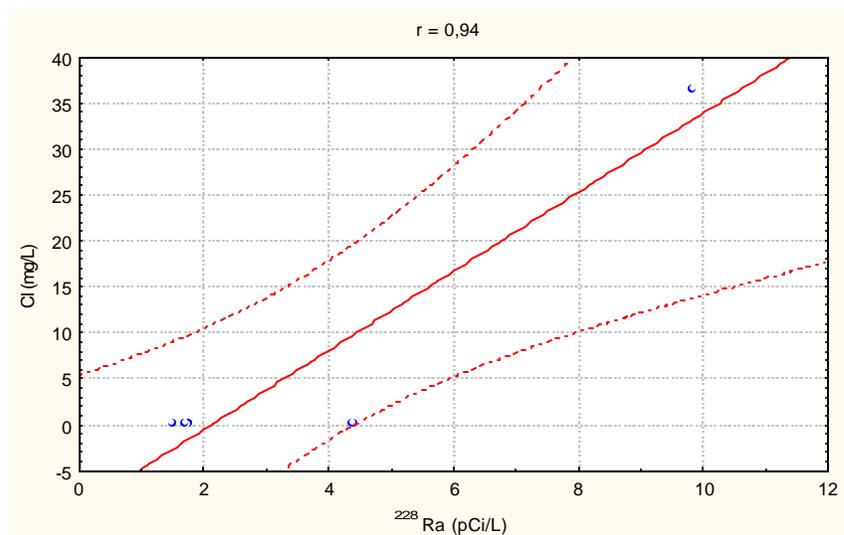


Figura 6.8 – Correlação entre a atividade de ^{228}Ra e Cl dissolvido nas águas superficiais do grupo 2 coletadas no período de 16 a 19/02/2000.

Tem-se, assim, que o Cl pode estar mantendo o ^{228}Ra em solução para a drenagem do grupo 2, mostrando-se diferenciado o comportamento das drenagens também quanto ao ^{228}Ra .

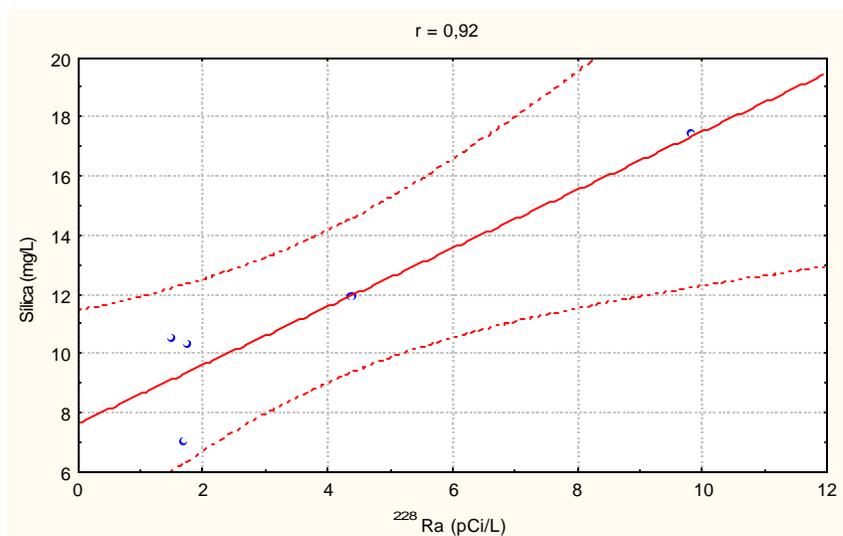


Figura 6.9 –Correlação entre a atividade de ^{228}Ra e sílica dissolvida nas águas superficiais do grupo 2 coletadas no período de 16 a 19/02/2000.

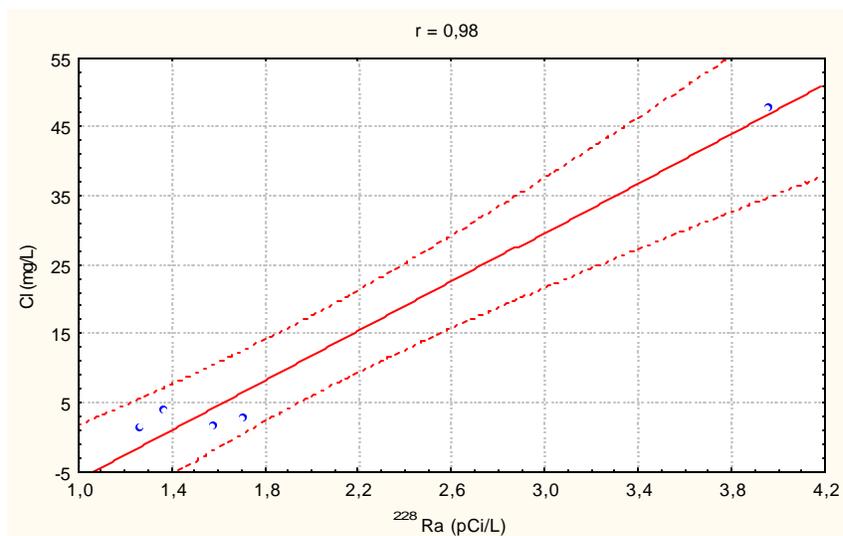


Figura 6.10 – Correlação entre a atividade de ^{228}Ra e Cl dissolvido nas águas superficiais do grupo 2 coletadas no período de 12 a 16/09/2000.

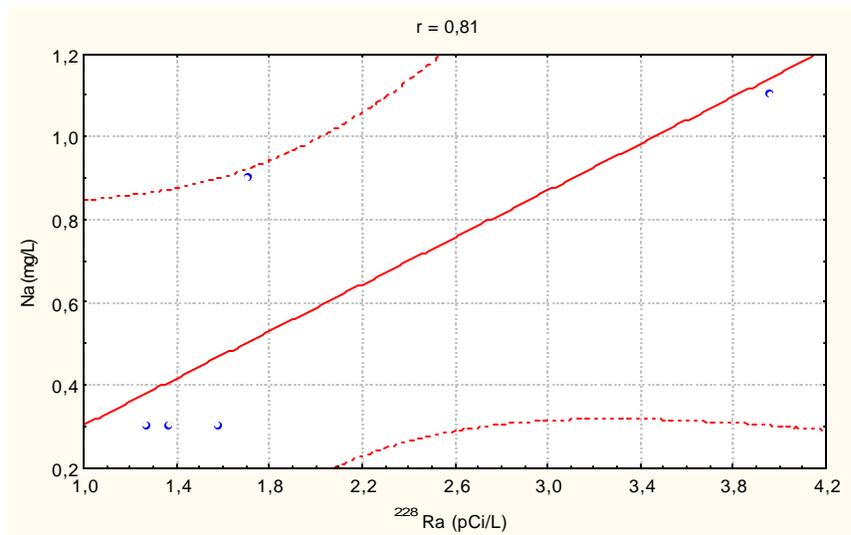


Figura 6.11 – Correlação entre a atividade de ^{228}Ra e Na dissolvidos nas águas superficiais do grupo 2, coletadas no período de 12 a 16/09/2000.

6.2. ^{226}Ra e ^{228}Ra nas Águas subterrâneas

Na Tabela 6.3 estão relacionados os valores obtidos para as análises de ^{226}Ra nas águas subterrâneas das duas etapas de campo.

Da mesma forma que capítulo 5, os pontos 1sb e 2sb serão considerados separadamente. O ponto 1sb possui atividade de ^{226}Ra igual a 15,6 pCi/L para a primeira etapa de campo e não atingiu o nível mínimo de detecção para a segunda etapa de campo (Figura 6.12), o que possivelmente pode ser atribuído a uma variação sazonal. O ponto 2sb quanto ao ^{226}Ra denota ser uma mistura de águas de dois aquíferos, como observado no capítulo 5 para as relações hidroquímicas.

Para os pontos coletados no aquífero granular os valores para a atividade de ^{226}Ra variaram de 5,4 a 35,6 pCi/L (média de 16,3 pCi/L) para a primeira etapa de campo e de 1,3 a 67,5 pCi/L (média de 22,9 pCi/L) para a segunda etapa. Verifica-se que o aquífero não tem um padrão sistemático de variação de atividade de ^{226}Ra , como também observado para o nível d'água, estando sujeito à influência das quatro barragens existentes na área.

Tabela 6.3 – Atividade de ^{226}Ra dissolvido nas águas subterrâneas do Barreiro nas duas etapas de coleta.

Amostra	Coleta 1 (16 a 19/02/2000)			Coleta 2 (12 a 16/09/2000)		
	Atividade (pCi)	Volume (L)	Ativ./Vol. (pCi/L)	Atividade (pCi)	Volume (L)	Ativ./Vol. (pCi/L)
1sb	58,91 ± 2,98	3,7	15,9 ± 0,8	—	4,0	—
2sb	47,78 ± 2,88	3,8	12,6 ± 0,8	8,50 ± 0,74	4,0	2,1 ± 0,2
3sb	58,66 ± 3,54	4,0	14,7 ± 0,9	98,30 ± 4,84	3,7	26,6 ± 1,3
4sb	141,87 ± 5,59	4,0	35,5 ± 1,4	45,98 ± 1,74	3,7	12,4 ± 0,5
5sb	56,23 ± 2,54	4,0	14,1 ± 0,6	202,43 ± 8,37	4,0	50,6 ± 2,1
6sb	60,10 ± 3,86	4,0	15,0 ± 1,0	42,84 ± 2,40	4,0	10,7 ± 0,6
7sb	37,92 ± 1,42	4,0	9,5 ± 0,4	5,19 ± 0,86	4,0	1,3 ± 0,2
8sb	99,46 ± 4,19	4,0	24,9 ± 1,0	—	—	—
9sb	28,84 ± 1,73	3,8	7,6 ± 0,5	13,22 ± 0,84	3,8	3,5 ± 0,2
10sb	37,78 ± 1,98	4,0	9,4 ± 0,5	77,64 ± 3,55	3,6	21,6 ± 1,0
11sb	21,63 ± 0,97	4,0	5,4 ± 0,2	186,75 ± 6,62	3,8	49,1 ± 1,7
12sb	115,80 ± 6,52	4,0	28,9 ± 1,6	—	—	—
13sb	—	—	—	263,08 ± 11,44	3,9	67,5 ± 2,9
14sb	36,51 ± 1,91	3,8	9,6 ± 0,5	39,70 ± 1,51	3,8	10,5 ± 0,4
15sb	76,21 ± 4,17	4,0	19,1 ± 1,0	64,38 ± 1,97	4,0	16,1 ± 0,5
16sb	—	—	—	56,81 ± 2,05	3,3	17,2 ± 0,6
17sb	66,48 ± 3,84	3,6	18,5 ± 1,1	44,77 ± 2,32	4,0	11,2 ± 0,6

— não analisado.

A Figura 6.12 mostra a atividade de ^{226}Ra nas águas subterrâneas das duas etapas de campo.

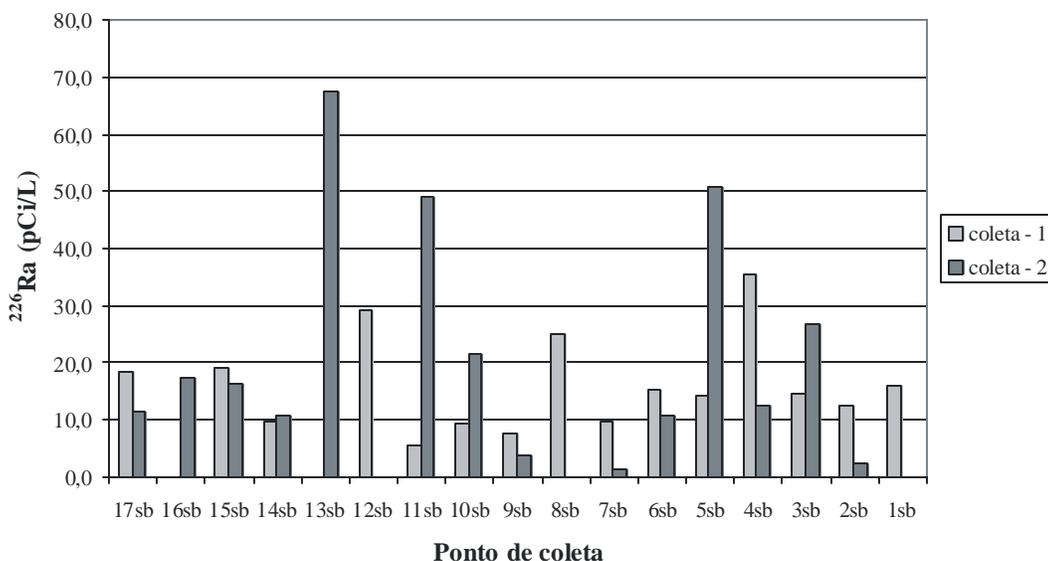


Figura 6.12 – Atividade de ^{226}Ra dissolvido nas águas subterrâneas do Barreiro amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2)

A diferença na amplitude de variação da atividade de ^{226}Ra pode ser visualizada na Figura 6.12, sendo menor para a primeira etapa de campo em relação à segunda, o que pode ser atribuído a um maior volume de água no período chuvoso, responsável pela lixiviação do ^{226}Ra , que poderia aumentar em alguns pontos a sua atividade ou, então, ocasionar uma diminuição em outros pontos devido à diluição.

Na Figura 3.8 nota-se que os pontos 15sb, 16sb e 17sb estão localizados na porção Sul e Oeste do Barreiro, na parte mais a montante do aquífero. Mesmo não tendo um valor para a atividade de ^{226}Ra para o ponto 16sb na primeira etapa de campo, acredita-se que o comportamento do ^{226}Ra para esses três pontos está relacionado com os períodos de chuva e seca, ocorrendo as maiores atividades no período chuvoso (Figura 6.12).

Os demais pontos estão localizados no Parque das Águas e no Parque das Ruínas do Hotel Rádio. Tomando-se a Fonte Dona Beija como referência (Figura 3.8), a Oeste estão os pontos 3sb, 7sb, 8sb, 9sb e 14sb e a Leste os pontos 4sb, 5sb, 10sb, 11sb, 12sb e 13sb. Os pontos a Leste da Fonte Dona Beija provavelmente estão

sendo influenciados pelas águas provenientes da parte mais a Leste do aquífero, onde, infelizmente, não foi possível realizar a coleta de água subterrânea.

Os pontos 4sb e 5sb apresentam um comportamento diferenciado para as duas etapas de campo (Figura 6.12). Na primeira verifica-se uma maior atividade de ^{226}Ra para o ponto 4sb em relação ao ponto 5sb, situação que se encontra invertida para a segunda etapa de campo. Observa-se, também, que a atividade de ^{226}Ra para o ponto 4sb diminui para a segunda etapa de campo, enquanto aumenta para o ponto 5sb. Esses dois pontos fazem parte de um conjunto de 4 poços de monitoramento, sendo o ponto 4sb o mais profundo. A variação na atividade de ^{226}Ra para esses pontos pode ter relação com a profundidade do aquífero, podendo o ponto 5sb, que é menos profundo estar sofrendo a influência dos pontos 11sb e 13sb, mais a montante.

Os pontos 13sb, 11sb e 10sb aparentemente exibem um mesmo padrão de comportamento, apesar da falta de amostras do ponto 13sb na primeira etapa de campo. As maiores atividades de ^{226}Ra ocorrem na segunda etapa de campo (Figura 6.12), sendo provável que estes pontos estejam relacionados entre si por uma linha de fluxo do aquífero como mostra a Figura 3.5.

Os pontos 12sb, 8sb e 7sb estão praticamente alinhados na direção Norte-Sul, situando-se o ponto 7sb ao lado da Fonte Dona Beija. Os pontos 12sb e 8sb estavam secos na segunda etapa de campo, acreditando-se que seu comportamento para a atividade de ^{226}Ra seja o mesmo que para o ponto 7sb, isto é, a atividade diminui para a segunda etapa (Figura 6.12), por estarem alinhados entre si e representarem, também, uma linha de fluxo do aquífero como mostra a Figura 3.5.

Para os pontos 14sb, 9sb e 3sb que ficam a Oeste da Fonte Dona Beija, verifica-se um comportamento irregular para a atividade de ^{226}Ra . É provável que esses pontos estejam sofrendo influência das Barragens E e F, e, no caso do ponto 14sb, uma influência adicional ocorre por sua localização no aterro construído atrás das ruínas do Hotel Rádio, que tem sua maior extensão na direção Leste-Oeste (Figura 3.5). Isto também ocorre para o ponto 13sb os dois se mostrando bem diferentes quanto ao valor encontrado para a atividade de ^{226}Ra , acreditando-se que o material utilizado para o aterro consistiu nos rejeitos da mineração de fosfato (Figura 3.8). Este aterro pode estar atuando como um diferenciador na atividade de ^{226}Ra , seja liberando ou retendo o nuclídeo através de processos físicos ou químicos.

A Fonte Dona Beija, representada pelo ponto 6sb, é um ponto onde ocorre a descarga do aquífero, sendo a atividade de ^{226}Ra maior na primeira etapa de

campo (Figura 6.12). As águas nesse ponto possivelmente provêm da parte mais a Leste e do ponto 7sb.

Na Tabela 6.4 estão relacionados os valores obtidos para a atividade de ^{228}Ra nas águas subterrâneas das duas etapas de campo, enquanto a Figura 6.13 mostra a variabilidade encontrada.

A atividade de ^{228}Ra no ponto 1sb exibe um padrão similar ao da atividade de ^{226}Ra , o maior valor sendo encontrado no período chuvoso e o menor no período seco, também sugerindo uma variabilidade sazonal do aquífero, relativamente ao ^{228}Ra . Novamente o ponto 2sb exibe comportamento intermediário, sofrendo a influência das águas dos dois aquíferos, às vezes com a predominância de um deles.

Para o aquífero granular, a atividade de ^{228}Ra variou de 1,2 a 4,7 pCi/L (média de 2,4 pCi/L) para a primeira etapa de campo e de 0,9 a 4,2 pCi/L (média de 2,6 pCi/L) para a segunda. Praticamente não há diferença entre as médias do período chuvoso e do período seco, bem como diferença significativa na amplitude de variação da atividade de ^{228}Ra . Não há também um comportamento sistemático de variação em relação aos períodos seco e de chuva (Figura 6.13), de maneira que a atividade de ^{228}Ra aumenta para alguns pontos e diminui para outros, não sendo possível definir um padrão de comportamento em relação à sazonalidade.

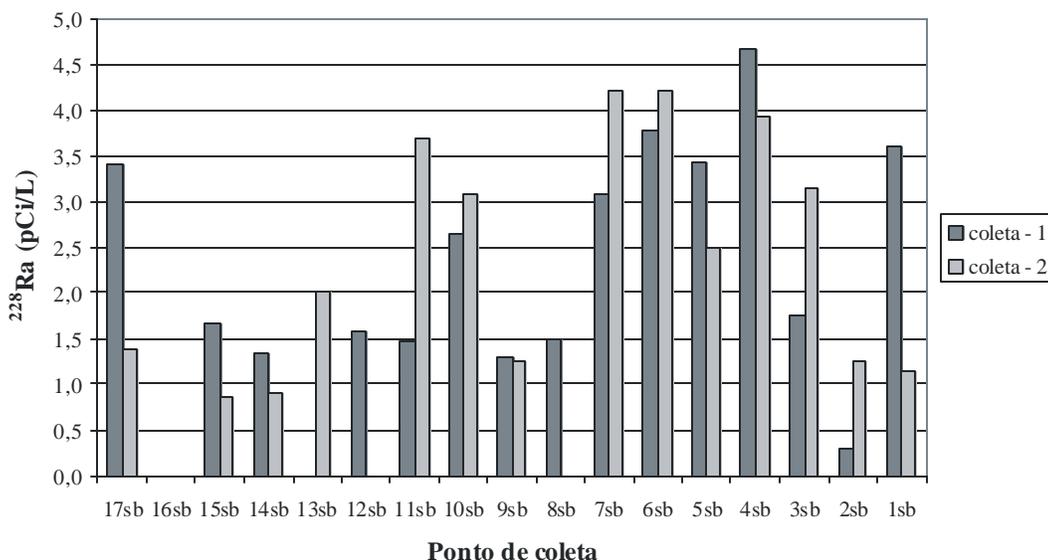


Figura 6.13 – Atividade de ^{228}Ra dissolvido nas águas subterrâneas do Barreiro amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

Tabela 6.4. – Atividade de ^{228}Ra dissolvido nas águas subterrâneas do Barreiro nas duas etapas de coleta.

