

MODELOS DE EXALAÇÃO DE RADÔNIO EM PAISAGENS TROPICAIS ÚMIDAS SOBRE GRANITO

RADON EXHALATION MODELS IN HUMID TROPICAL LANDSCAPES OVER GRANITE

Antonio M. A. Rebelo¹
André V. L. Bittencourt²
Luiz E. Mantovani²

RESUMO

Foram estabelecidas e analisadas as principais relações entre intensidades de exalação de radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn) e os elementos morfológicos e dinâmicos de paisagens tropicais úmidas, com o objetivo de elaborar modelos de exalação de Rn adaptados a este tipo de paisagens, e aplicáveis na escala de pequenos núcleos habitacionais. Em uma vertente sobre rocha granítica com teores normais em U e Th, e caracterizada pela associação Latossolo-Solo Podzólico, os produtos de atuação dos processos supergênicos, com destaque para a transição de latolização em podzolização, e o atual regime hídrico do aquífero freático, foram relacionados aos processos radioativos de geração, emanação e migração de Rn, verificando-se como tais inter-relações afetam a sua exalação nas paisagens. Tal abordagem foi fundamentada nos conceitos de sistema pedológico de transformação e de geoquímica de paisagens, além de conceitos da física e geologia nucleares e elementos climatológicos e hidrogeológicos do macroambiente, num enfoque interdisciplinar, tridimensional e sistêmico. Às vertentes configuradas em paisagens elementares; eluvial, transeluvial e supraqual associam-se diferentes geofomas, tipos e espessuras de solos residuais e radioanomalias com diferentes intensidades e formas de hospedagem de U e de Th. Com base em tais elementos, suas relações espaciais com o sistema freático, e considerando a umidade dos solos na capacidade de campo, as possibilidades de maiores taxas de exalação de Rn, sobretudo ^{222}Rn , são nas paisagens supraqual e transeluvial. Na paisagem eluvial, a despeito da existência de intensas anomalias gama, devido principalmente ao acúmulo de minerais resistatos com U e Th e compostos de Th, os fluxos de Rn são menos significativos. Assim, no contexto enfocado, os produtos da alteração supergênica, organizados num sistema vertente, são materiais em que as taxas de exalação de radônio são mais elevadas do que as medidas na rocha inalterada subjacente. O entendimento do comportamento do U, Th, Ra e Rn no ambiente superficial tornou possível estabelecer modelos previsionais de exalação de Rn adaptados às paisagens elementares, em escalas compatíveis com pequenos núcleos habitacionais ou em unidades residenciais.

Palavras-chave: modelos de exalação de radônio, paisagens tropicais úmidas, processos suergênicos, processos radiotivos, sistema pedológico de transformação.

¹ Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN <rebelo_antonio@hotmail.com>

² Setor de Ciências da Terra da Universidade Federal do Paraná – UFPR
<andre@geologia.ufpr.br>< mantovan@geologia.ufpr.br>

EXTENDED ABSTRACT

The main relationships between radon (^{222}Rn and ^{220}Rn) exhalation intensities and the morpho-dynamic elements of humid tropical landscapes have been established and analyzed, aiming at elaborating Rn exhalation models adapted to this type of landscapes, to be used in the scale of small habitational nuclei. The present research revolved around the understanding of two distinct phases, each one presenting their own processes and time durations. The first one covers the modelling and internal constitution of a drainage basin slopes, during the geologic and pedologic times. The second one refers to the slope morphological system, structure of which is the result of previous processes, allowing for the current radioactive processes of Rn generation, emanation (figure 1), migration and exhalation, some of which affected by rain, temperature, pressure and winds. Such elements have proven to be relevant in the water regimen of the phreatic aquifer.

Multi and interdisciplinary studies about the different areas approached were done, making use of several data, information and concepts from worldwide scientific literature. The focus of the study has been a slope over granite containing normal levels of U and Th, and characterized by the soil association Latosol-Podzolic (figure 2). The analyses were carried out in short spatial-temporal limits, according to the dimensions of the slopes, and, regarding time specifics, the pedologic scale was found to be the most relevant. Several aspects have been evaluated, namely the role of the supergenic processes on the evolution of the landscapes, the impact of this evolution on the efficiency of the radioactive processes mentioned, on the different soils and under different aquifer hydric regimens in these landscapes.