Coleta 1 (16 a 19/02/2000)				Coleta 2 (12 a 16/09/2000)		
Amostra	Atividade (pCi)	Volume (L)	Ativ./Vol. (pCi/L)	Atividade (pCi)	Volume (L)	Ativ./Vol. (pCi/L)
1sb	36,0 ± 3,5	10	3,6 ± 0,4	12,0 ± 1,6	10,5	1,1 ± 0,2
2sb	3,3 ± 0,6	11,2	0,3 ± 0,1	12,6 ± 0,4	10,2	1,2 ± 0,1
3sb	18,2 ± 2,0	10,4	1,8 ± 0,2	31,4 ± 3,9	10	3,1 ± 0,4
4sb	45,3 ± 4,2	9,7	4,7 ± 0,4	41,4 ± 2,9	10,5	3,9 ± 0,3
5sb	35,7 ± 3,9	10,4	3,4 ± 0,4	26,0 ± 5,1	10,5	2,5 ± 0,5
6sb	40,5 ± 3,4	10,7	3,8 ± 0,3	41,0 ± 3,6	9,75	4,2 ± 0,4
7sb	30,8 ± 4,5	10	3,1 ± 0,5	42,2 ± 3,0	10	4,2 ± 0,3
8sb	14,5 ± 1,7	9,7	1,5 ± 0,2	—	—	—
9sb	13,8 ± 1,2	10,7	1,3 ± 0,1	12,0 ± 1,6	9,5	1,3 ± 0,2
10sb	26,4 ± 2,5	10	2,6 ± 0,3	29,2 ± 5,6	9,5	3,1 ± 0,6
11sb	15,5 ± 1,9	10,5	1,5 ± 0,2	36,9 ± 2,7	10	3,7 ± 0,3
12sb	17,1 ± 2,4	10,9	1,6 ± 0,2	—	—	—
13sb	—	—	—	20,6 ± 2,5	10,3	2,0 ± 0,2
14sb	14,0 ± 1,6	10,5	1,3 ± 0,2	9,0 ± 0,8	10	0,9 ± 0,1
15sb	16,9 ± 3,1	10,2	1,7 ± 0,3	8,7 ± 1,9	10	0,9 ± 0,2
16sb	—	—	—	—	—	—
17sb	35,8 ± 3,0	10,5	3,4 ± 0,3	14,4 ± 1,5	10,5	1,4 ± 0,1

— não analisado.

A variação da atividade de ^{228}Ra nos pontos 17sb e 15sb (o ponto 16sb não foi analisado para este radionuclídeo) é similar à da atividade de ^{226}Ra , o maior valor tendo sido encontrado para o período chuvoso (Figura 6.13).

A atividade de ^{228}Ra nos pontos 4sb e 5sb é maior no período chuvoso do que no seco. Para o ponto 4sb, que é o mais profundo, a atividade de ^{228}Ra é

maior que no ponto 5sb nas duas etapas de campo, o que indica uma variação em profundidade na atividade de ^{228}Ra , que é mais clara daquela observada para a atividade de ^{226}Ra (Figura 6.13).

A atividade de ^{228}Ra nos pontos 13sb, 11sb e 10sb aumentou no período seco, similarmente ao verificado para a atividade de ^{226}Ra , sendo que para a primeira etapa de campo o ponto 10sb registrou o maior valor, para a segunda o maior valor foi registrado para o ponto 11sb (Figura 6.13), talvez devido à influência das águas provenientes do lado Leste.

Para os pontos 12sb e 8sb, a atividade de ^{228}Ra não foi determinada para a segunda etapa de campo, pois, os poços estavam secos; para a primeira etapa o valor encontrado foi praticamente o mesmo (Figura 6.13). Não foi possível determinar uma variação sazonal na atividade para os dois pontos, talvez pela influência do ponto 7sb que está na mesma direção (Norte-Sul) o que também parece acontecer com a atividade de ^{226}Ra .

A atividade de ^{228}Ra nos pontos 14sb, 9sb e 3sb varia de maneira irregular da mesma forma que a atividade de ^{226}Ra . É provável que neste caso também ocorra a interferência das barragens E e F, principalmente no ponto 9sb, que praticamente não mostrou alteração no valor da atividade de ^{228}Ra (Figura 6.13). O aterro atrás das ruínas do hotel Rádio parece não influenciar a atividade de ^{228}Ra como verificado para a atividade de ^{226}Ra , pois, os valores encontrados para os pontos 14sb e 13sb são próximos (Figura 6.13).

Os pontos 7sb, 6sb e 3sb estão alinhados na direção Leste-Oeste, situando-se praticamente numa área de afloramento do aquífero e tendo similar variação na atividade de ^{228}Ra , com os maiores valores ocorrendo no período seco. Os pontos 7sb e 6sb têm valores próximos para as duas etapas, atribuídos à contribuição das águas do lado Leste do aquífero, que podem estar trazendo o ^{228}Ra do depósito de Terras Raras, como também já foi comentado para os pontos 11sb e 10sb (Figura 6.13).

Assim como no caso das águas superficiais, as águas subterrâneas não são empregadas para o consumo humano, tornando-se sem importância a comparação com os limites estabelecidos pelo Ministério da Saúde do Brasil para a radioatividade alfa e beta total.

Testes estatísticos de correlação foram realizados entre a atividade de ^{226}Ra , de ^{228}Ra e demais parâmetros analisados para as águas subterrâneas. Nenhuma correlação significativa foi obtida para a atividade de ^{226}Ra em qualquer das duas etapas de

campo, uma correlação significativa foi obtida para a primeira etapa de campo entre a atividade de ^{228}Ra e o elemento Cl (Figura 6.14).

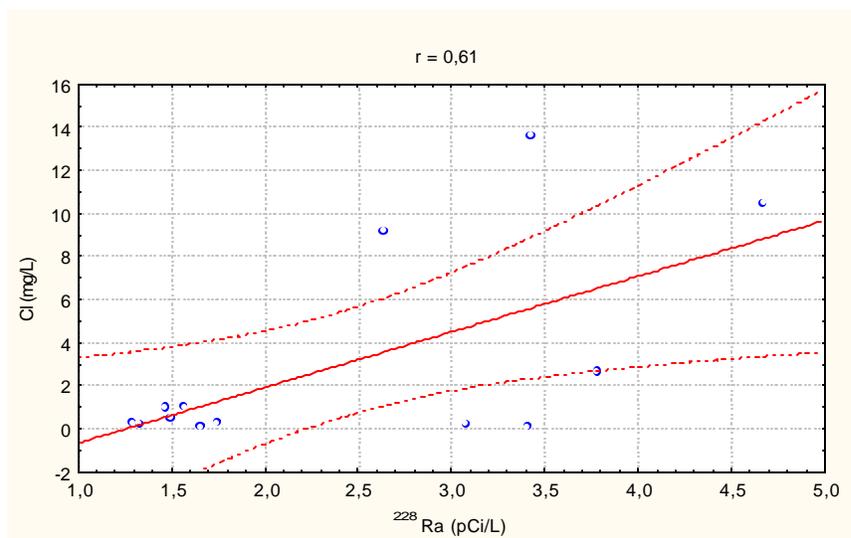


Figura 6.14. – Correlação entre atividade de ^{228}Ra e Cl dissolvidos nas águas subterrâneas do Barreiro coletadas de 16 a 19/02/2000.

6.3. ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sólidos em suspensão das águas superficiais

Na Tabela 6.5 constam os valores determinados para atividade de ^{226}Ra nos sólidos em suspensão provenientes das águas superficiais coletadas no Barreiro.

A Figura 6.15 mostra a variação dos valores obtidos para as amostras do grupo 1, que foi de 70 a 922 pCi/g (média de 454 pCi/g) para a primeira etapa de campo e de 638 a 1443 pCi/g (média de 858 pCi/g) para a segunda, o que caracteriza um aumento da atividade de ^{226}Ra no período seco.

Na primeira etapa de campo, os pontos 7sp e 2sp apresentaram os menores valores para a atividade de ^{226}Ra , os quais são bastante inferiores aos encontrados para a segunda etapa e também em relação aos demais pontos (Tabela 6.5), sugerindo uma perda de radônio no processo de extração. Os pontos 9sp e 8sp apresentaram valores próximos, diminuindo a atividade de ^{226}Ra no período seco. A atividade de ^{226}Ra no ponto 3sp aumentou na segunda etapa de campo, enquanto o ponto 2sp, por receber as águas dos outros quatro pontos, tem o maior valor de atividade de ^{226}Ra (Figura 6.15).

Tabela 6.5 – Atividade de ^{226}Ra nos sólidos em suspensão das águas superficiais do Barreiro.

Amostra	Coleta 1 (16 a 19/02/2000)			Coleta 2 (12 a 16/09/2000)		
	Atividade (pCi)	massa (g)	Ativ./mas. (pCi/g)	Atividade (pCi)	massa (g)	Ativ./mas. (pCi/g)
1sp	11,41 ± 1,45	0,010	1.141 ± 146	10,24 ± 0,97	0,024	427 ± 40
2sp	1,24 ± 0,67	0,015	83 ± 45	10,10 ± 0,94	0,007	1.443 ± 135
3sp	7,88 ± 0,76	0,027	292 ± 28	6,51 ± 0,58	0,008	814 ± 72
4sp	17,90 ± 1,30	0,017	1.053 ± 77	7,41 ± 1,12	0,019	390 ± 59
5sp	7,79 ± 1,07	0,021	371 ± 51	10,48 ± 1,03	0,016	655 ± 64
6sp	6,73 ± 0,70	0,013	518 ± 54	6,51 ± 0,86	0,010	651 ± 86
7sp	1,40 ± 0,67	0,020	70 ± 33	10,00 ± 0,68	0,014	714 ± 49
8sp	10,14 ± 1,35	0,011	922 ± 123	9,52 ± 0,92	0,014	680 ± 66
9sp	9,91 ± 0,88	0,011	901 ± 80	5,10 ± 0,87	0,008	638 ± 109
10sp	—	0,019	—	22,98 ± 1,13	0,020	1.149 ± 56
11sp	13,62 ± 1,08	0,040	340 ± 27	11,56 ± 1,91	0,011	1.051 ± 173
12sp	13,27 ± 0,81	0,030	442 ± 27	17,75 ± 1,36	0,012	1.479 ± 113

— não analisado.

A Figura 6.16 mostra a variação dos valores obtidos para as amostras do grupo 2 que foi de 340 a 1.053 pCi/g (média de 588 pCi/g) para a primeira etapa de campo e de 390 a 1479 pCi/g (média de 944 pCi/g) para a segunda, o que caracteriza um aumento da atividade de ^{226}Ra para o período seco (Figura 6.16), como também observado para o grupo 1.

O ponto 10sp não foi analisado para a primeira etapa de campo, tendo um valor próximo ao determinado para o ponto 11sp na segunda etapa (Figura 6.16). O ponto 10sp recebe as águas do ponto 17sb, que também apresentou um aumento da atividade de ^{226}Ra para a segunda etapa de campo, como veremos no item 6.4. A atividade de ^{226}Ra nos pontos 12sp, 11sp e 6sp aumentou na segunda etapa de campo, o que parece

estar relacionado com um volume menor de água no período seco, responsável pela concentração do nuclídeo no material particulado (Figura 6.16).

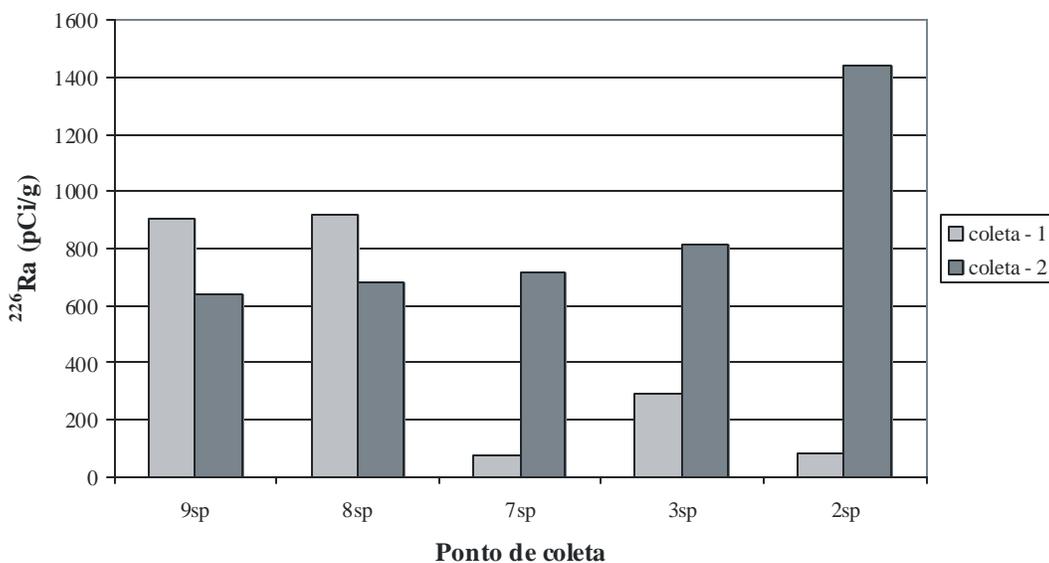


Figura 6.15 – Atividade de ^{226}Ra nos sólidos em suspensão das águas superficiais do grupo 1 amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

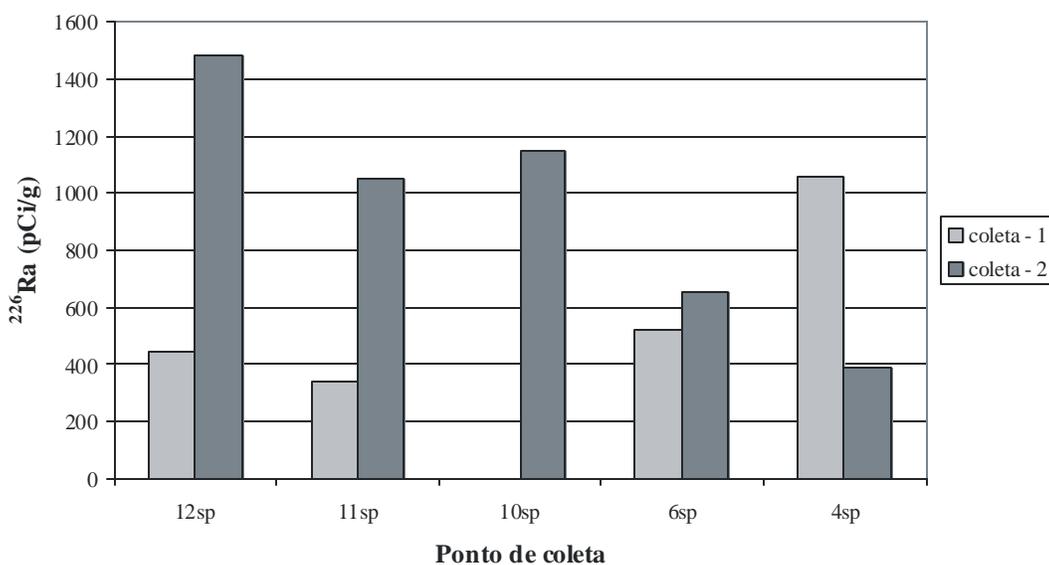


Figura 6.16 - Atividade de ^{226}Ra nos sólidos em suspensão das águas superficiais do grupo 2 amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

Para o ponto 4sp, tem-se uma diminuição da atividade de ^{226}Ra para a segunda etapa de campo, contrariando a tendência de aumento verificada para os demais pontos, pela possibilidade de estar ocorrendo a precipitação de ^{226}Ra conjuntamente com outros elementos, uma vez que as águas têm um curso calmo, sem acidentes, o que facilita a precipitação dos sedimentos. A atividade de ^{226}Ra no ponto 5sp aumentou e no ponto 1sp diminuiu na segunda etapa de campo (Tabela 6.5).

Na Tabela 6.6 constam os valores determinados para atividade de ^{228}Ra nos sólidos em suspensão provenientes das águas superficiais coletadas no Barreiro. Existem várias dificuldades para a obtenção de dados de atividade de ^{228}Ra , principalmente quando se trata de sólidos em suspensão, sendo uma delas a pouca quantidade de material disponível para análise. Para os sólidos em suspensão obtidos nas filtragens das águas superficiais do Barreiro deparou-se com este tipo de problema. Por isso, foi necessário calcular para algumas amostras o limite de detecção (CURRIE, 1968) indicado na Tabela 6.6 pelo sinal <. Além disso, pode-se notar que o erro associado a cada leitura é alto, relacionado principalmente à pequena quantidade de material disponível para análise.

A Figura 6.17 mostra a variação dos valores obtidos para as amostras do grupo 1, que foi de 643 a 3.149 pCi/g (média de 1.846 pCi/g) para a primeira etapa de campo e de 807 a 2.365 pCi/g (média de 1.480 pCi/g) para a segunda.

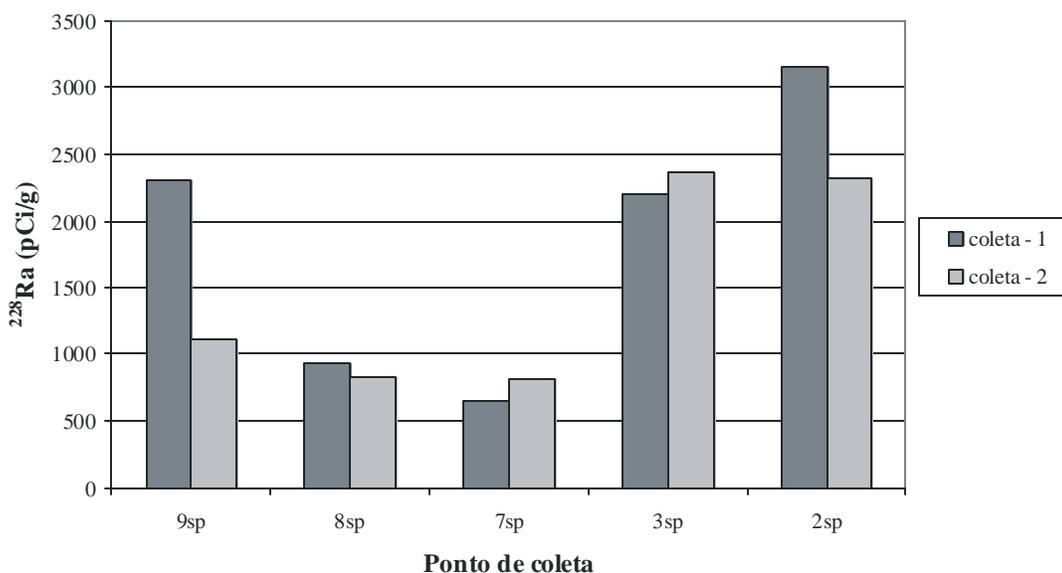


Figura 6.17 - Atividade de ^{228}Ra nos sólidos em suspensão das águas superficiais do grupo 1 amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

Tabela 6.6 – Atividade de ^{228}Ra nos sólidos em suspensão das águas superficiais do Barreiro.

Amostra	Coleta 1 (16 a 19/02/2000)		Coleta 2 (12 a 16/09/2000)	
	massa (g)	Ativ./mas. (pCi/g)	massa (g)	Ativ./mas. (pCi/g)
1sp	0,010	1.521 ± 140	0,024	614 ± 98
2sp	0,015	3.149 ± 243	0,007	< 2.308*
3sp	0,027	2.201 ± 223	0,008	< 2.365*
4sp	0,017	1.096 ± 132	0,019	707 ± 109
5sp	0,021	1.139 ± 49	0,016	< 1.120*
6sp	0,013	1.167 ± 75	0,010	2.055 ± 103
7sp	0,020	643 ± 99	0,014	807 ± 179
8sp	0,011	933 ± 151	0,014	830 ± 164
9sp	0,011	2.303 ± 82	0,008	< 1.111*
10sp	0,019	1.130 ± 99	0,020	551 ± 87
11sp	0,040	657 ± 22	0,011	1.037 ± 190
12sp	0,030	7.523 ± 361	0,012	386 ± 77

* limite de detecção determinado de acordo com CURRIE (1968).

A Figura 6.18 mostra a variação dos valores obtidos para as amostras do grupo 2, que foi de 657 a 7.523 pCi/g (média de 2.314 pCi/g) para a primeira etapa de campo e de 386 a 2.055 pCi/g (média de 947 pCi/g) para a segunda.

O ponto 12sp, para a primeira etapa de campo, apresentou o maior valor para a atividade de ^{228}Ra , devido provavelmente à maior quantidade de sedimentos e sólidos em suspensão encontrados na água na época da coleta, o que não ocorreu para a segunda etapa de campo, quando o mesmo ponto apresentou o menor valor para a atividade. A atividade de ^{228}Ra nos pontos 11sp e 6sp aumentou e nos pontos 10sp e 4sp diminuiu na segunda etapa de campo. Para o ponto 4sp, a atividade de ^{228}Ra exibiu o

mesmo padrão observado para a atividade de ^{226}Ra , reforçando a possibilidade de precipitação do nuclídeo com os sedimentos de corrente.

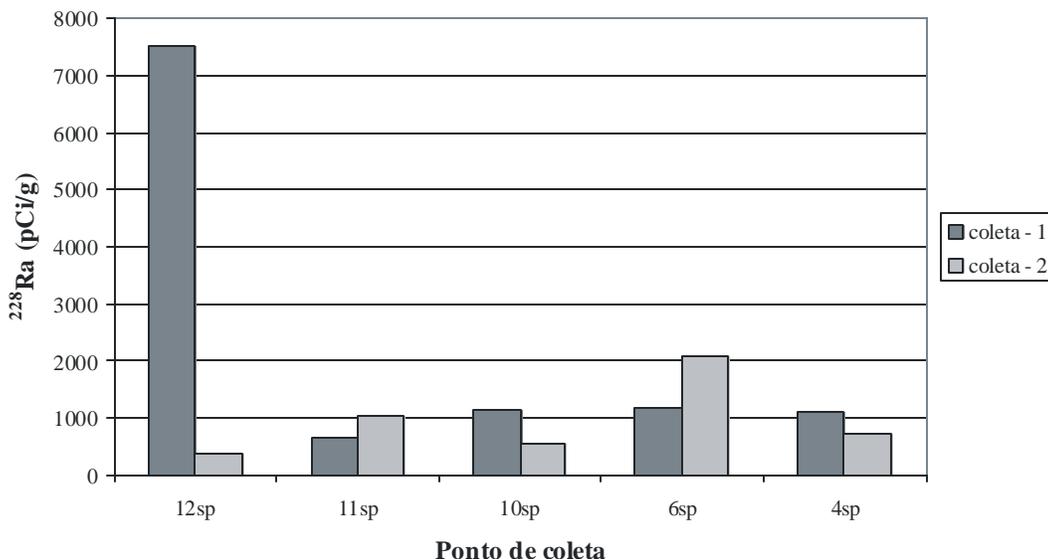


Figura 6.18 - Atividade de ^{228}Ra nos sólidos em suspensão das águas superficiais do grupo 2 amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

Para o ponto 5sp, foi necessária determinação do limite de detecção para a segunda etapa de campo, enquanto para a primeira o valor encontrado foi próximo ao determinado para o ponto 4sp (Tabela 6.6). A atividade de ^{228}Ra no ponto 1sp para a primeira etapa de campo situa-se entre aquelas determinadas para os pontos 4sp e 2sp, o que não acontece na segunda.

6.4. ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sólidos em suspensão das águas subterrâneas

Na Tabela 6.7 constam os valores determinados para atividade de ^{226}Ra nos sólidos em suspensão provenientes das águas subterrâneas coletadas no Barreiro, cuja variação está ilustrada na Figura 6.19.

A atividade de ^{226}Ra nos pontos 1sb e 2sb segue o mesmo padrão, sendo maior no período seco (Figura 6.19), reforçando novamente o aspecto de influência do ponto 1sb sobre o ponto 2sb para este nuclídeo, principalmente no período seco.

A atividade de ^{226}Ra para o aquífero granular variou de 13 a 2.128 pCi/g (média de 422 pCi/g) para a primeira etapa de campo e de 89 a 1882 pCi/g (média de

726 pCi/g) para a segunda, aumentando a atividade média no período seco, conforme também verificado para o ^{226}Ra dissolvido nas águas subterrâneas.

Tabela 6.7 – Atividade de ^{226}Ra nos sólidos em suspensão das águas subterrâneas do Barreiro

Coleta 1 (16 a 19/02/2000)				Coleta 2 (12 a 16/09/2000)		
Amostra	Atividade (pCi)	Massa (g)	Ativ./mas. (pCi/g)	Atividade (pCi)	Massa (g)	Ativ./mas. (pCi/g)
1sb	24,11 ± 1,94	0,020	1.206 ± 97	28,47 ± 1,06	0,018	1.581 ± 59
2sb	12,43 ± 0,80	0,037	336 ± 22	11,21 ± 1,00	0,008	1.402 ± 124
3sb	26,17 ± 0,92	0,037	707 ± 25	13,72 ± 1,34	0,036	381 ± 37
4sb	13,18 ± 1,60	0,042	314 ± 38	12,83 ± 1,02	0,016	802 ± 64
5sb	37,14 ± 1,82	0,112	332 ± 16	—	0,006	—
6sb	10,64 ± 1,12	0,005	2.128 ± 224	9,64 ± 0,85	0,014	689 ± 61
7sb	2,56 ± 0,91	0,115	22 ± 8	13,93 ± 1,39	0,016	870 ± 87
8sb	9,17 ± 1,49	0,721	13 ± 2	—	—	—
9sb	4,49 ± 0,73	0,049	92 ± 15	19,11 ± 1,25	0,059	324 ± 21
10sb	10,55 ± 1,11	0,099	107 ± 11	—	0,146	—
11sb	10,26 ± 0,89	0,102	101 ± 9	2,05 ± 0,56	0,023	89 ± 24
12sb	5,98 ± 0,95	0,046	130 ± 21	—	—	—
13sb	—	—	—	11,53 ± 1,06	0,057	202 ± 18
14sb	9,42 ± 1,30	0,309	31 ± 4	20,92 ± 1,76	0,127	165 ± 14
15sb	12,28 ± 0,84	0,026	472 ± 32	5,11 ± 0,86	0,023	222 ± 37
16sb	—	—	—	9,88 ± 1,35	0,012	823 ± 112
17sb	8,35 ± 1,13	0,025	334 ± 45	45,16 ± 3,02	0,024	1.882 ± 126

— não analisado.

O ^{226}Ra nos sólidos em suspensão das águas subterrâneas, semelhante ao dissolvido, não tem um padrão típico de variação, ocorrendo pontos que apresentaram um aumento ou diminuição de atividade no período seco. Os pontos 17sb e 15sb têm comportamentos distintos quanto à atividade de ^{226}Ra , a qual aumentou significativamente no ponto 17sb no período seco (Figura 6.19), talvez devido à mudança da frente de lavra (o ponto foi coletado em um dos drenos da mina). Tal elevação, também pode ter causado o aumento do valor da atividade de ^{226}Ra no ponto 10sp (Figura 6.16). A atividade de ^{226}Ra não foi determinada para o ponto 16sp na primeira etapa de campo, tendo sido obtido um valor intermediário ao dos pontos 17sb e 15sb na segunda.

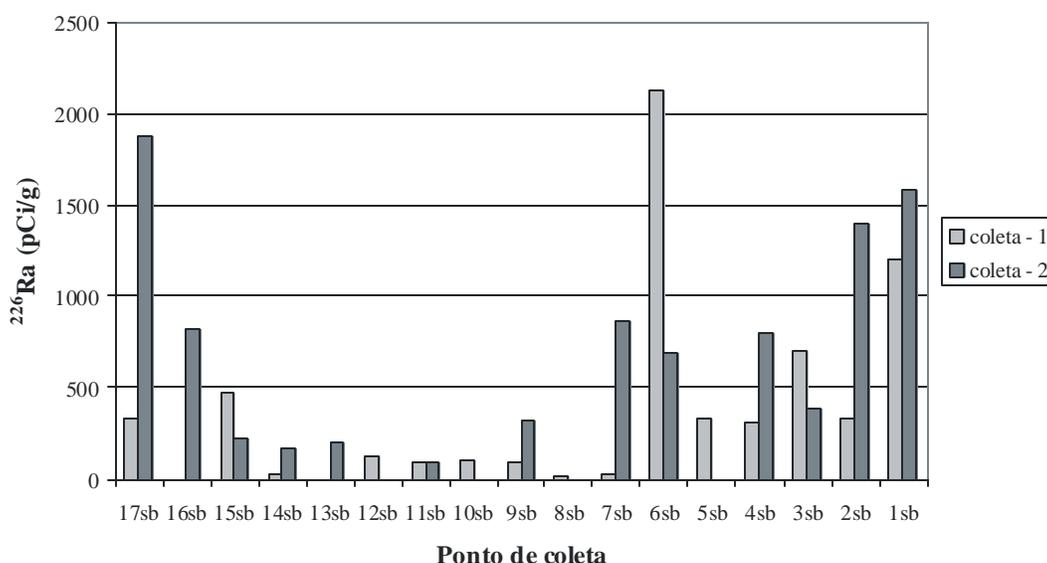


Figura 6.19 - Atividade de ^{226}Ra nos sólidos em suspensão das águas subterrâneas do Barreiro amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

A atividade de ^{226}Ra no ponto 4sb é praticamente a mesma que no ponto 5sb na primeira etapa de campo, não se confirmando aqui a diferença no valor da atividade em relação à profundidade. Para a segunda etapa o ponto 5sb não foi analisado, ocorrendo um aumento no valor da atividade no ponto 4sb.

Os pontos 11sb e 10sb têm valores próximos de atividade de ^{226}Ra para a primeira etapa de campo, não tendo sido analisado o ponto 13sb para esta etapa. Para a segunda, o ponto 10sb não foi analisado, o ponto 11sb exibiu um pequeno decréscimo na atividade e o ponto 13sb apresentou um valor superior ao determinado para

o ponto 11sb, porém, apesar disso, todos os valores estão dentro os menores determinados para a atividade de ^{226}Ra (Figura 6.19).

Os menores valores determinados para a atividade de ^{226}Ra foram obtidos para os pontos 12sb, 8sb e 7sb na primeira etapa de campo, contudo, na segunda, ocorreu um aumento significativo no ponto 7sb (Figura 6.19), que é difícil de ser explicado pelo fato dos pontos 12sb e 8sb não terem sido analisados.

Os pontos 14sb e 9sb exibiram um comportamento relativamente mais regular, aumentando a atividade no período seco, o que não refletiu no ponto 3sb, que apresentou uma diminuição de atividade no mesmo período (Figura 6.19).

Para o ponto 6sb foi determinado o maior valor para a atividade de ^{226}Ra na primeira etapa de campo, mas para a segunda etapa de campo o valor determinado é bem menor, o que pode estar ligado a mudanças localizadas de comportamento, como também observado na análise hidroquímica.

Na Tabela 6.8 constam os valores obtidos para a atividade de ^{228}Ra para os sólidos em suspensão provenientes das águas subterrâneas coletadas no Barreiro, cuja variação está ilustrada na Figura 6.20.

A atividade de ^{228}Ra para o ponto 1sb diminuiu para a segunda etapa de campo, da mesma forma que a atividade de ^{228}Ra determinada para a fase líquida, o que indica uma menor quantidade do nuclídeo nas duas fases. Para o ponto 2sb, a atividade é menor que para o ponto 1sb (Figura 6.20), porém, próxima à média determinada para o aquífero granular, reforçando a característica de mistura. Para a segunda etapa de campo foi necessário determinar o limite de detecção.

A variação da atividade de ^{228}Ra para os sólidos em suspensão para o aquífero granular foi de 21 a 4.550 pCi/g (média de 760 pCi/g) para a primeira etapa de campo e de 105 a 3.396 pCi/g (média de 1.448 pCi/L) para a segunda.

Tabela 6.8 – Atividade de ^{228}Ra nos sólidos em suspensão das águas subterrâneas do Barreiro

Amostra	Coleta 1 (16 a 19/02/2000)		Coleta 2 (12 a 16/09/2000)	
	Massa (g)	Ativ./mas. (pCi/g)	Massa (g)	Ativ./Vol. (pCi/g)
1sb	0,020	1.208 ± 60	0,018	630 ± 90
2sb	0,037	402 ± 67	0,008	< 2.323*
3sb	0,037	784 ± 76	0,036	343 ± 44
4sb	0,042	410 ± 32	0,016	< 579*
5sb	0,112	254 ± 18	0,006	< 3.396*
6sb	0,005	4.550 ± 214	0,014	< 1.294*
7sb	0,115	217 ± 19	0,016	< 1.572*
8sb	0,721	21 ± 2	—	—
9sb	0,049	321 ± 29	0,059	293 ± 31
10sb	0,099	206 ± 16	0,146	246 ± 18
11sb	0,102	271 ± 22	0,023	613 ± 60
12sb	0,046	475 ± 46	—	—
13sb	—	—	0,057	248 ± 36
14sb	0,309	119 ± 12	0,127	105 ± 22
15sb	0,026	484 ± 56	0,023	< 690*
16sb	—	—	0,012	1.181 ± 160
17sb	0,025	377 ± 66	0,024	620 ± 60

*limite de detecção determinado de acordo com CURRIE (1968); — não analisado.

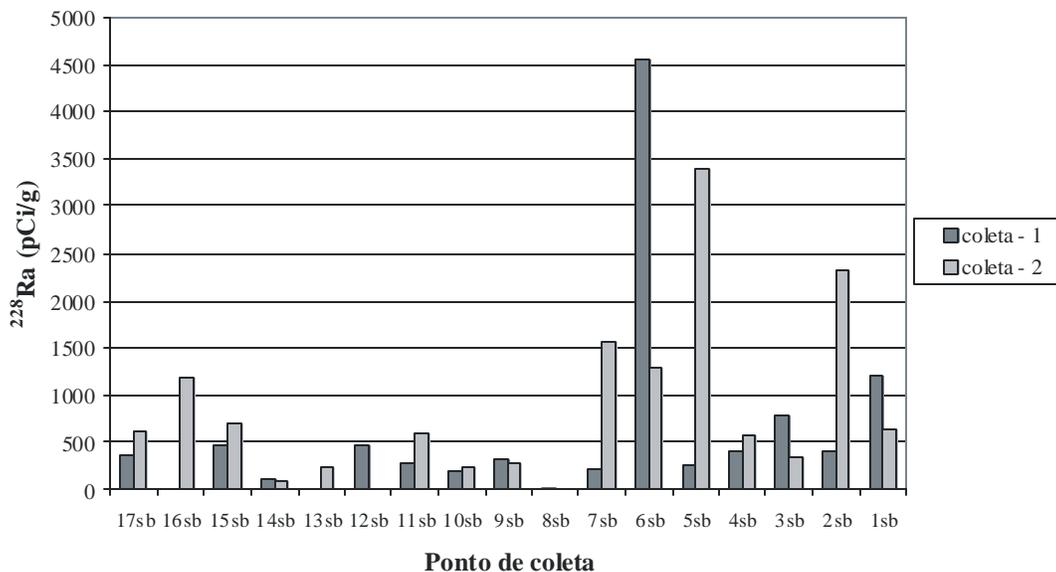


Figura 6.20 - Atividade de ^{228}Ra nos sólidos em suspensão das águas subterrâneas do Barreiro amostradas de 16 a 19/02/2000 (coleta 1) e de 12 a 16/09/2000 (coleta 2).

O ponto 17sb apresentou um aumento da atividade de ^{228}Ra para a segunda etapa de campo que pode estar relacionado com o constante avanço da frente de lavra, assim como verificado para a atividade de ^{226}Ra (Figura 6.20). O ponto 16sb não foi analisado na primeira etapa de campo. Para o ponto 15sb, foi determinada a atividade de ^{228}Ra para a primeira etapa de campo, porém, para a segunda etapa de campo foi necessário calcular o limite de detecção (Tabela 6.8 e Figura 6.20).

Para o conjunto 5sb e 4sb, foi necessário calcular o limite de detecção, pois, houve uma diminuição significativa na quantidade de material para esta coleta.

O ponto 13sb não foi analisado na primeira etapa de campo, tendo um valor na segunda próximo ao determinado para o ponto 10sb. Os pontos 11sb e 10sb apresentaram um aumento de atividade no período seco.

Os pontos 12sb e 8sb apresentaram valores bem diferentes, tendo que o ponto 8sb a menor atividade para a primeira etapa de campo; na segunda esses pontos não foram analisados. O ponto 7sb (coleta 1) exibiu um valor intermediário ao dos pontos 12sb e 8sb, tendo sido necessário calcular o limite de detecção na coleta 2 pela diminuição da quantidade de material disponível para análise.

A atividade de ^{228}Ra no ponto 14sb não variou significativamente entre a primeira e a segunda etapa de campo. Os pontos 9sb e 3sb apresentaram diminuição na atividade de ^{228}Ra no período seco.

O ponto 6sb se comporta de maneira anômala em relação aos demais, apresentando a maior atividade de ^{228}Ra na primeira etapa de campo, conforme também verificado para o ^{226}Ra (Figura 6.19). Em particular, neste caso, obteve-se um aumento na quantidade de material nos filtros, demonstrando, assim, a complexidade do mecanismo de transporte dos núclídeos/elementos e das mudanças locais que ocorrem no aquífero, como relatado no Capítulo 5.

6.5. ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sedimentos de fundo

Na Tabela 6.9 estão relacionados os valores obtidos na análise de ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sedimentos de fundo coletados no Barreiro.

Tabela 6.9 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sedimentos de fundo coletados no Barreiro, em 15/11/2001.

Amostra	^{226}Ra		^{228}Ra		
	massa (g)	Ativ./mas. (pCi/g)	massa (g)	Atividade (pCi)	Ativ./mas. (pCi/g)
1sed	67,52	6,1 ± 0,9	0,5	21,73 ± 2,1	43,5 ± 4,2
2sed	71,00	10,7 ± 1,1	0,5	22,47 ± 2,2	44,9 ± 4,5
4sed	56,45	5,5 ± 0,8	0,5	13,02 ± 1,0	26,1 ± 2,0
9sed	63,87	5,6 ± 1,9	0,5	78,13 ± 4,7	156,3 ± 9,4
10sed	70,42	17,0 ± 1,1	0,5	11,26 ± 1,1	22,5 ± 2,2
11sed	61,00	13,3 ± 1,3	0,5	16,79 ± 1,6	33,6 ± 3,2

Como os sedimentos foram coletados de acordo com a drenagem, pode-se empregar a mesma divisão utilizada para as águas superficiais, ou seja, grupo 1 (9sed e 2sed) e grupo 2 (11sed, 10sed e 4sed). O ponto 1sed foi coletado no córrego do Sal.

A Figura 6.21 mostra a variação da atividade de ^{226}Ra nos sedimento, verificando-se que, para o grupo 1 ocorreram valores entre 5,6 e 10,7 pCi/g (média de 8.1 pCi/g) e, para o grupo 2, entre 5,5 e 17,0 pCi/g (média de 11,9 pCi/g). Observa-se que o lado Oeste (grupo 2) contribui com a maior quantidade de ^{226}Ra e que o ponto 1sed tem um valor abaixo da média dos dois grupos.

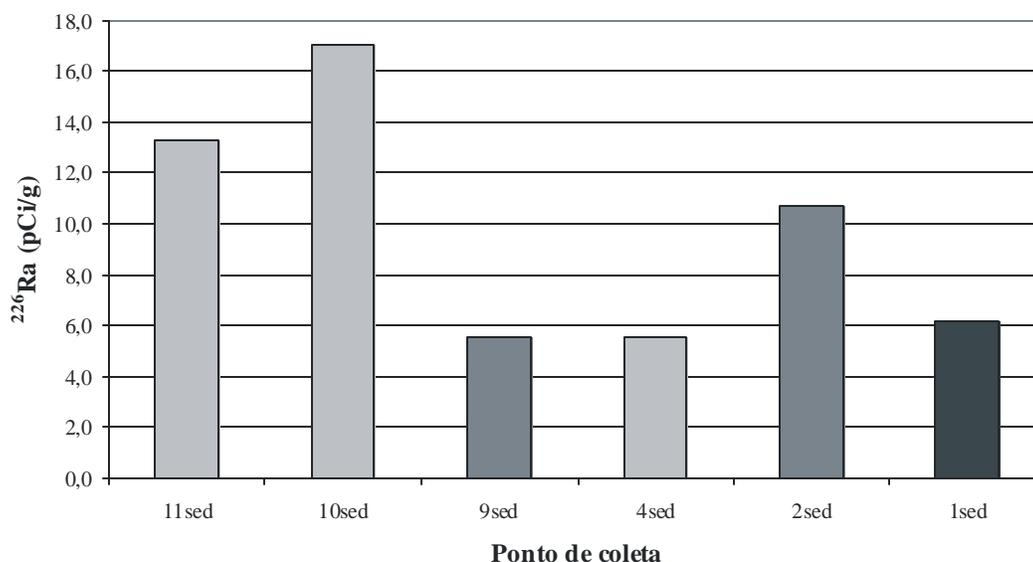


Figura 6.21 - Atividade de ^{226}Ra nos sedimentos de fundo do Barreiro coletados em 15/11/2001: 9 sed e 2 sed (grupo1) e 11 sed, 10 sed. e 4 sed. (grupo 2).