In the studied soil, emphasis was placed on the concept of the transformation pedologic system and on the relative cronology of the main pedogenetic phases involved, namely latolization and podzolization. In the dispersion of radionuclides, fundamental concepts of surface geochemistry have been used, main emphasis on the ones of elementary landscape geochemistry (figure 2), and of element abundance, migration, flows, and geochemical barriers, backed up by the use of Th/U and Us/Ut (exchangeable U/total U) ratios. Moreover, several concepts of nuclear physics, main focus on the ^{238}U and ^{232}Th decay series, and hydrogeologic and climatological elements of the environment have been addressed. In regard to the spatial-temporal dimensions stressed in this study, the chronology of the main pedogeochemical processes responsible for the re-distribution of U and Th, and the nature of their secondary hosting phases, it was assumed that the radionuclides of the series mentioned are in secular radioactive equilibrium. Such an approach allowed for the use of U and Th as indicators of the distribution of Ra, Rn precursor, which, in this study, is symbolized by the notation U and Th (Ra). In the models presented, the supergenic processes configurate the slopes in the eluvial, transeluvial, superaqual and aqual landscapes, this last one not considered in this study. Each of these landscapes is characterized by different geofoms, types and thickness of the residual soils and their permea-porosities, and associated to different radionuclides U and Th (Ra) concentrations and their respective hosting phases, as well as different water regimens of the phreatic aquifer (figure 2).

The eluvial landscape is the place where Latosols mostly occur. In this case, the main U and Th (Ra) anomalies are located on the top of latosolic B horizon, and they are due to the relative accumulation of resistate minerals, insoluble Th compounds, and U and Th fixed to Fe and Al oxihydroxides and clays by adsorption. In this landscape, the aeration zone of the aquifer presents its maximum thickness, and the groundwater flows are vertical downward. In the transeluvial landscape, the dominant soils are the Podzolic, originated from the podzolization of the pre-existent Latosols. Moreover, the Latosol-Podzolic transformation system comprises a second generation of radioanomalies, more intense and with higher proportions of adsorbed U, and resultant from the reworking of the anomalies associated with the Latosols. Such a transforming phase is also responsible for the change in the existant versant slope angle and "permea-porosities", forming a perched sub-system phreatic aquifer in this landscape (figure 2). The main concentrations of U and Th (Ra) are partly relative and partly absolute, and are located on the top of textural B horizon of the Podzolic Soils, in hosting phases similar to the ones from the previous landscape, and containing organic matter as well. The groundwater flows are essentially lateral, the most superficial ones canalized through the A and E pedologic horizons of the perched sub-system aquifer. In the superaqual landscape, the radioanomalies are primarily uraniferous and absolute in nature, with U adsorbed to clays, organic matter and oxides of A0 and A1 horizons of the Hydromorphic Soils (figure 2), the migration of uraniferous solutions occurring in two principal phases. The first one, longer and older than 1 My, took place during latolization. The second phase, younger and affecting more limited geographic areas, occurred during the Latosols podzolization, between 100,000 and 500,000 years, having part of the solutions drained into the current drainage system. In this landscape, the groundwater flows are predominantly lateral during the rainy seasons, and vertical upward during dry seasons.

Hence, the supergenic alteration products, organized on a slope system, are materials in which the rates of radon exhalation are higher than the ones measured on unaffected subjacent rock. Based on the secondary concentrations and hosting phases of U and Th (Ra), on the "permea-porosities" of the soils and

their spatial relationships with the phreatic system, and considering the soil moisture content near the field capacity, the higher rates of Rn exhalation, mainly ^{222}Rn , are likely to happen in Hydromorphic Soils in the supraequal landscape and in Podzolic Soils in transequal landscape (table 1 and 2 and figure 2). This Rn exhalation rates are conditioned by a positive combination between Rn generation and emanation. Exceptions occur in areas under the influence of the current drainage system of the supraequal landscape, where ^{238}U younger than 1 My is in radioactive disequilibrium with their daughters, which causes a negative impact on Rn generation. In the eluvial landscape, despite the existence of high content of U and Th (Ra) associated with the Latosols, due to the accumulation of resistates with U and Th, Th compounds, and U and Th adsorbed in oxihydroxides and clays, the Rn fluxes are less important, and are controlled by the low emanation of most of the hosting phases mentioned (table 1). It is important to note that other soil moisture contents may affect the intensities of Rn fluxes significantly (table 2).

At last the approach which has been used has led to an evaluation of Rn exhalation conditioning factors while referring to humid tropical landscapes. All kinds of parameters, climatic, geochemical, weathering, pedogenetic, morphogenetic and hydrogeologic parameters could be integrated into the scale of elementary landscape slope, and they all can be integrated among themselves and also to the radioactive processes of Rn generation, emanation, migration and exhalation, by means of an interdisciplinary, tridimensional and systemic viewpoint. U, Th, Ra and Rn behaviors have been fully investigated, making it possible to establish provisional models of Rn exhalation in scales compatible to dimensions of small habitational nuclei or even unitary dwellings.

Key-words: radon exhalation models; humid tropical landscapes; supergenic processes; radioactive processes; transformation pedologic system.

INTRODUÇÃO

O objetivo deste estudo é obter modelos previsionais de exalação de radônio (^{222}Rn e ^{220}Rn) adaptados às paisagens tropicais úmidas, suficientemente detalhados para que tenham aplicabilidade, pelo menos, na escala de pequenos núcleos habitacionais. Para isso, serão estabelecidas e analisadas as relações entre os principais elementos morfológicos e dinâmicos resultantes da evolução deste tipo de paisagens, durante os tempos geológico e pedológico, e os atuais processos radioativos de geração, emanação, migração e exalação de Rn, avaliando-se os impactos de tal evolução no funcionamento e eficiência dos processos radioativos mencionados em cada paisagem.

O radônio e seus descendentes são responsáveis por mais de 40% da dose radioativa natural recebida pelos seres humanos no interior de habitações, sendo particularmente nocivos para o sistema respiratório, uma vez que são emissores de partículas alfa de alta energia. Levantamentos efetuados na Europa e Estados Unidos (AKERBLOM et al., 1984; NERO; NAZAROFF, 1984; NERO, 1988; GUNDERSEN et al., 1992; PURTSCHELLER et al., 1995) têm encontrado com frequência residências onde os níveis interiores de radônio situam-se entre 2.000 e 50.000 Bq.m⁻³, quando os níveis aceitáveis, recomendados pela *US Environmental Protection Agency - Usepa*, são da ordem de 150 Bq.m⁻³ (NERO, 1988). Pes-

quisas específicas têm obtido sucesso em relacionar níveis de radônio no solo e no interior das habitações, conduzido pelo ar ou água, com taxas de mortalidade e morbidade elevadas associadas com câncer de pulmão, principalmente (HESS et al., 1979 apud BEAN et al., 1982; NERO, 1988; LIMA; BONOTTO, 1994; ENNEMOSER et al., 1993(a), apud PURTSCHELLER, et al. 1995).

Sabe-se que o Rn é originado nas rochas e solos contendo U e Th, como parte do processo de decaimento radioativo destes radionuclídeos. No entanto, constata-se que a maioria dos levantamentos mundiais tem sido conduzida por critérios estatísticos e político-administrativos, através de varreduras sistemáticas de todas as habitações de uma região, o que tem implicado no investimento de grandes somas (NAZAROFF et al., 1988 (b)). Quando se usaram critérios geológicos, para direcionar os levantamentos, estes basearam-se em modelos litoestruturais, sem a ênfase necessária no papel dos processos supergênicos responsáveis pela evolução das paisagens, a exemplo de Akerblom et al. (1984), Gundersen et al. (1992), Purtscheller et al. (1995), Silva e Mendes (1996), Oliveira et al. (1997) e Apte et al. (1999), entre outros. Embora substratos geológicos potencialmente férteis à liberação de radônio devam ser, como característica básica, enriquecidos em U e Th e fraturados, estas não são, porém, condições suficientes, principalmente em zonas de clima quente e úmido, onde importantes coberturas pedogenéticas residuais cobrem

³ BECQUEREL (Bq) é a unidade de *Atividade* no Sistema Internacional (SI). Um Bq é igual a uma desintegração por segundo (1Bq = 1dps). A unidade histórica de Atividade é o Curie (Ci), igual a 3,7 x 10¹⁰ dps ou Bq (1Ci = 3,7 x 10¹⁰ Bq).

as rochas. Outras propriedades do terreno são fundamentais, como tipo e espessura de solos e sua distribuição espacial, regime hídrico e geometria do aquífero freático por porosidade secundária. Em tal contexto, mesmo rochas com teores normais nos radionuclídeos U e Th podem se transformar em materiais fornecedores de quantidades apreciáveis de Rn, tornando o problema ainda mais complexo.