A Figura 6.22 apresenta a variação da atividade de ^{228}Ra nos sedimentos, verificando-se que, para o grupo 1, ocorreram valores entre 44,9 e 156,3 pCi/g (média de 100,9 pCi/g). O ponto 9sed provavelmente recebe a contribuição dos sedimentos trazidos pelo córrego da CBMM (ponto 8sp), uma parte do qual deve ficar retido na Barragem “BCM” (ponto 7sp). Para o grupo 2 a variação foi de 22,5 a 33,6 pCi/g (média de 27,4 pCi/g), demonstrando, neste caso, que o lado Leste (grupo 1) contribui com a maior parte do ^{228}Ra encontrado no Barreiro. O ponto 1sed apresenta um valor entre as médias dos grupos 1 e 2, próximo ao encontrado para o ponto 2sed, que está contribuindo diretamente com o aporte de material.

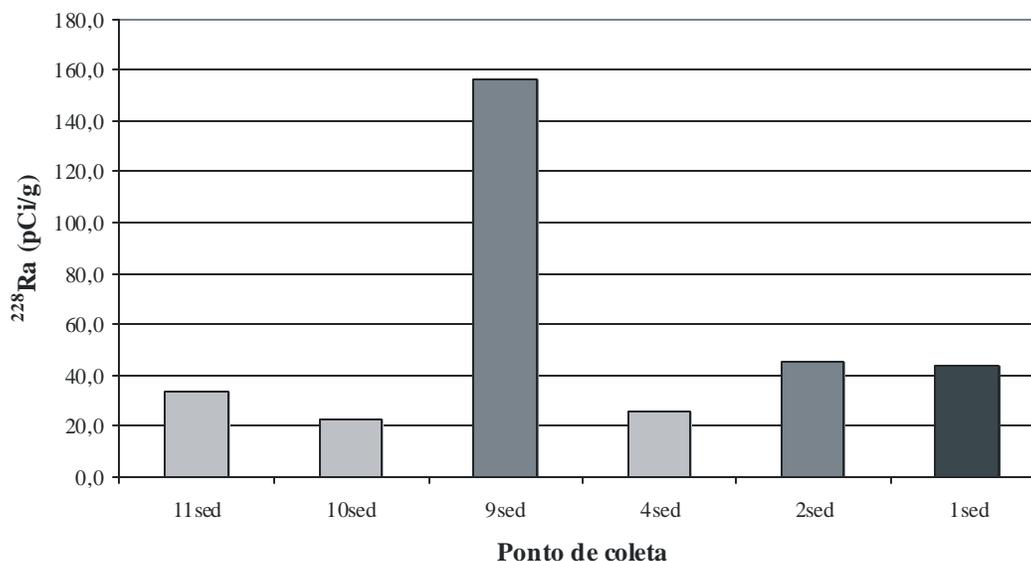


Figura 6.22 - Atividade de ^{228}Ra nos sedimentos de fundo do Barreiro coletados em 15/11/2001: 9 sed e 2 sed (grupo1) e 11 sed, 10 sed. e 4 sed. (grupo 2).

6.6. Urânio nas águas superficiais

Na Tabela 6.10 estão relacionados os valores obtidos na primeira etapa de campo para a concentração de ^{238}U e razão de atividade (RA) $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ em alguns pontos de coleta de amostras de águas superficiais do Barreiro, cuja variação está ilustrada na Figura 6.23.

Tabela 6.10 – Concentração de ^{238}U e razão de atividade (RA) $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ para amostras de águas superficiais do Barreiro coletadas de 16 a 19/02/2000.

Amostra	Volume (L)	^{238}U ($\mu\text{g/L}$)	RA $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
1sp	10,2	$1,37 \pm 0,22$	$1,52 \pm 0,17$
3sp	10,3	$0,18 \pm 0,05$	$1,64 \pm 0,49$
9sp	10,4	$0,13 \pm 0,05$	$1,22 \pm 0,53$
11sp	11,3	$0,68 \pm 0,10$	$1,19 \pm 0,15$
12sp	9,7	$1,08 \pm 0,28$	$1,27 \pm 0,25$

As amostras representam o lado Leste (pontos 9sp e 3sp: grupo 1), o lado Oeste (pontos 12sp e 11sp: grupo 2) e o córrego do Sal (ponto 1sp). A concentração de ^{238}U varia de 0,13 a 1,37 ppb, sendo o maior valor determinado para o ponto 1sp (Tabela 6.11). Analisando separadamente os grupos, verifica-se que o grupo 1 apresenta os menores valores encontrados para ^{238}U , contribuindo o grupo 2 com a maior parte do urânio presente nas águas superficiais (Figura 6.23). A razão de atividade (RA) variou de 1,19 a 1,64. O ponto 1sp apresenta uma RA entre os valores determinados para o grupo 1 e para o grupo 2 (Tabela 6.11). O grupo 1 apresentou a maior RA para o ponto 3sp, caracterizando um maior desequilíbrio entre os isótopos de urânio para o lado Leste. O grupo 2 tem menores valores para a RA, porém, todos eles estão acima de 1, caracterizando desequilíbrio entre o ^{234}U e o ^{238}U (Figura 6.23)

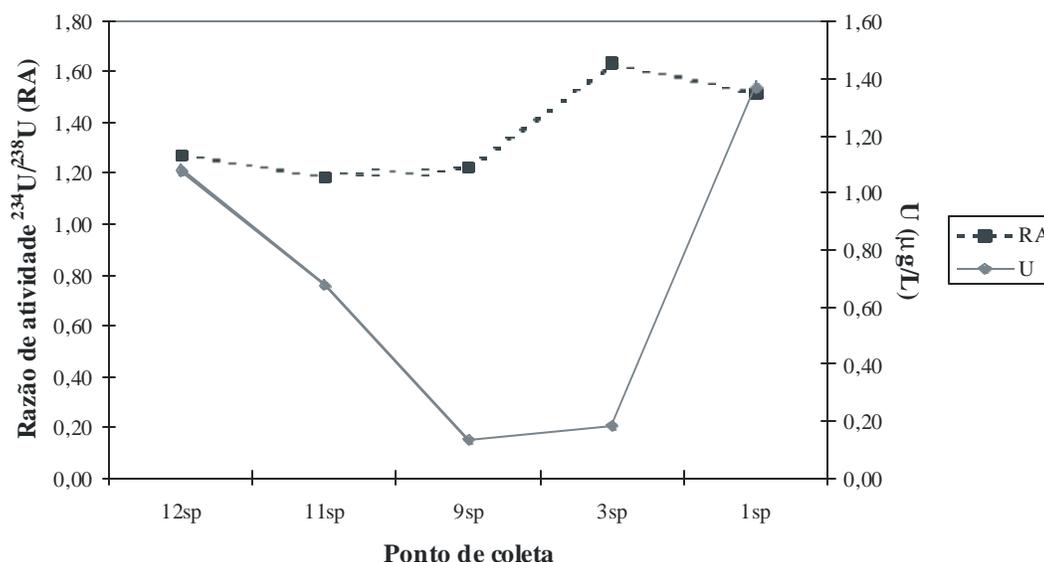


Figura 6.23 - Concentração de urânio e a razão de atividade (RA) para as águas superficiais do Barreiro coletadas de 16 a 19/02/2000.

6.7. Urânio nas águas subterrâneas

Na Tabela 6.11 estão relacionados os valores obtidos na primeira etapa de campo para a concentração de ^{238}U e razão de atividade (RA) $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ em alguns pontos de coleta de amostras de águas subterrâneas do Barreiro. Os pontos foram selecionados em função da direção das linhas de fluxo no aquífero (Figura 3.5), sendo separados em três perfis: Perfil 1, Perfil 2 e Perfil 3 (Figura 6.24).

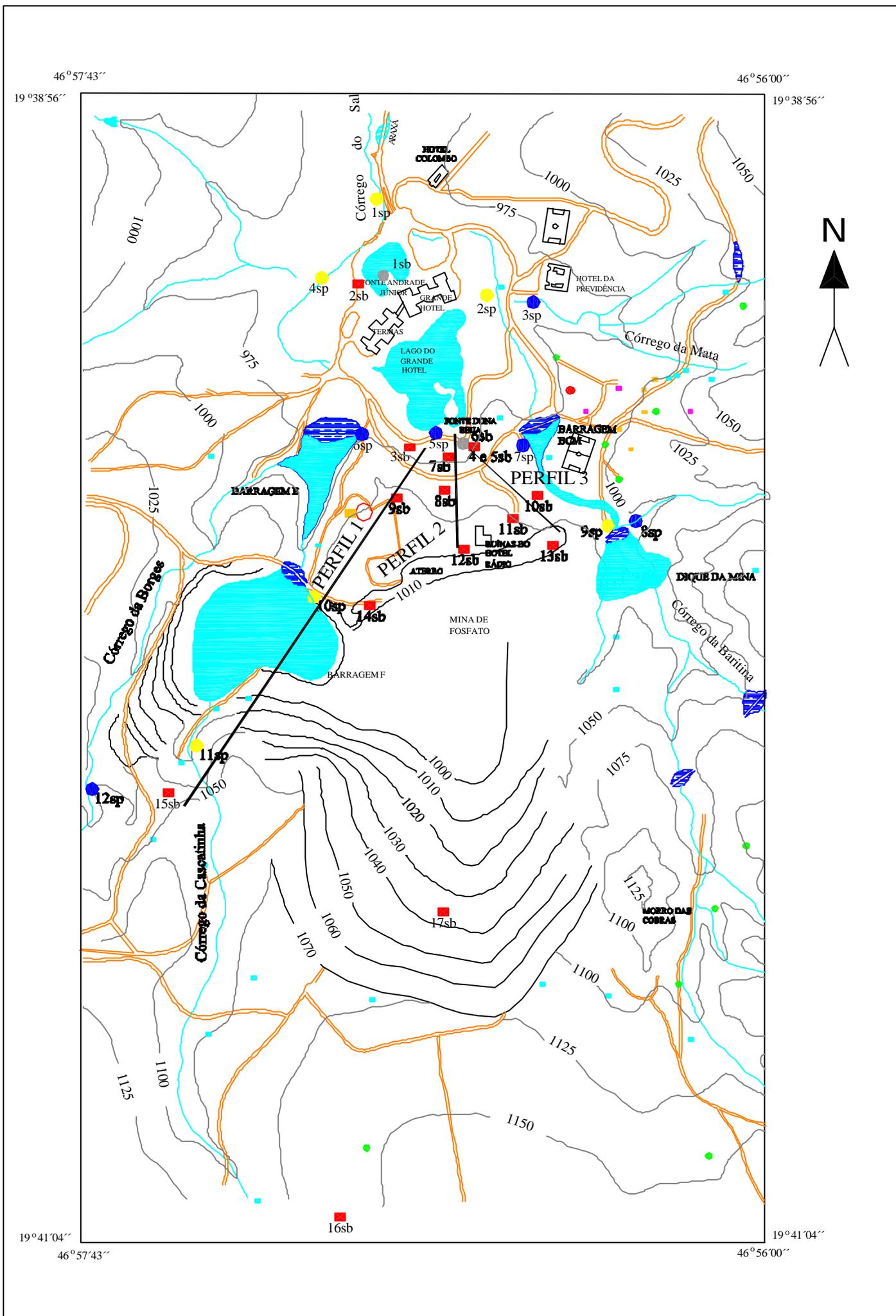


Figura 6.24 - Representação da localização dos Perfis (1, 2 e 3) na área estudada.

Tabela 6.11 – Concentração de ^{238}U e razão de atividade (RA) $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ para amostras de águas subterrâneas do Barreiro coletadas de 16 a 19/02/2000.

Amostra	Volume (L)	^{238}U ($\mu\text{g/L}$)	RA $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
3sb	10,4	$0,58 \pm 0,16$	$1,00 \pm 0,24$
4sb	9,7	$0,59 \pm 0,18$	$0,94 \pm 0,20$
5sb	10,4	$0,56 \pm 0,43$	$1,16 \pm 0,70$
6sb	10,7	$0,37 \pm 0,08$	$1,19 \pm 0,34$
8sb	9,7	$0,63 \pm 0,38$	$1,39 \pm 0,74$
9sb	10,7	$5,46 \pm 1,99$	$1,02 \pm 0,15$
10sb	10	$0,28 \pm 0,08$	$1,18 \pm 0,36$
11sb	10,5	$0,64 \pm 0,14$	$0,91 \pm 0,26$
12sb	10,9	$0,59 \pm 0,18$	$1,31 \pm 0,30$
14sb	10,5	$0,99 \pm 0,18$	$1,42 \pm 0,19$
15sb	10,2	$0,48 \pm 0,13$	$1,96 \pm 0,45$
17sb	10,5	$0,80 \pm 0,27$	$2,69 \pm 0,58$

A Figura 6.25 mostra a variação da concentração de ^{238}U e razão de atividade (RA) $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ para os pontos selecionados. A concentração de ^{238}U variou de 0,28 a 5,46 ppb, estando a maioria dos pontos abaixo de 1ppb (a única exceção é o ponto 9sb) (Tabela 6.11). A RA variou de 0,91 a 2,69, o maior valor sendo obtido no ponto 17sb (Tabela 6.11). A RA apresenta uma tendência para a unidade na direção das linhas de fluxo (Figura 3.5). O maior desequilíbrio está na parte mais a sul do aquífero, onde a área é mais preservada. Isto parece ser uma característica da região, pois o ponto 17sb também apresenta uma RA maior que os demais pontos, mesmo sendo um dreno na mina de fosfato.

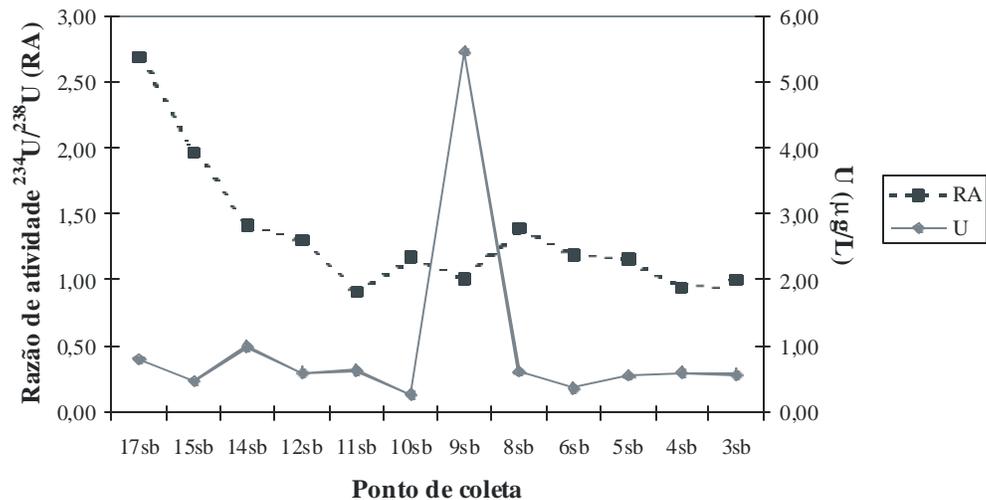


Figura 6.25 - Concentração de urânio e razão de atividade (RA) nas águas subterrâneas do Barreiro amostradas de 16 a 19/02/2000.

O Perfil 1 é constituído pelos pontos 15sb, 14sb, 9sb e 3sb e está a Oeste da mina de fosfato, na direção sudeste-nordeste. A Figura 6.26 mostra o comportamento da RA para o perfil. A concentração de U tem um aumento significativo no ponto 9sb, podendo o urânio estar sendo fornecido pelo Aterro, onde está o ponto 14sb, que não apresenta um valor elevado para a concentração de ^{238}U . No entanto, o ponto 3sb apresenta um valor para a concentração de ^{238}U bem inferior ao determinado para o ponto 9sb. O ponto 3sb também é influenciado pela Barragem “E”, que pode interferir diretamente no comportamento de suas águas. Variações no potencial redox entre os pontos 9sb e 3sb como pode ser observado na Figura 6.27 não explicam o comportamento do urânio dissolvido nas águas do Perfil 1.

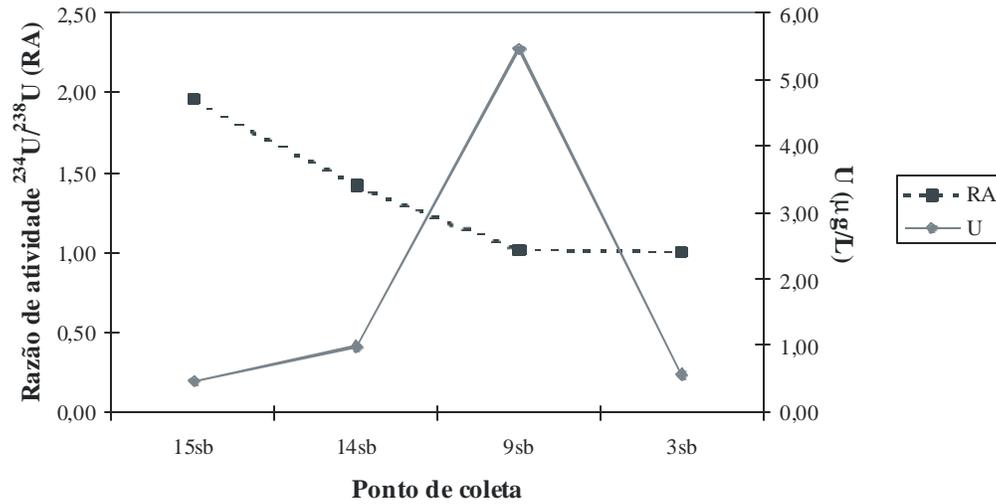


Figura 6.26 – Concentração de urânio e razão de atividade (RA) para os pontos do Perfil 1.

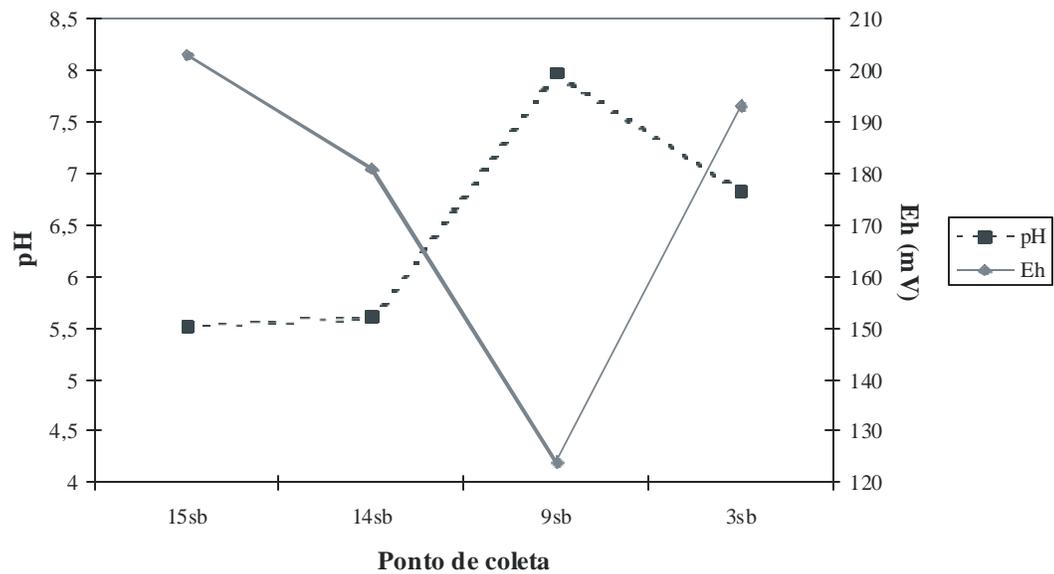


Figura 6.27 – Representação do comportamento do pH e Eh para os pontos do Perfil 1.

O Perfil 2 é formado pelos pontos 12sb, 8sb e 6sb e fica na parte mais central do Barreiro, na direção norte-sul. Representa basicamente a área de recarga formada pelo anel verde (Figura 3.4). A Figura 6.28 mostra a variação da concentração de ^{238}U e da RA para o Perfil 2. Neste perfil, a concentração de urânio diminuiu na direção do fluxo d'água, podendo ocorrer a sua precipitação entre os pontos 8sb e 6sb. A RA se

manteve praticamente inalterada para os pontos 12sb e 8sb com uma ligeira queda para o ponto 6sb, que também está sob influência do Perfil 3, como comentado a seguir.

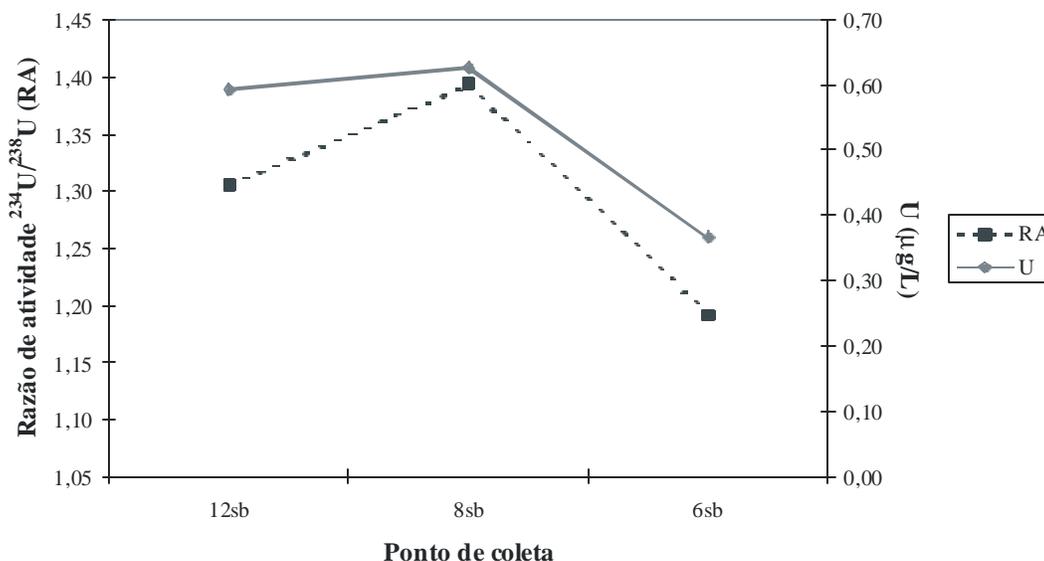


Figura 6.28 – Concentração de urânio e razão de atividade (RA) para os pontos do Perfil 2.

O Perfil 3 é formado pelos pontos 11sb, 10sb, 5sb, 4sb e 6sb e está na parte Leste do Barreiro, na direção sudeste-nordeste. A Figura 6.29 mostra o comportamento da concentração de ^{238}U e da RA para este perfil.

Os pontos 11sb e 10sb estão próximos entre si, ficando quase paralelos na direção leste-oeste. Ambos contribuem, com suas águas, para o abastecimento dos pontos 6sb, 5sb e 4sb (Figura 6.24). O ponto 10sb está bem próximo à barragem “BCM”, sendo bem provável que esteja sofrendo influência da mesma, pois, os valores nele encontrados são praticamente similares aos determinados para o ponto 9sp (Tabela 6.10) que contribui para a formação do lago. Os pontos 5sb e 4sb apresentam uma pequena diferença tanto para a concentração de ^{238}U quanto para a RA, a qual não caracteriza nenhuma alteração no comportamento das águas em relação à profundidade, pois, estes dois poços fazem parte de um conjunto de 4 poços com profundidades diferentes, sendo o 4sb o mais profundo.

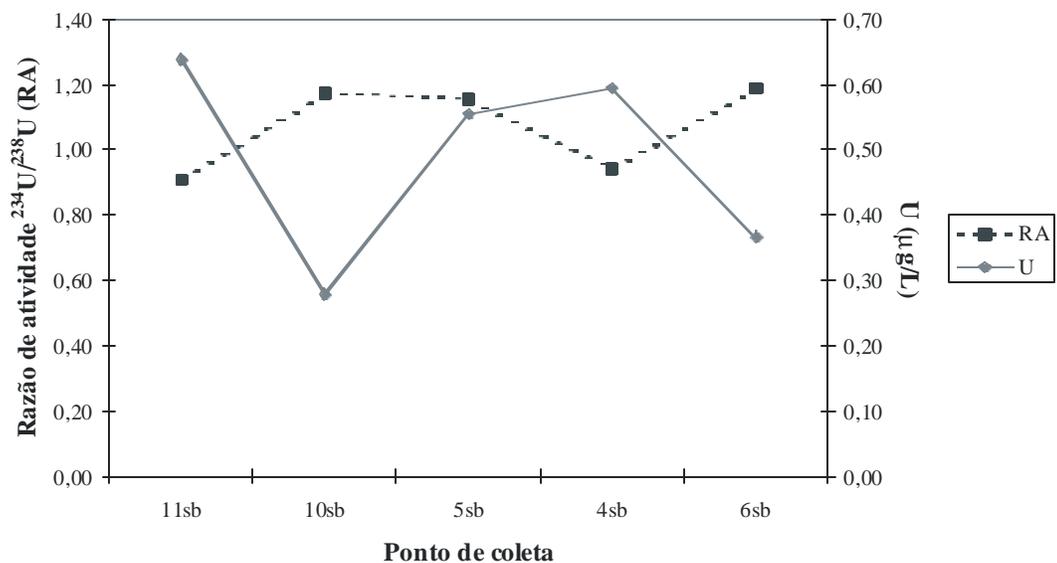


Figura 6.29 – Concentração de urânio e razão de atividade (RA) para os pontos do Perfil 3.

No geral, não se tem um padrão de comportamento definido para este perfil, em relação à concentração de ^{238}U . A RA se manteve próxima a unidade com pequenas variações (Figura 6.29). O ponto 6sb denota estar recebendo contribuição principalmente dos perfis 2 e 3, embora possa também sofrer influência de águas provenientes da porção mais a Leste, que não foram analisadas neste trabalho.

7. Transporte de rádio

7.1. Relação entre ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas superficiais

A Figura 7.1 mostra a relação entre a atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas superficiais do Barreiro para o lado Leste (grupo 1), para as duas etapas de campo. A atividade de ^{226}Ra é superior à de ^{228}Ra , com exceção do ponto 7sp, na segunda etapa de campo. Esse comportamento é geralmente esperado, devido a maior mobilidade do urânio (gerador de ^{226}Ra) em relação ao tório (gerador de ^{228}Ra). Para o grupo 1, esta tendência é mais evidente para a primeira etapa de campo, sugerindo uma maior mobilidade do ^{226}Ra no período chuvoso, o mesmo não ocorrendo para o ^{228}Ra . Associado a isto, há o fato de que o lado leste contribui com a maior parte de ^{228}Ra , como demonstram as análises dos sedimentos desta área (Figura 6.22).

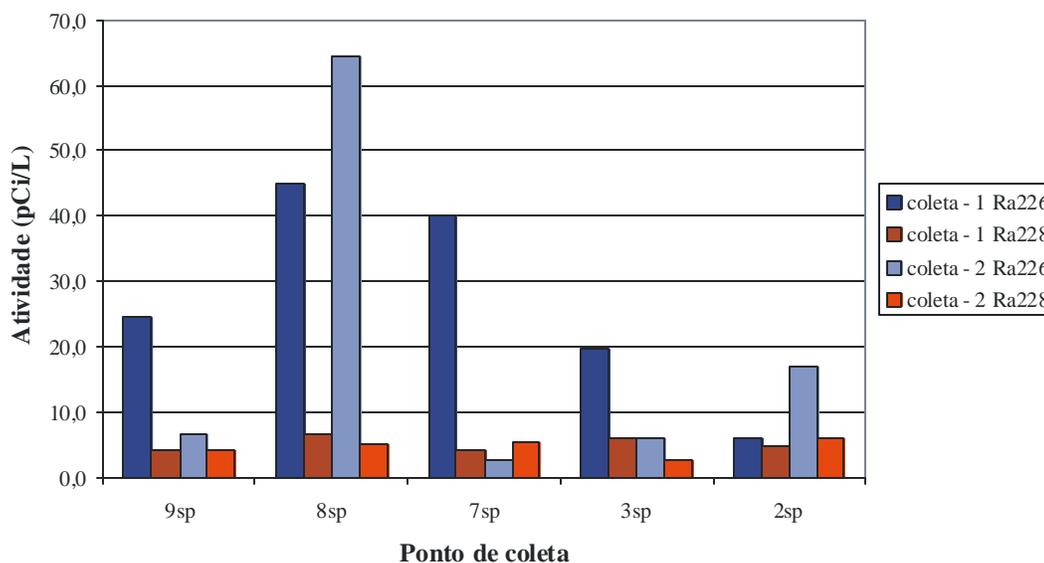


Figura 7.1 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas superficiais do Barreiro (grupo 1), para as duas etapas de campo.

A Figura 7.2 mostra a relação entre a atividade ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas superficiais do Barreiro para o lado Oeste (grupo 2) para as duas etapas de campo. A atividade de ^{226}Ra é superior à de ^{228}Ra em todos os pontos amostrados, para as duas etapas

de campo. A maior atividade de ^{226}Ra nestas águas está ligada ao fato de ser esta região (lado Oeste) que contribui com a maior parte de ^{226}Ra , como demonstram as análises dos sedimentos (Figura 6.21).

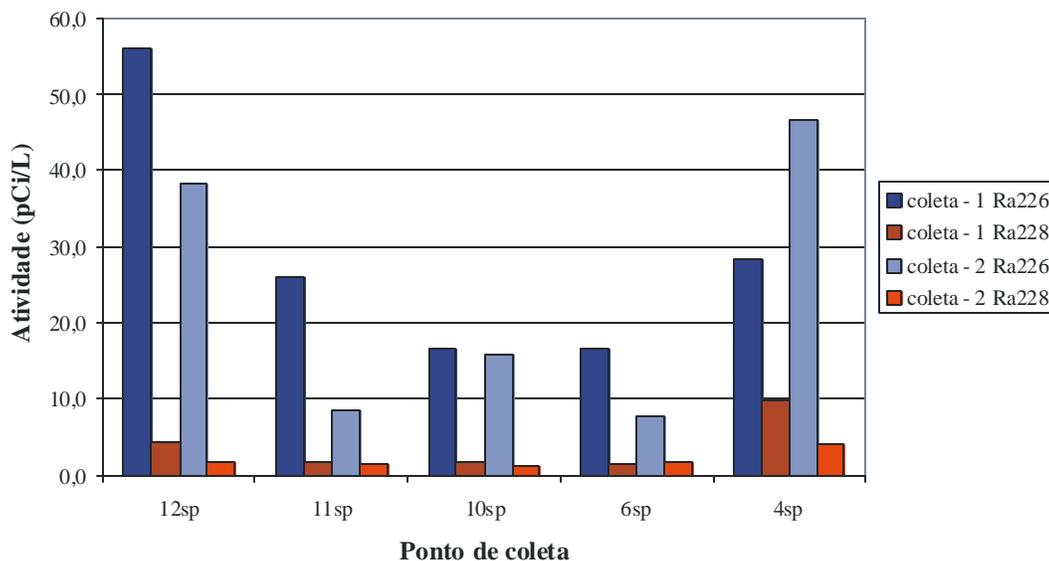


Figura 7.2 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas superficiais do Barreiro (grupo 2), para as duas etapas de campo.

A Figura 7.3 mostra a relação entre a atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas superficiais do Barreiro (pontos 1sp e 5sp), para as duas etapas de campo. No ponto 5sp (Lago do Grande Hotel), a atividade de ^{228}Ra é maior para a primeira etapa de campo e a de ^{226}Ra maior para a segunda (Figura 7.3). O lago é formado principalmente pelas águas subterrâneas que afloram no local e também pelas águas pluviais que podem alterar a concentração dos elementos. O ponto 1sp apresenta o mesmo comportamento que o ponto 5sp para as atividades de ^{226}Ra e ^{228}Ra (Figura 7.3), representando a mistura das águas do lado leste com as do lado oeste. A variabilidade encontrada pode ser explicada relativamente ao volume de água que cada lado fornece.

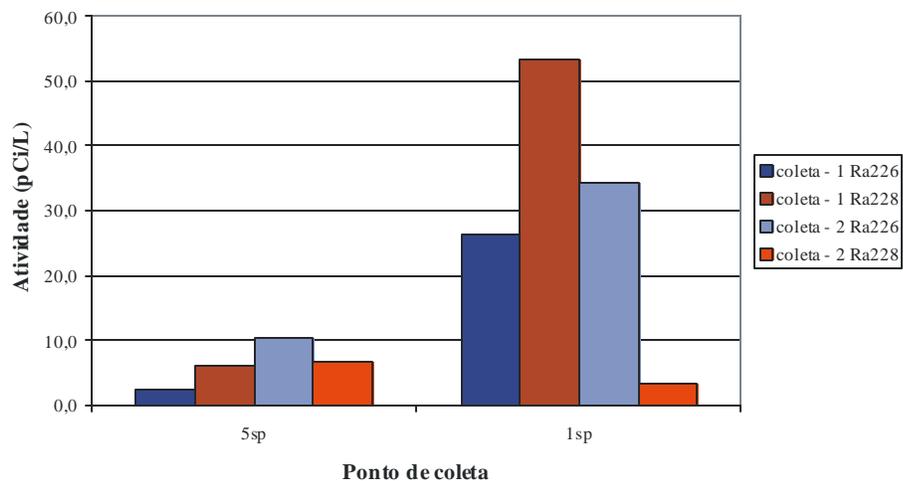


Figura 7.3 –Atividade de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra nas águas superficiais do Barreiro (pontos 5sp e 1sp), para as duas etapas de campo.

7.2. Relação entre ²²⁶Ra e ²²⁸Ra nas águas subterrâneas

A Figura 7.4 mostra a relação entre a atividade de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra nas águas subterrâneas do Barreiro, para as duas etapas de campo. A atividade de ²²⁶Ra também é superior (cerca de 2 a 10 vezes) à de ²²⁸Ra praticamente em todos os pontos analisados, confirmando a maior solubilidade do ²²⁶Ra em relação à do ²²⁸Ra.

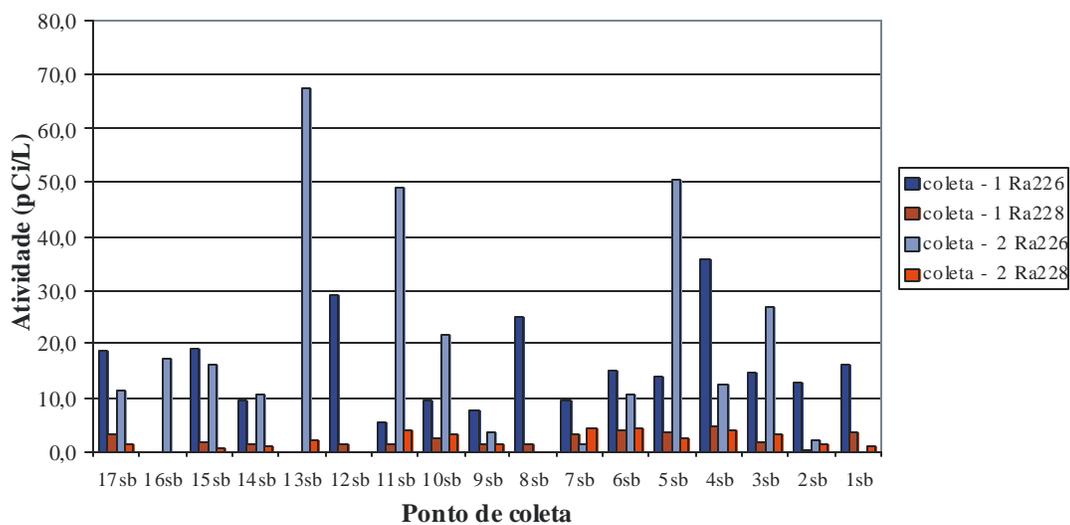


Figura 7.4 – Atividade de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra nas águas subterrâneas do Barreiro, para as duas etapas de campo.

7.3. Relação entre ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sólidos em suspensão nas águas superficiais

A Figura 7.5 mostra a relação entre a atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra para os sólidos em suspensão provenientes das águas superficiais do lado Leste (grupo 1) do Barreiro, para as duas etapas de campo. A atividade de ^{228}Ra é sempre superior à de ^{226}Ra , mesmo quando necessário calcular o limite de detecção para as amostras (Tabela 6.6). Pelo fato do ^{228}Ra ser menos móvel que o ^{226}Ra , este comportamento é oposto ao obtido para o rádio dissolvido nas águas desta região do Barreiro, sendo justificado pela maior presença do ^{228}Ra nos sedimentos do lado leste.

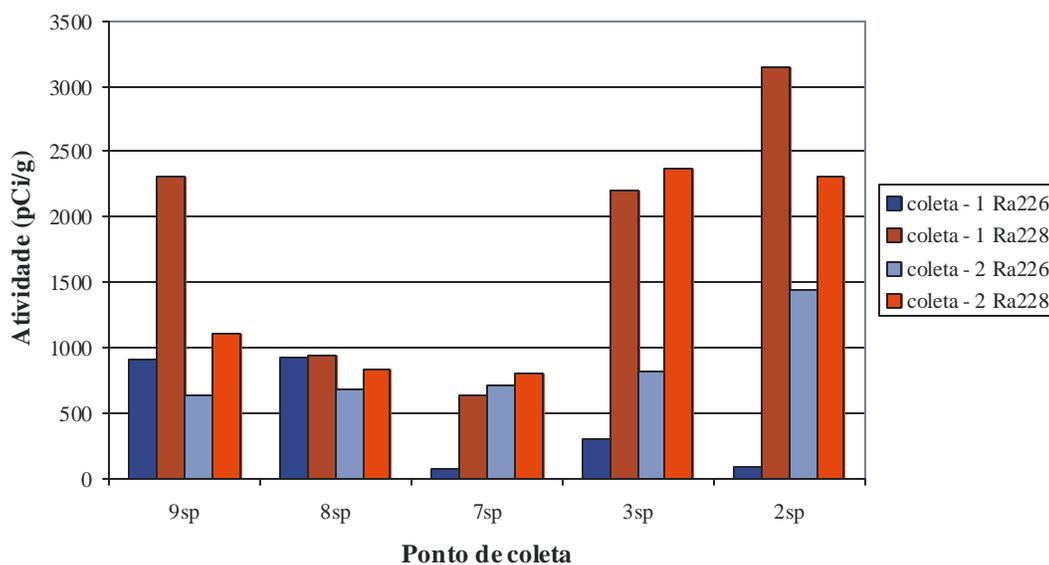


Figura 7.5 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra para os sólidos em suspensão nas águas superficiais do Barreiro (grupo 1), para as duas etapas de campo.

A Figura 7.6 mostra a relação entre a atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sólidos em suspensão provenientes das águas superficiais do lado Oeste do Barreiro (grupo 2), para as duas etapas de campo. Segundo se verifica, não há um padrão de comportamento definido para a atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra . O ponto 12sp é um exemplo dessa diversidade, pois, na primeira etapa de campo, a atividade de ^{228}Ra é maior que a de ^{226}Ra , o oposto ocorrendo na segunda (Figura 7.6). Para este grupo, os valores das duas atividades são próximos entre si, com exceção do ponto 12sp, o que está relacionado com a

menor quantidade de ^{228}Ra e maior quantidade de ^{226}Ra encontrada nos sedimentos desta região (lado oeste).

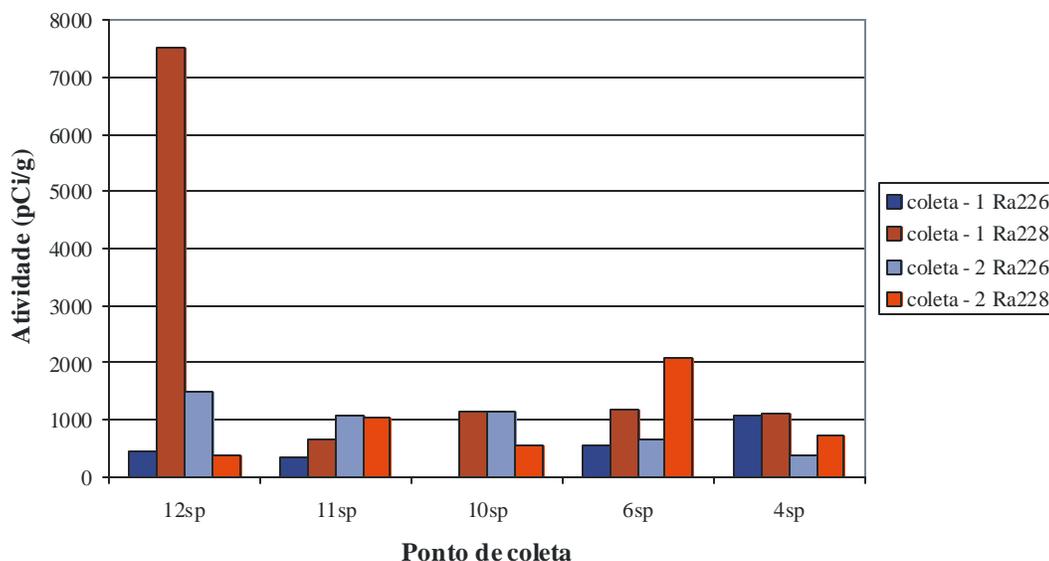


Figura 7.6 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra para os sólidos em suspensão nas águas superficiais do Barreiro (grupo 2), para as duas etapas de campo.

A Figura 7.7 mostra a relação entre a atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra para os sólidos em suspensão provenientes das águas superficiais do Barreiro (pontos 5sp e 1sp), para as duas etapas de campo. Os dois pontos apresentam o mesmo comportamento para as atividades de ^{226}Ra e ^{228}Ra , sendo a atividade de ^{228}Ra maior nas duas etapas de campo (Figura 7.7). Para o ponto 5sp foi necessário o cálculo do limite de detecção para a atividade de ^{228}Ra da segunda etapa de campo (Tabela 6.6), de maneira que as águas subterrâneas formadoras do lago têm a atividade de ^{228}Ra na mesma ordem de grandeza do limite determinado para o ponto. O ponto 1sp apresenta uma redução tanto para a atividade de ^{226}Ra como para a de ^{228}Ra . Neste caso, é provável ocorrer o mesmo processo tanto para os sólidos em suspensão quanto para o rádio dissolvido nas águas, uma vez que o ponto está sob a influência direta do volume de água com que cada lado (leste e oeste) contribui.

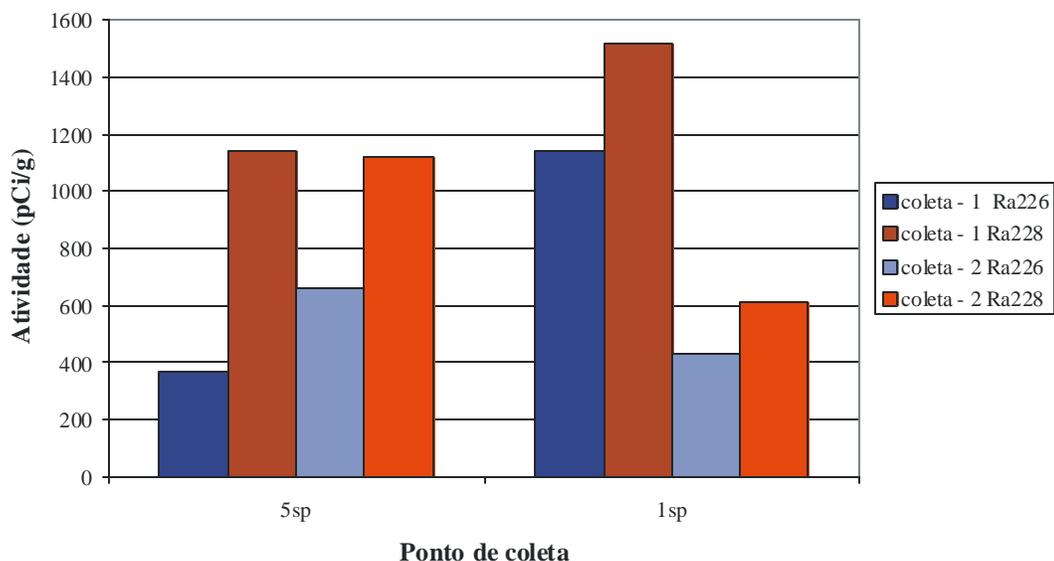


Figura 7.7 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra para os sólidos em suspensão nas águas superficiais do Barreiro (pontos 5sp e 1sp), para as duas etapas de campo.

7.4. Relação entre ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sólidos em suspensão nas águas subterrâneas

A Figura 7.8 mostra a relação entre a atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra para os sólidos em suspensão provenientes das águas subterrâneas do Barreiro, para as duas etapas de campo. Assim como para a atividade nas águas, não há um padrão definido de comportamento para nenhuma das etapas de campo. Para alguns pontos da segunda etapa de campo foi necessário calcular o limite de detecção para a atividade de ^{228}Ra (Tabela 6.8), o que não interfere na interpretação, pois, não há alteração no padrão de comportamento das atividades. Como constatado anteriormente, as variações das atividades de ^{226}Ra e ^{228}Ra são localizadas, podendo-se notar que as atividades são maiores nos pontos mais próximos ao local onde o aquífero é aflorante.

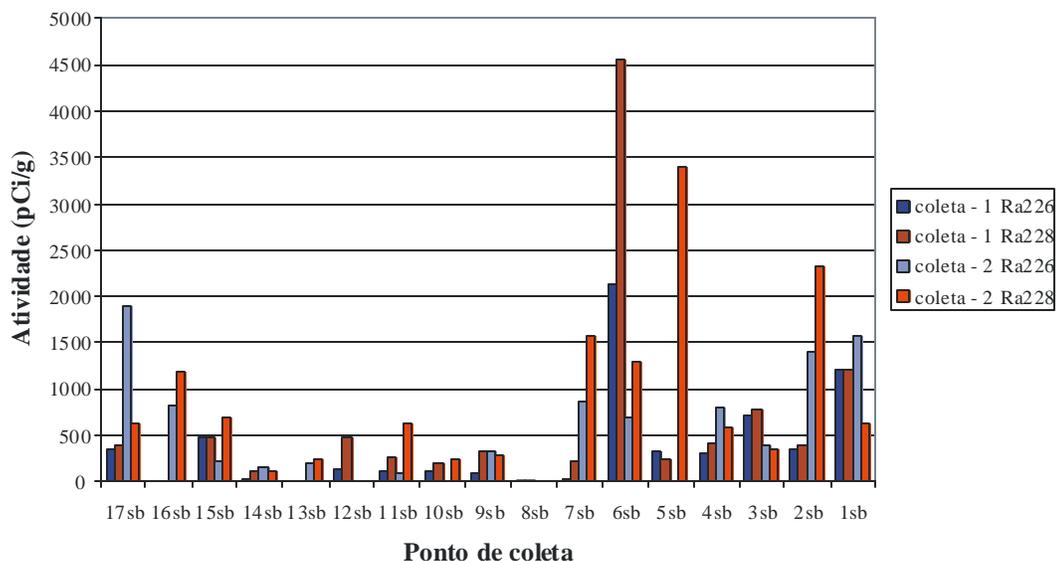


Figura 7.8 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra para os sólidos em suspensão nas águas subterrâneas do Barreiro, para as duas etapas de campo.

7.5. Relação entre ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sedimentos de fundo

A Figura 7.9 mostra a relação entre a atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra para os sedimentos de fundo coletados em 15/11/2001. A atividade de ^{228}Ra é superior à de ^{226}Ra em todos os pontos analisados, confirmando, assim, a menor mobilidade do ^{228}Ra em relação à do ^{226}Ra (Figura 7.9). Nota-se também, a diferença entre os lados Leste e Oeste do Barreiro quanto à distribuição do ^{226}Ra e do ^{228}Ra , como mencionado anteriormente. Constata-se assim, que os sedimentos constituem um importante fornecedor de rádio (tanto de ^{226}Ra como de ^{228}Ra) para as águas e sólidos em suspensão.

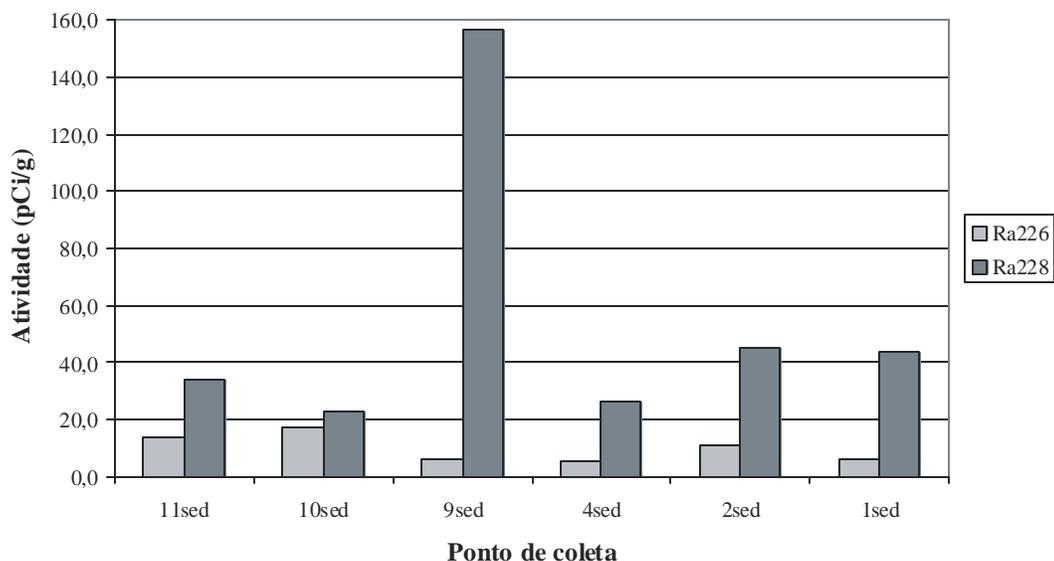


Figura 7.9 – Atividade de ^{226}Ra e ^{228}Ra para os sedimentos de fundo coletados em 15/11/2001.

7.6. Coeficiente de distribuição de Ra (K_d) para as águas superficiais

Na Tabela 7.1 estão relacionados os coeficientes de distribuição do ^{226}Ra e ^{228}Ra para as águas superficiais do Barreiro das duas etapas de campo.

Para o grupo 1, o K_d do ^{226}Ra variou de $0,27 \times 10^4$ a $5,72 \times 10^4$ g/cm^3 (média de $1,58 \times 10^4$ g/cm^3) para a primeira etapa de campo, de $0,04 \times 10^4$ a $0,95 \times 10^4$ g/cm^3 (média de $0,26 \times 10^4$ g/cm^3) para a segunda. No geral, a diminuição do K_d do ^{226}Ra para o período seco está relacionada com a diminuição da atividade de ^{226}Ra na fase líquida. A Figura 7.10 mostra a variação do K_d do ^{226}Ra nas águas superficiais do lado Leste do Barreiro (grupo 1), para as duas etapas de campo.

Tabela 7.1 – Coeficiente de distribuição (Kd) do ^{226}Ra e ^{228}Ra das águas superficiais do Barreiro, para as duas etapas de campo.

Amostra	Coleta - 1		Coleta - 2	
	Kd (^{226}Ra) ($\times 10^{-4}$ g/cm 3)	Kd (^{228}Ra) ($\times 10^{-6}$ g/cm 3)	Kd (^{226}Ra) ($\times 10^{-4}$ g/cm 3)	Kd (^{228}Ra) ($\times 10^{-6}$ g/cm 3)
1sp	0,23	35,0	0,80	5,36
2sp	0,74	1,49	0,12	2,61
3sp	0,68	2,67	0,08	1,06
4sp	0,27	8,98	1,20	5,60
5sp	0,07	5,42	0,16	5,91
6sp	0,32	1,29	0,12	0,77
7sp	5,72	6,58	0,04	6,62
8sp	0,49	7,27	0,95	5,94
9sp	0,27	1,69	0,10	3,53
10sp	—	1,55	0,14	2,31
11sp	0,77	2,59	0,08	1,32
12sp	1,27	0,58	0,26	4,43

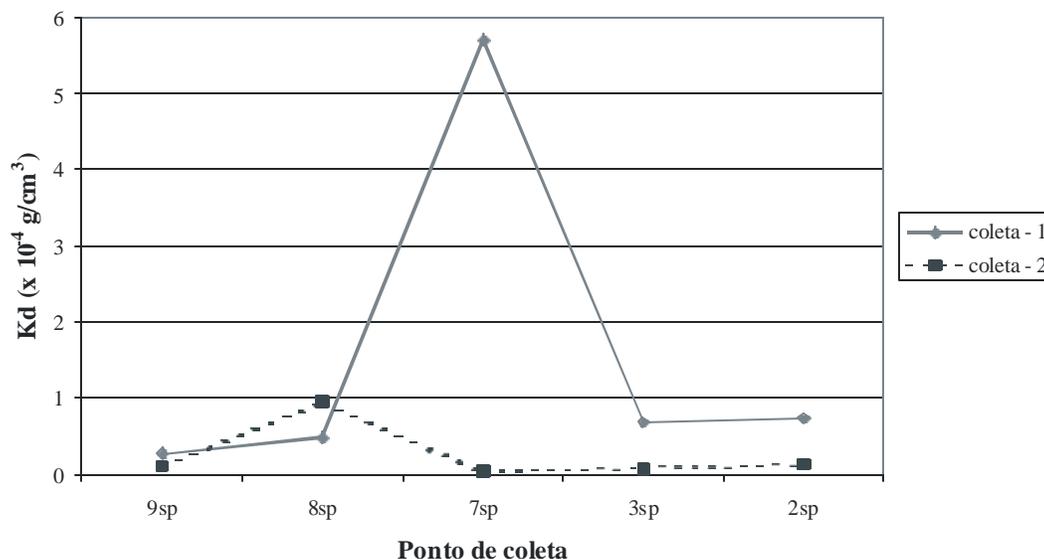


Figura 7.10 – Representação dos valores determinados para o coeficiente de distribuição (Kd) do ^{226}Ra nas águas superficiais do Barreiro (grupo 1), para as duas etapas de campo.

A Figura 7.11 mostra a variação do Kd para ^{226}Ra nas águas superficiais do lado Oeste do Barreiro (grupo 2) para as duas etapas de campo. Para este grupo, obteve-se uma variação para o Kd do ^{226}Ra de $0,27 \times 10^{-4}$ a $1,27 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$ (média de $0,66 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$) para a primeira etapa de campo, e de $0,26 \times 10^{-4}$ a $1,20 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$ (média de $0,36 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$) para a segunda etapa de campo. Neste caso, assim como para o grupo 1, a diminuição do Kd do ^{226}Ra para o período seco está relacionada com a diminuição da atividade de ^{226}Ra na fase líquida, embora para o grupo 1 as diferenças são menores, não ficando tão evidente a influência sazonal no comportamento do Kd do ^{226}Ra . O que parece controlar as variações do Kd do ^{226}Ra para o grupo 1 é a maior presença de ^{226}Ra nos sedimentos de fundo.

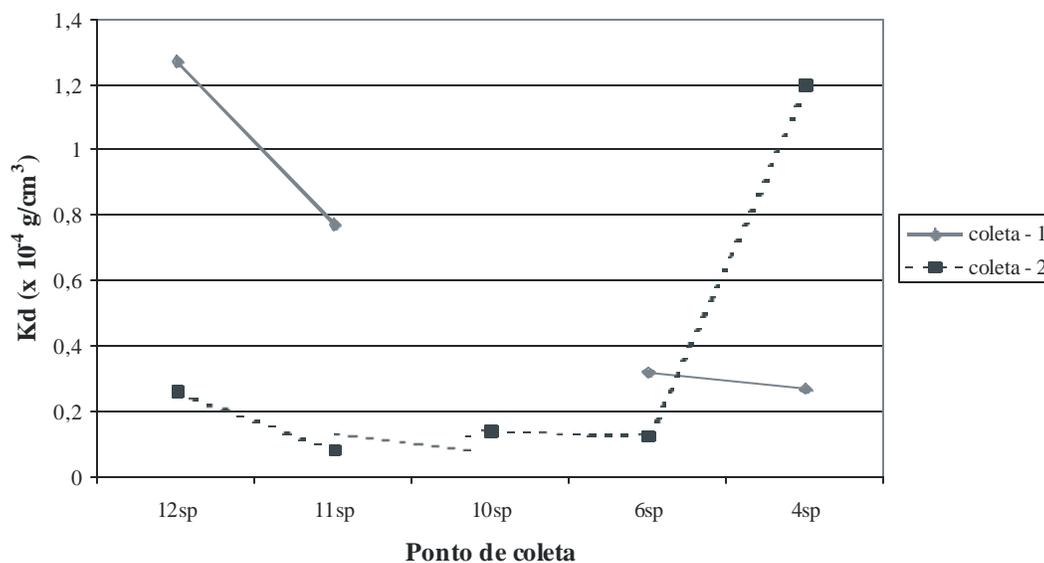


Figura 7.11 – Representação dos valores determinados para o coeficiente de distribuição (Kd) do ²²⁶Ra nas águas superficiais do Barreiro (grupo 2), para as duas etapas de campo.

A Figura 7.12 mostra a variação do Kd do ²²⁸Ra nas águas superficiais do lado Leste do Barreiro (grupo 1) para as duas etapas de campo. O Kd do ²²⁸Ra variou de $1,49 \times 10^6$ a $7,27 \times 10^6$ g/cm³ (média de $3,94 \times 10^6$ g/cm³) para a primeira etapa de campo e de $1,06 \times 10^6$ a $6,62 \times 10^6$ g/cm³ (média de $3,95 \times 10^6$ g/cm³) para a segunda etapa de campo. Praticamente não há diferença para o Kd do ²²⁸Ra entre os períodos chuvoso e seco (Figura 7.12) mostrando, assim, a pouca mobilidade do ²²⁸Ra, principalmente na fase líquida.

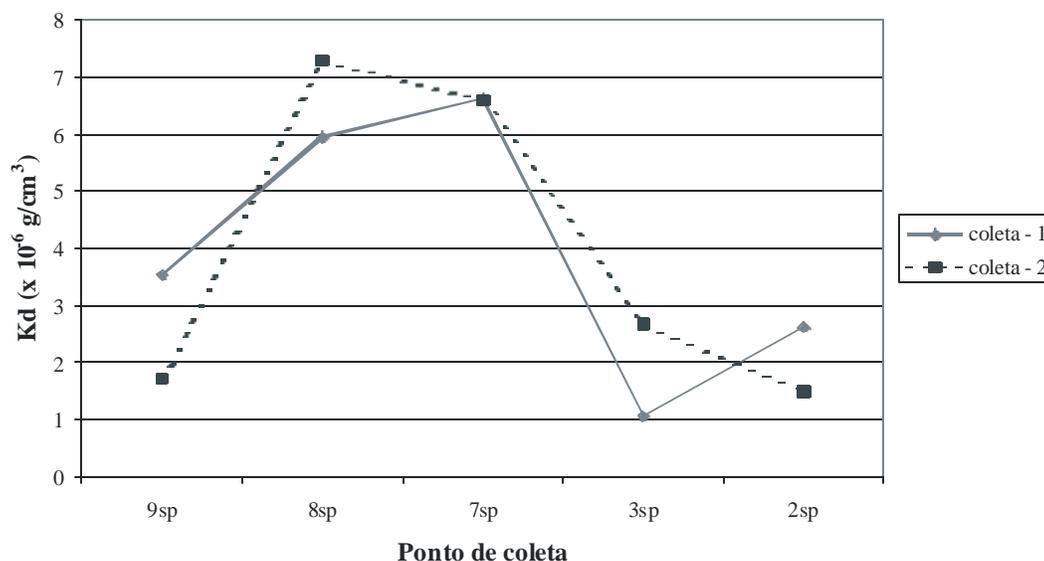


Figura 7.12 – Representação dos valores determinados para o coeficiente de distribuição (Kd) do ²²⁸Ra nas águas superficiais do Barreiro (grupo 1), para as duas etapas de campo.

A Figura 7.13 mostra a variação do Kd do ²²⁸Ra nas águas superficiais do lado Oeste do Barreiro (grupo 2) para as duas etapas de campo. A variação do Kd foi de $0,58 \times 10^{-6}$ a $8,98 \times 10^{-6}$ g/cm³ (média de $3,00 \times 10^{-6}$ g/cm³) para a primeira etapa de campo e de $0,77 \times 10^{-6}$ a $5,60 \times 10^{-6}$ g/cm³ (média de $2,89 \times 10^{-6}$ g/cm³) para a segunda. As médias obtidas para os períodos chuvoso e seco são muito próximas, com uma pequena diminuição para o período seco, confirmando a baixa mobilidade do ²²⁸Ra, principalmente porque esta região apresenta uma menor quantidade de ²²⁸Ra nos sedimentos.

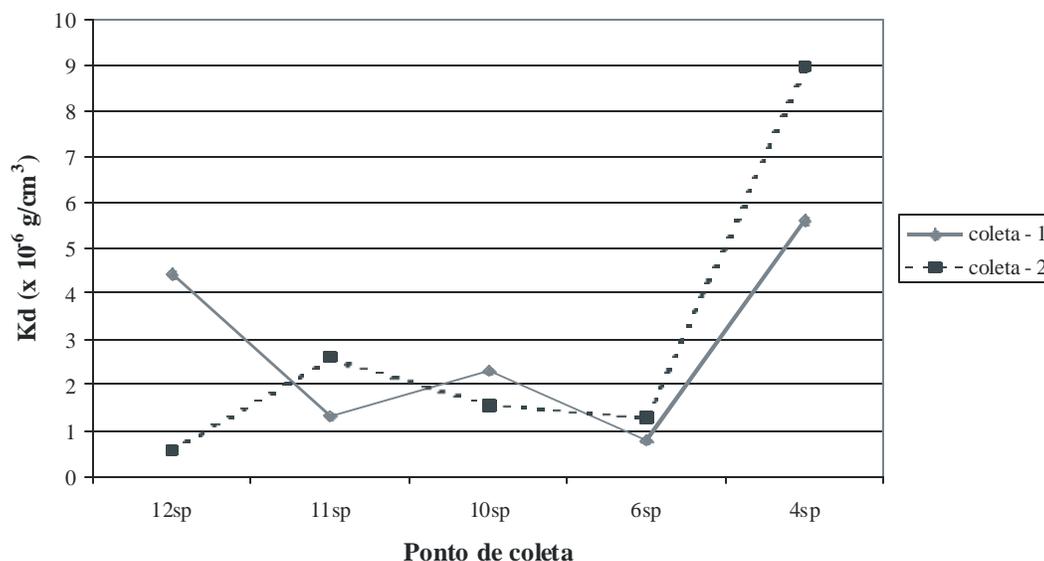


Figura 7.13 – Representação dos valores determinados para o coeficiente de distribuição (Kd) do ²²⁸Ra nas águas superficiais do Barreiro (grupo 2), para as duas etapas de campo.

O ponto 5sp apresenta valores do Kd do ²²⁶Ra da mesma ordem de grandeza dos demais pontos, para as duas etapas de campo (Tabela 7.1). Há um aumento de aproximadamente duas vezes no valor para a segunda etapa de campo em relação à primeira etapa. Já o Kd do ²²⁸Ra apresentou um pequeno aumento para a segunda etapa de campo, que não chega a ser significativo face à baixa mobilidade deste nuclídeo.

Para o ponto 1sp, os valores determinados para o Kd do ²²⁶Ra são da mesma ordem de grandeza da maioria dos pontos analisados, sem ocorrer queda no período seco. Já o Kd do ²²⁸Ra tem um comportamento inverso ao Kd do ²²⁶Ra, com um valor superior aos demais para a primeira etapa de campo (Tabela 7.1), o qual se deve ao valor anômalo da atividade de ²²⁸Ra na água. Este comportamento do ponto 1sp relativo ao ²²⁶Ra e ²²⁸Ra demonstra como podem ocorrer alterações pontuais significativas afetando o seu transporte. Tais mudanças também foram observadas para outros pontos analisados (Figuras 7.10 a 7.13).

Apesar destas peculiaridades, em termos gerais, quando se consideram as médias obtidas para os Kds de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra, verifica-se um comportamento relativamente similar entre as duas drenagens.

7.7. Coeficiente de distribuição de rádio (Kd) para as águas subterrâneas

Na Tabela 7.2 estão relacionados os coeficientes de distribuição (Kd) para o ^{226}Ra e ^{228}Ra nas águas subterrâneas do Barreiro, para as duas etapas de campo.

O Kd do ^{226}Ra para o aquífero granular variou de $0,07 \times 10^{-4}$ a $19,6 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$ (média de $2,47 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$) para a primeira etapa de campo e de $0,01 \times 10^{-4}$ a $5,53 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$ (média de $0,97 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$) para a segunda. Este aquífero se comporta de maneira similar às águas superficiais relativamente ao Kd do ^{226}Ra , o qual é maior no período chuvoso e diminui para o período seco, quando são consideradas as médias dos dois períodos. Porém, quando se analisa a Figura 7.14 que mostra a variação do Kd do ^{226}Ra para as duas etapas de campo verifica-se que não há um padrão único de variação, estando o aquífero sujeito a alterações pontuais, tanto na concentração de ^{226}Ra na fase líquida quanto na sólida.

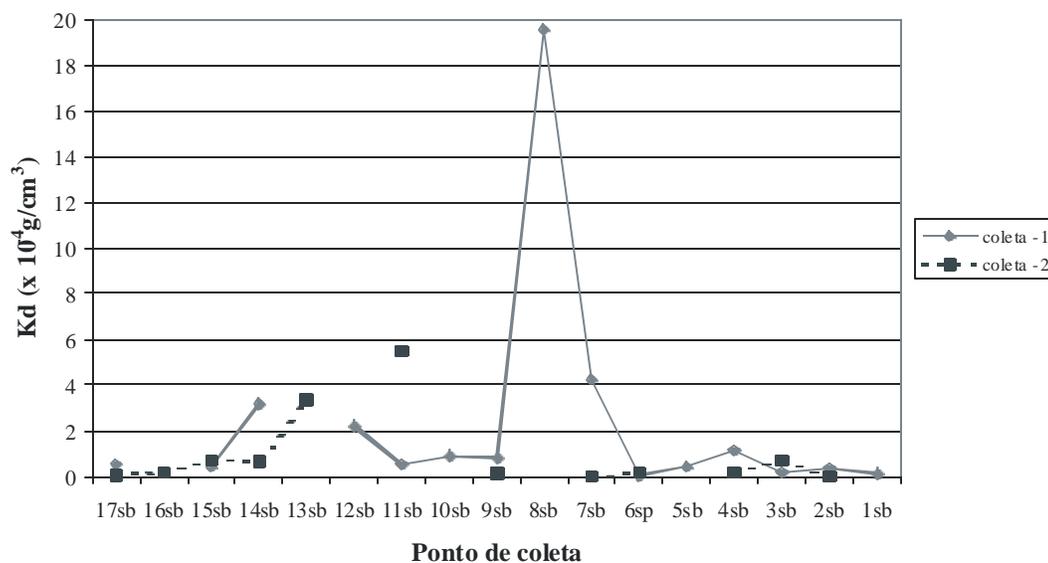


Figura 7.14 – Representação dos valores determinados para o coeficiente de distribuição (Kd) do ^{226}Ra nas águas subterrâneas do Barreiro, para as duas etapas de campo.

Tabela 7.2 – Coeficiente de distribuição (Kd) do ^{226}Ra e ^{228}Ra das águas subterrâneas do Barreiro, para as duas etapas de campo.

Amostra	Coleta - 1		Coleta - 2	
	Kd (^{226}Ra) ($\times 10^{-4}$ g/cm 3)	Kd (^{228}Ra) ($\times 10^{-5}$ g/cm 3)	Kd (^{226}Ra) ($\times 10^{-4}$ g/cm 3)	Kd (^{228}Ra) ($\times 10^{-5}$ g/cm 3)
1sb	0,13	0,30	—	0,18
2sb	0,38	0,07	0,01	0,05
3sb	0,20	0,22	0,70	0,91
4sb	1,13	1,14	0,15	0,68
5sb	0,42	1,35	—	0,07
6sp	0,07	0,08	0,15	0,32
7sb	4,25	1,42	0,01	0,27
8sb	19,6	7,09	—	—
9sb	0,82	0,4	0,10	0,43
10sb	0,87	1,28	—	1,25
11sb	0,54	0,54	5,53	0,60
12sb	2,23	0,33	—	—
13sb	—	—	3,33	0,80
14sb	3,15	1,11	0,63	0,85
15sb	0,40	0,34	0,72	0,13
16sb	—	—	0,20	1,25
17sb	0,55	0,90	0,06	0,22

A Figura 7.15 mostra a variação do Kd do ^{228}Ra nas águas subterrâneas do Barreiro, para as duas etapas de campo. O Kd do ^{228}Ra para o aquífero granular variou de $0,08 \times 10^{-5}$ a $7,09 \times 10^{-5} \text{ g/cm}^3$ (média de $1,16 \times 10^{-5} \text{ g/cm}^3$) para a primeira etapa de campo e de $0,07 \times 10^{-5}$ a $1,25 \times 10^{-5} \text{ g/cm}^3$ (média de $0,51 \times 10^{-5} \text{ g/cm}^3$) para a segunda. Da mesma forma que para o Kd do ^{226}Ra , há uma diminuição do Kd do ^{228}Ra para o período seco, neste caso, relacionado com o aumento do ^{228}Ra na fase sólida.

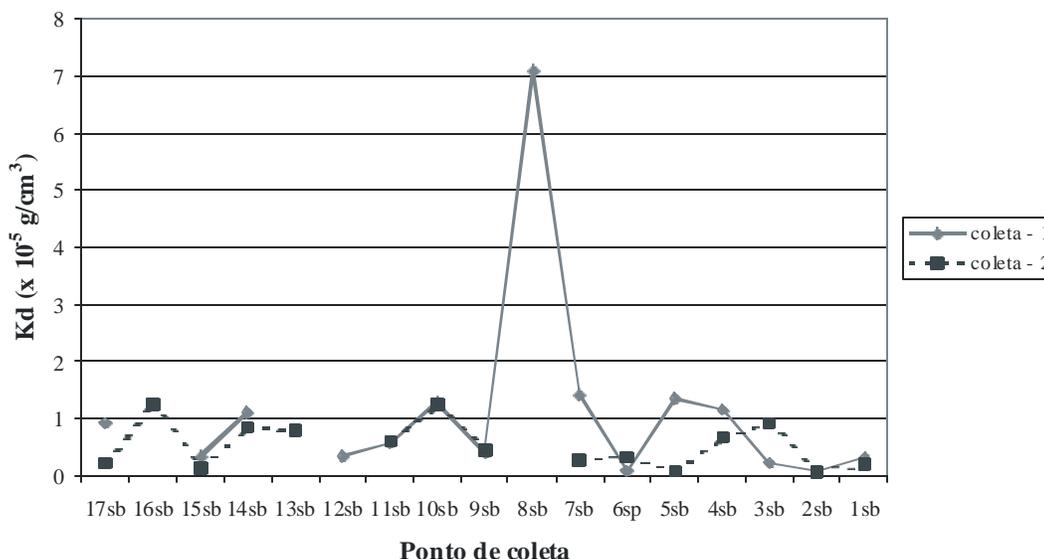


Figura 7.15 – Representação dos valores determinados para o coeficiente de distribuição (Kd) do ^{228}Ra nas águas subterrâneas do Barreiro, para as duas etapas de campo.

Quando se analisa a Figura 7.15, observa-se o Kd do ^{228}Ra exibe um comportamento mais regular do que o do Kd do ^{226}Ra (Figura 7.14), apesar da ocorrência de algumas variações pontuais acentuadas. Os pontos 2sb e 1sb têm um comportamento similar ao do aquífero granular, com maiores valores para o Kd do ^{226}Ra e Kd do ^{228}Ra ocorrendo no período chuvoso.

Testes estatísticos de correlação envolvendo o Kd dos dois isótopos de rádio para as duas etapas de coleta foram realizados (Figuras 7.16 e 7.17), indicando que eles estão relacionados, de uma maneira geral, em toda a área de investigação.

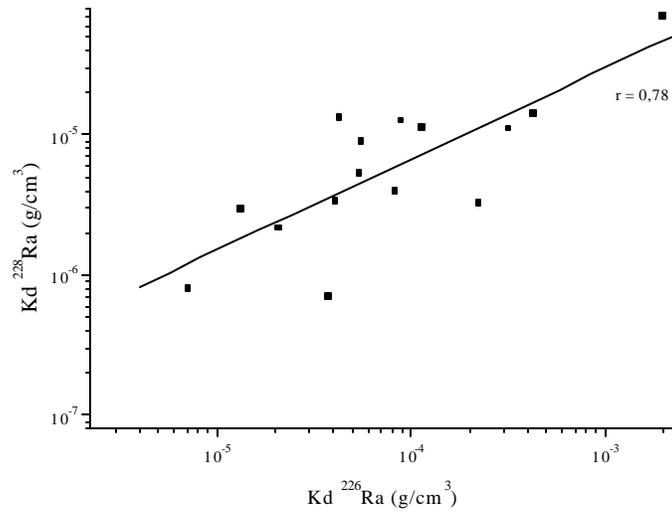


Figura 7.16 – Relação entre o Kd do ²²⁶Ra e o Kd do ²²⁸Ra das águas subterrâneas no período chuvoso.

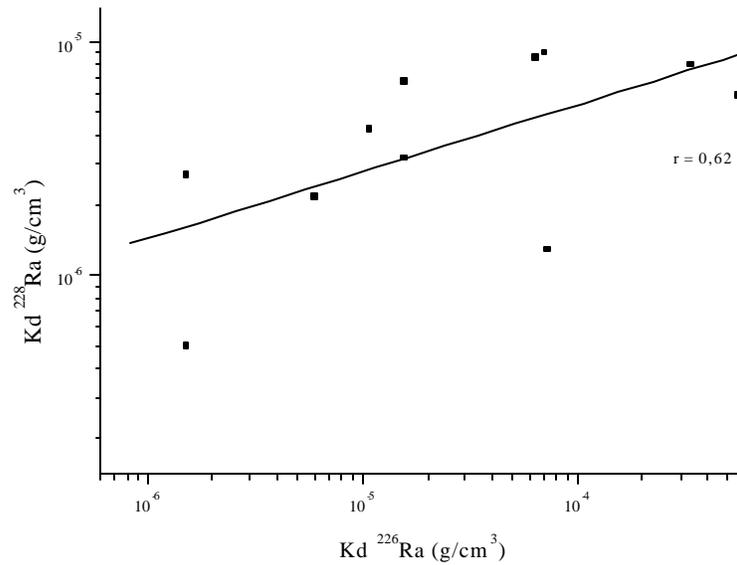


Figura 7.17 – Relação entre o Kd do ²²⁶Ra e o Kd do ²²⁸Ra das águas subterrâneas no período seco.

7.8. Coeficiente geral de distribuição de rádio na área

Os resultados obtidos permitiram determinar os coeficientes gerais para a distribuição de Ra na área estudada, os quais foram determinados sem proceder a separação em grupos no caso das águas superficiais e com a inclusão de todos os pontos amostrados no caso das águas subterrâneas.

Para o período chuvoso, o Kd médio do ^{226}Ra para as águas superficiais é de $9,83 \times 10^{-5} \text{g/cm}^3$ e para o período seco é de $3,37 \times 10^{-5} \text{g/cm}^3$, implicando, assim, numa média geral de $6,60 \times 10^{-5} \text{g/cm}^3$ para o Kd do ^{226}Ra . O Kd médio do ^{228}Ra para as águas superficiais é $6,26 \times 10^{-6} \text{g/cm}^3$ para o período chuvoso e de $3,79 \times 10^{-6} \text{g/cm}^3$ para o período seco, implicando, assim, numa média geral de $5,02 \times 10^{-6} \text{g/cm}^3$. Verifica-se, portanto, que o Kd do ^{226}Ra é superior por um fator de 10 ao Kd do ^{228}Ra , o que confirma a menor mobilidade do ^{228}Ra .

Para as águas subterrâneas, o Kd médio do ^{226}Ra para a área foi de $2,32 \times 10^{-4} \text{g/cm}^3$ e $0,97 \times 10^{-4} \text{g/cm}^3$, respectivamente, para o período chuvoso e seco, resultando numa média geral de $1,64 \times 10^{-4} \text{g/cm}^3$ para o Kd do ^{226}Ra . O Kd médio do ^{228}Ra foi de $1,11 \times 10^{-5} \text{g/cm}^3$ a $0,49 \times 10^{-5} \text{g/cm}^3$, respectivamente, para o período chuvoso e seco, correspondendo a média geral a $0,80 \times 10^{-5} \text{g/cm}^3$ para o Kd do ^{228}Ra . Dessa forma, o Kd do ^{226}Ra é cerca de 20 vezes maior do que o do ^{228}Ra mostrando, também, a maior mobilidade do ^{226}Ra , para as águas subterrâneas.

Os valores que foram determinados para o Kd do ^{226}Ra e do ^{228}Ra para as águas do Barreiro estão dentro do intervalo definido por BENES (1984), que é de 10^{-3} a 10^{-6}g/cm^3 . BARCELOS (1990) e MANCINI (1997) obtiveram um Kd para o ^{226}Ra da ordem de 10^{-4}g/cm^3 para águas superficiais do Planalto de Poços de Caldas, que é superior por um fator de 10 ao Kd do ^{226}Ra para as águas superficiais do Barreiro, refletindo as particularidades de cada área. BONOTTO (1998) determinou o Kd para o para as águas de um poço de monitoramento situado no Morro do Ferro no Planalto de Poços de Caldas, encontrando valores de $5,65 \times 10^{-5} \text{g/cm}^3$ e de $6,33 \times 10^{-4} \text{g/cm}^3$, respectivamente, para o ^{226}Ra e ^{228}Ra , o que mostra novamente que as particularidades de cada área influenciam diretamente na obtenção do índice.

8. Conclusões

O primeiro fruto importante do desenvolvimento deste trabalho foi a possibilidade de realizar a quantificação de ^{226}Ra e ^{228}Ra nos sólidos em suspensão, por intermédio de metodologia de fácil uso. A determinação do nível crítico de detecção do ^{228}Ra assegurou confiabilidade no método empregado, tendo sido verificado que para as amostras de sólidos em suspensão, com pouca quantidade de material disponível para análise, há um aumento nas incertezas determinadas para as atividades, de maneira que em alguns casos foi necessário se calcular a mínima atividade possível de detecção.

O nível piezométrico na área de investigação demonstrou não sofrer uma variação significativa para os períodos chuvoso e seco, o que foi atribuído, em parte, ao fornecimento de água, através de infiltração, por algumas barragens e água acumulada pelo dique da mina de fosfato.

As medidas de pH e Eh feitas no campo e no laboratório exibiram pequenas variações, não se verificando alterações significativas pelo fato da análise ter sido efetuada no laboratório. As águas superficiais e subterrâneas ao serem inseridas em um diagrama Eh-pH definiram uma zona de transição com tendência redutora, com duas amostras possuindo um caráter fortemente redutor (aquífero mais profundo).

A análise para as águas superficiais conduzida de maneira a separar as amostras em dois grupos, um a leste e outro a oeste, de acordo com as drenagens, se mostrou útil para diferenciar as características de cada região. As águas do grupo 1 foram classificadas como sódicas-cloretadas e as do grupo 2 como potássico-bicarbonatadas para as duas etapas de campo. Verificou-se uma diminuição na concentração da maioria dos cátions e ânions analisados durante o período seco, tendo sido as médias para o grupo 1, em sua maioria, maiores que para o grupo 2, para os dois períodos analisados. Também foram identificadas águas exibindo um comportamento intermediário, caracterizando a mistura das águas das duas drenagens.

As águas subterrâneas sulfurosas (fonte Andrade Júnior) foram classificadas como sulfatadas e influenciam outras águas, tendo sido tratadas separadamente das demais amostras.

As águas do aquífero granular apresentaram uma predominância de Na e K para os cátions no período chuvoso, sendo na sua maioria sódico-potássicas no período seco. Para os ânions, foram classificadas como bicarbonatadas nos dois períodos.

Valores elevados foram encontrados para o Ba nas águas superficiais e subterrâneas, principalmente para o período chuvoso. Algumas amostras de água, também, apresentaram valores elevados para o PO_4^{3-} . O Ba e o P são elementos que aparecem em abundância na região, estando o Ba também presente na pluma de contaminação (BaCl_2) existente na área.

Testes estatísticos de correlação entre os parâmetros analisados mostraram que as águas superficiais do grupo 1 (lado leste) apresentaram correlações significativas dos elementos Ba e Na com SO_4 e do Na com Cl. Para as águas subterrâneas correlações significativas foram encontradas entre os elementos Ba e K com SO_4 . O SO_4 se apresenta como um dos possíveis complexantes nas águas.

Para as análises radiométricas não foram obtidas correlações significativas entre as atividades dos sólidos em suspensão e os demais parâmetros analisados. Porém, algumas correlações significativas foram determinadas para as atividades de ^{226}Ra e ^{228}Ra dissolvidos. Por exemplo, para o grupo 1 foram obtidas correlações do Ba e NO_3 com o ^{226}Ra , enquanto que para o grupo 2 foi obtida uma correlação da sílica com ^{226}Ra , e do Cl, Na e sílica com o ^{228}Ra , sugerindo que estes elementos podem estar associados com o rádio em solução.

Determinaram-se maiores atividades de ^{228}Ra do que ^{226}Ra para os sedimentos de fundo, o que se deve à menor mobilidade do ^{228}Ra em relação ao ^{226}Ra . Para o lado leste foram determinadas as maiores atividades de ^{228}Ra e para o lado oeste as maiores atividades de ^{226}Ra . Isto ocorre devido ao lado leste ter uma mineralização de terras raras com maior presença de Th; já o lado oeste drena a mina de fosfato e, também, uma área de rejeitos da mesma mina, onde o U está mais presente.

No geral, a atividade de ^{226}Ra dissolvido é superior à de ^{228}Ra , por ser o ^{228}Ra menos móvel que o ^{226}Ra . Para os sólidos em suspensão das águas superficiais a atividade de ^{228}Ra é superior à de ^{226}Ra para a drenagem do lado leste, que pode estar ligada ao fato de ser esta uma área que contém a maior parte deste nuclídeo nos sedimentos.

A maioria das águas subterrâneas analisadas está na região onde há a predominância de solo laterítico com corpos de rocha fosfática. A porção do aquífero que está a leste, onde se localiza a mineralização de terras raras, não foi analisada neste trabalho, pela impossibilidade de acesso à área.

As maiores concentrações de U, da mesma maneira que para o ^{226}Ra dissolvido nas águas superficiais, foram determinadas para o lado oeste. As razões de

atividade ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$), na sua maioria, são maiores do que a unidade, mostrando uma maior seletividade para o ^{234}U .

Os dados obtidos possibilitaram a determinação do coeficiente de distribuição (Kd) de Ra para a região. Para as águas superficiais do grupo 1, o Kd do ^{226}Ra foi superior ao do grupo 2, ocorrendo para ambos os grupos a diminuição do Kd do ^{226}Ra para o período seco. O Kd geral do ^{226}Ra para as águas superficiais na área é de $6,60 \times 10^{-5} \text{g/cm}^3$. Já o Kd do ^{228}Ra , praticamente, não variou para os dois grupos em relação aos períodos chuvoso e seco. Para o grupo 1 o Kd do ^{228}Ra é superior em, aproximadamente, uma unidade ao do grupo 2. O Kd geral do ^{228}Ra para as águas superficiais da área é de $5,02 \times 10^{-6} \text{g/cm}^3$. Nota-se assim que Kd do ^{226}Ra é superior por um fator de 10 ao Kd do ^{228}Ra , o que confirma a menor mobilidade do ^{228}Ra .

Para as águas subterrâneas, o Kd do ^{226}Ra e do ^{228}Ra diminuem para o período seco. O Kd do ^{226}Ra é cerca de 20 vezes maior que o do ^{228}Ra , mostrando, assim, a maior mobilidade do ^{226}Ra , também para as águas subterrâneas. O Kd geral do ^{226}Ra para estas águas é de $1,64 \times 10^{-4} \text{g/cm}^3$ e o Kd do ^{228}Ra é de $0,80 \times 10^{-5} \text{g/cm}^3$.

Estes resultados sugerem a ocorrência de um maior transporte de Ra pelas águas subterrâneas em relação à águas superficiais, talvez relacionado com o maior tempo de residência das águas subterrâneas, que favorece a ocorrência da transferência de rádio para a fase líquida, em decorrência das interações com os estratos do aquífero.

Como sugestão, para o bom uso das águas superficiais e subterrâneas do Barreiro, é conveniente realizar periódicos monitoramentos hidroquímicos, pois, complexos que mantêm o rádio em solução podem se formar. Além disso, especial atenção deve ser dada às quatro barragens a montante da fonte Dona Beija, uma vez que podem estar fornecendo água ao aquífero. Análises sistemáticas semestrais (uma no período chuvoso e outra no período seco) também devem ser feitas nos sedimentos de fundo dos córregos e barragens. O Córrego do Sal deve ser monitorado de forma especial, pois, é através dele que as águas do Barreiro têm o seu escoamento para outros setores do município. Quanto à radioatividade das águas, sugere-se que análises de urânio, tório, rádio e radônio sejam realizadas para as águas das fontes Dona Beija e Andrade Junior, e que os valores obtidos sejam informados à população por meio de placas indicativas no local.

9. Referências bibliográficas

- ADAMS, J. A. S. & GASPARINI, P. **Gamma-ray spectrometry of rocks**. Amsterdam. Elsevier Publishing Company, 1970. 279p.
- ANDRADE JR., J.F. de. Reconhecimento geológico dos arredores de Araxá e outros pontos de ocorrência de águas minerais. **Geol. e Min. do Brasil**, Bol. 9, 1925.
- BARCELLOS, C. C. , AMARAL, E. & ROCHEDO, E. Radionuclide transport by Poços de Caldas plateau rivers, Brazil. **Environmental Technology**. v. 11, n. 6, p. 533-540, 1990.
- BEATO, D. A. C., VIANA, H. S. & DAVIS, E. G. Avaliação e diagnóstico hidrogeológico dos aquíferos de águas minerais do Barreiro do Araxá, MG – Brasil. Joint World Congress on Groundwater, 1. Fortaleza. **Anais...** Fortaleza, 2000. 1 CD-ROM.
- BENES, P. Migration of radium in terrestrial hydrosphere. **In The Behavior of Radium the Waterways and Aquifers**, IAEA TECDOC 301, p. 117-173, Vienna, 1984.
- BONOTTO, D.M **Aplicações dos dados do fracionamento isotópico $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ nos problemas geoquímicos dos aquíferos de Águas da Prata (SP)**. São Paulo: USP Dissertação de Mestrado. Instituto Astronômico e Geofísico, Universidade de São Paulo, 160p. 1982.
- BONOTTO, D.M. **Aplicações Hidrogeoquímicas dos Isótopos Naturais das Séries do $\text{U}(4n+2)$ e $\text{Th}(4n)$ no Morro do Ferro, Poços de Caldas (MG)**. São Paulo: USP. Tese (Doutorado em Geoquímica) -Instituto Astronômico e Geofísico, Universidade de São Paulo, 378p. 1986.
- 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**. Tese (Livre Docência). Instituto de Geociências e Ciências Exatas, Universidade Estadual Paulista. Rio Claro, 223p, 1996.

BONOTTO, D. M. Implication of groundwater weathered profile interaction to the mobilization of radionuclides. **Journal of South American Earth Sciences**, v. 11, n. 4, p. 389-405, 1998.

BRAGA, J.R.K. & BORN, H. Características geológicas e mineralógicas da mineralização apatítica de Araxá. Congresso Brasileiro de Geologia, 35. Belém, **Anais ...** Belém, SBG, 1988. V. 1, p. 219-226.

CAMPOS, M. J., FRANCA, E. P., LOBÃO, N., TRINDADE, H. & SACHETT, I. Migration of radium from the thorium ore deposit of Morro do Ferro, Poços de Caldas, Brazil. **J. Environ. Radioactivity**, v.3, p.145-161, 1986.

CASTRO, L. O. & SOUZA, J. M. **Estudo de urânio e terras raras associadas ao nióbio de Araxá - MG**. Instituto de Pesquisa Radioativas. UFMG, CNEN, 59p, janeiro de 1970.

CHUKREEV, F. E. **Selection of radiation sources for calibration for gamma-ray spectrometers**. INDC (CCP)-361/L, IAEA, 1994.

CIDADE VIRTUAL/ARAXÁ, disponível em: <<http://www.terra.com.br/cidades/aax>>. Acesso em 21 mar. 2002.

CURRIE, L.A. Limits for qualitative detection and quantitative determination. **Anal. Chem.** v.40, p. 586-593, 1968.

DAVIDSON, M. R. & DICKSON, B. L. A porous flow model for steady state transport of radium in groundwater. **Water Resources Research**, v. 22, n. 1, p. 34-44, 1986.

DICKSON, B. L. Radium in groundwater **In: The environmental behavior of radium**. TECDOC. 310. Vienna: IAEA, p. 335-372, 1990.

DUARTE, C. R. & BONOTTO, D. M. Calibração em energia e concentração de espectrômetro gama para análise de U, Th e K. **Geociências**, v. 19, n. 2, p. 313-319, 2000.

EDGINGTON, D.N. Sediment-water interactions and models for the transport and fate of radionuclides in rivers. **In Sediments and pollution in waterways**, TECDOC-302Vienna IAEA, p. 159-185, 1982.

EG&G Ortec Maestro-32 versão A65-BI. **MCA emulator for Microsoft Windows. Software user's manual**. USA. Ortec 761590 manual revision D-41360596. 1996.

EISENMANN, G. Cation selective glass electrodes and their mode of operation. **J. Biophys** . V.2, p.259, 1962.

EVANS, R. D.; KIP, A. F. & MOBERG, E. G. The radium and radon content of Pacific Ocean waters, life and sediments. **Am. J. Sci.**, v.36, p.241-259, 1938.

FUNTEC (Fundação Centro Tecnológico de Minas Gerais); SECRETARIA DE ESPORTES, LAZER E TURISMO E SECRETARIA DE CIÊNCIA E TECNOLOGIA (Prefeitura de Araxá). **Relatório diagnóstico do conflito ecológico incluindo obras e medidas recomendadas para atenuação do impacto ecológico da mineração**. Araxá, ECOS – Geologia, Consultoria e Serviços LTDA, vol. I e II, 1984.

GODOY, J. M., AMARAL, E. C. S. & GODOY M. L. D. P. Natural radionuclides in Brazilian mineral water and consequent doses to the population. **Journal of Environmental Radioactivity**, n. 53, p. 175-182, 2001.

GROSSI SAD, J. H. & TORRES, N. Geologia e recursos minerais do distrito de Barreiro, Araxá, MG. **DNPM**, 1970.

GROSSI SAD, J. H. & TORRES, N. Geology and mineral resources of the Barreiro Complex, Araxá, Brazil. Simpósio Internacional de Carbonatitos, I. Poços de Caldas. **Anais ... Poços de Caldas**, 1976. p. 307-312.

GUIMARÃES, D. Estudo de algumas rochas relacionadas com as fontes minerais de Araxá e outras. **Ser. Geol . e Min. do Brasil**, Bol. 9, 1925

HACK, **Water Analysis Handbook**. Ed. Hach Company, Loveland, Colorado, 1992.

HANCOCK, G. J. & MURRAY, A. S. Source and distribution of dissolved radium in the Bega River estuary, Southeastern Australia. **Earth and Planetary Science Letters**, n 138, p 145-155, 1996.

HASUI, Y. & CORDANI, U. G. Idades Potássio-Argônio de rochas eruptivas Mesozóicas do Oeste mineiro e Sul de Goiás. Congresso Brasileiro de Geologia, 22. Belo Horizonte. **Anais...** Belo Horizonte, SBG, 1968. p. 139-143.

IAEA – International Atomic Energy Agency, Sediments and pollution in waterways. IAEA – TECDOC 302, Vienna, 1982.

ISSA FILHO, A.; LIMA, P. R. A. S.; SOUZA, O. M. Aspectos da Geologia do Complexo Carbonático do Barreiro, Araxá, MG, Brasil. **Complexos Carbonatíticos do Brasil: Geologia**. CBMM – Companhia Brasileira de Metalurgia e Mineração, São Paulo, p 21-44, 1984.

IYENGAR, M. A. R. The natural distribution of radium. **In. The environmental behaviour of radium**, TECDOC 310. Vienna: IAEA, v. 1, p. 59-128, 1990.

JACOMINO, V. F., BELLINTANI, S. A., OLIVEIRA, J., MAZZILLI, B. P., FIELDS, D. E., SAMPA, M. H. & SILVA, B. Estimates of cancer mortality due to the ingestion of mineral spring waters from a highly natural radioactive region Brazil. **J. Environ. Radioactivity**, v. 33, n. 3, p. 319-329, 1996.

KEY, R. M., STALLARD, R. F., MOORE, W. S. & SARMIENTO, J. L. Distribution and flux of ^{226}Ra and ^{228}Ra in the Amazon River Estuary. **Journal of Geophysical Research**, v. 90, n. C4, p. 6995-7004, 1985.

KU, T. L. & BROECKER, W. S. The uranium-series methods of age determination. **An. Rev. Earth Plan. Sci.**, v.4, p. 347-379, 1976.

LAURIA, D. C. & GODOY J. M. Determinação de U-234, U-238, Th-232, Th-230, Th-228, Ra-228 e Ra-226 em águas minerais do Planalto de Poços de Caldas. **Ciência e Cultura**, v. 40, n. 9, p. 906-908, 1988.

LAURIA, D. C. & GODOY J. M. Origem e transporte de rádio nas águas subterrâneas de Buena (RJ). **Joint World Congress on Groundwater, I**. Fortaleza, Anais ... Fortaleza. 2000, 1 CD-ROM.

LANGMUIR, D. & REISE, A. C. The thermodynamic properties of radium. **Geochim. Cosmochim. Acta**, v. 49, p. 1593-1601, 1985.

LI, Y.H. & CHAN, L.H. Desorption of Ba and ²²⁶Ra from river borne sediments in the Hudson Estuary. **Earth and Planetary Science Letters**, n. 49, p 343-350, 1979.

LIMA, J.L.N. **Implementação de metodologia para mensuração de Rn-222 e sua aplicação no estudo da radioatividade das águas de Águas da Prata (SP)**. Dissertação (Mestrado) Instituto de Geociências e Ciências Exatas, Universidade Estadual Paulista. Rio Claro, 155p, 1993.

LOPES, R. S. **Águas Minerais do Brasil** (Composição, valor e indicações terapêuticas), 2ª edição, Rio de Janeiro, Ministério da Agricultura – Serviço de informação agrícola, 1956, 148p.

LYONS, L. **A practical guide to data analysis for physical science students**. Cambridge, Cambridge University Press, 1991. 95p.

MALANCA, A., REPETTI, M. & MACÊDO H. R. Gros alpha and beta-activities in surface and ground water of Rio Grande do Norte, Brazil. **Appl. Radiat. Isot.**, v. 49, n. 7, p. 893-898, 1998.

MANCINI, L. H. **O rádio no ambiente hídrico do Morro do Ferro, Poços de Caldas (MG)**. Dissertação (Mestrado). Instituto de Geociências e Ciências Exatas, Universidade Estadual Paulista. Rio Claro, 138 p, 1997.

MANCINI, L. H. & BONOTTO, D. M. O ^{226}Ra em águas superficiais e subterrâneas do Morro do Ferro, Poços de Caldas (MG). Congresso da Internacional Sociedade Brasileira de Geofísica, 5. São Paulo. **Anais ...** São Paulo, 1997. V. 2, p. 871-873,.

MANCINI, L. H. & BONOTTO, D. M. Utilização de espectrometria gama para análise de ^{228}Ra nas águas. Congresso Brasileiro de Águas Subterrâneas, 10. São Paulo, **Anais...** São Paulo: Ed.: ABAS, 1998, 1 CD-ROM.

MICHEL, J., KING, P. T. & MOORE, W. S. ^{228}Ra , ^{226}Ra e ^{222}Rn in South Carolina ground water: measurement techniques and isotope relationships. Clemson, Water Resources Research Institute. **Technical Report (95), 57p, 1982.**

MAZZILLI, B., PALMIRO, V., SAUEIA, C. & NISTI, M. B. Radiochemical characterization of Brazilian phosphogypsum, **Journal of Environmental Radioactivity**, n 49, p113-122, 2000.

MOLINARI, J. & SNODGRASS, W. J. The chemistry and radiochemistry of radium and other elements of the uranium and thorium natural decay series. **In The environmental behaviour of radium**, TECDOC 310. Vienna: IAEA, p.11-56, 1990.

MOORE, W. S. High fluxes of radium and barium from the mouth of the Ganges-Brahmaputra River during low river discharge suggest a large groundwater source. **Earth and Planetary Science Letters** , n. 150, p.141-150, 1997.

OKUBO, T., FURUYAMA, K. & SAKANOUÉ, M. Distribution of ^{228}Ra in surface sea water of the East Indian Ocean. **Geochemical Journal**, v. 13, p 201-206, 1979.

OLIVEIRA, J., MAZZILLI, B. P., SAMPA, M. H. O. & SILVA, B. Seasonal variations of ^{226}Ra and ^{222}Rn in mineral spring waters of Águas da Prata, Brazil. **Appl. Radiot. Isot.**, v. 49, n. 4, p. 423-427, 1998.

OLIVEIRA, J., MAZZILLI, B. P., SAMPA, M. H. O. & BAMBALAS, E. Natural radionuclides in drinking water supplies of São Paulo State, Brazil and consequent population doses. **Journal of Environmental Radioactivity**, n. 53, p. 99-109, 2001.

PIRES do RIO, M. A., GODOY, J. M. & AMARAL, E. C. S. ^{228}Ra , ^{226}Ra e ^{210}Pb concentrations in Brazilian mineral waters. **Radiation Protection Dosimetry**, v. 24, n. 1/4, p. 159-161, 1988

RIBEIRO, F. B. ROQUE, A., BOGGIANI, P. C. & FLEXOR, J.M. Uranium and thorium series disequilibrium in Quaternary carbonate deposits from the Serra da Bodoquema and Pantanal do Miranda, Mato Grosso do Sul State, central Brazil. **Appl. Radiot. Isot.**, v. 54, p. 153-173, 2001.

SAD, J.H.G. & TORRES, N. Geology and mineral resources of the Barreiro complex, Araxá, Minas Gerais. **I Simpósio Internacional de Carbonatitos**. Poços de Caldas, Anais do I Simpósio Internacional de Carbonatitos, p. 307-312, 1976.

SEDLET, J. **Radon and Radium. Treatise on analytical chemistry**. Part II - Analytical chemistry of inorganic and organic compounds. Section A: Systematic Analytical chemistry of the elements. Ed. John Wiley & Sons Inc., N.Y., v.4, p.219-367, 1966.

SILVA, A.B. Jazida de nióbio de araxá, Minas Gerais. **Principais depósitos minerais do Brasil**, v-2, cap. XXXV, p. 435-453, 1987.

SILVA, A.B.; MARCHETTO, M.; SOUZA, O. M. **Geology of the Araxá (Barreiro) Carbonatite**. s.n.t. 17 p., 1979.

TAKATA, L. A., ASSIS, J. M. N., IKEDA OBA, C. A., CASSOLA, M. S. & KANH, H. Caracterização tecnológica de tipos de minério de fosfato da jazida da arafétil, Araxá (MG). Encontro Nacional de Tratamento de Minérios e Hidrometalurgia, 14. Salvador. **Anais...** Salvador: ABM, 1990. p. 50-65.

TAYLOR, S. R. Trace element abundances and the chondritic Earth model. **Geochim. Cosmochim. Acta**, v.28, p.1989-1998, 1964.

TONETTO, E. M. **O tório em águas subterrâneas de Águas da Prata (SP)**. Dissertação (Mestrado). Instituto de Geociências e Ciências Exatas, Universidade Estadual Paulista, Rio Claro, 98 p, 1996.

WEBSTER, I. T., HANCOCK, G. J. & MURRAY, A. S. Modeling the effect of salinity on radium desorption from sediments. **Geochimica et Cosmochimica Acta**, v. 59, n. 12, p. 2469-2476, 1995.