Assim, a contribuição pretendida neste trabalho envolve a apresentação de uma abordagem capaz de relacionar e integrar, na escala das paisagens elementares de uma vertente, parâmetros climáticos, intempéricos, pedogenéticos, morfogenéticos, hidrogeológicos e geoquímicos, entre si e com os processos radioativos de geração, emanação, migração e exalação de Rn, possibilitando a construção de *modelos previsionais de radônio* adaptados às paisagens tropicais úmidas e funcionais na escala das habitações.

MEIOS E MÉTODOS

Este estudo sobre radônio nas paisagens, de caráter multi e interdisciplinar, compreendeu a utilização de dados, informações, conceitos e modelos disponíveis na literatura científica sobre as várias disciplinas envolvidas. Foi modelado em uma vertente sobre rocha granítica submetida a alteração supergênica em ambiente tropical úmido, ressaltadas áreas de relevo jovem com declividades acentuadas e pouca cobertura pedológica. Tal modelagem se justifica por estarem as rochas graníticas entre as de maior *background* em U e Th, cujas cadeias de decaimento radioativo são as geradoras de Rn, além da sua expressiva ocorrência superficial.

ENFOQUE ESPAÇO-TEMPO

A escala espacial observada é a das vertentes de uma pequena bacia de drenagem, e, no tempo, a escala pedológica é a de maior relevância. Estas escalas de estudo estão de acordo com os modelos pretendidos, que devem ser operacionais em nível de pequenos núcleos habitacionais ou mesmo de unidades residenciais. Nesse particular, Cruz (1985) ressalta que o estudo de vertentes e sua dinâmica atual deve levar em conta limites espaço-temporais curtos. Sob tais limites, uma vertente pode ser considerada como um sistema fechado ou em equilíbrio dinâmico.

Assim, as questões a investigar envolvem, necessariamente, o entendimento de duas fases distintas, cada uma com processos e tempos de atuação próprios. A primeira fase refere-se à modelagem e estruturação interna

das encostas de uma bacia de drenagem, durante os tempos geológico e pedológico, quando, pela atuação dos processos supergênicos, ocorre a diferenciação das paisagens, geração dos solos, constituição do aquífero freático por porosidade secundária e são redistribuídos os radionuclídeos U e Th da rocha subjacente. A segunda refere-se ao "sistema morfológico vertente", cuja estrutura resulta dos processos anteriores, como suporte para o funcionamento dos atuais processos radioativos de geração, emanação, migração e exalação do radônio, processos estes afetados por precipitações, temperatura, pressão e ventos, refletidos no regime hídrico do aquífero freático.

PRINCIPAIS LINHAS TEÓRICAS

As principais linhas teóricas adotadas, a seguir apresentadas, baseiam-se em conceitos que envolvem a evolução das paisagens em contexto tropical úmido, com ênfase no modelamento das vertentes e suas relações com os solos, na constituição do aquífero freático por porosidade secundária e na geoquímica do U e do Th no ambiente superficial. Estão também embasadas em conceitos da física nuclear das cadeias de decaimento do ^{238}U e do ^{232}Th e no comportamento do Rn em materiais geológicos e pedológicos:

Regime Hídrico, Vertentes e Solos dos Trópicos Úmidos - O ritmo do clima tropical úmido é definido pela alternância de duas estações: a chuvosa e a seca. A proporção dos meses secos e sua repartição no ano, geralmente centrada no inverno, difere muito entre as várias regiões tropicais, sendo de interesse direto para esta pesquisa por indicar a umidade contida nos solos e sua variação sazonal, fatores que afetam diretamente as taxas de emanação e migração de Rn, refletindo-se na sua exalação nas paisagens.

Os mecanismos envolvidos na alteração superficial decorrem da presença de um certo número de condições que caracterizam o meio evolutivo, em particular das características climáticas, litológicas, de relevo, físico-químicas e tempo (MELFI; PEDRO, 1977; 1978). Nesta pesquisa, o enfoque recai sobre os solos, em cujo estudo são fundamentais os conceitos de catenas e de toposequências, por serem estes os produtos tangíveis da atuação do conjunto dos processos supergênicos.

De acordo com as classificações usadas em levantamentos pedológicos no Brasil (Comissão de Solos 1960, CAMARGO et al., 1987), os solos de maior expressão geográfica na zona intertropical brasileira congregam os com horizonte B latossólico e os com horizonte B textural. A ocorrência do sistema de transformação Latossolo-Solo Podzólico (BOULET et al., 1993), nas mais variadas áreas geográficas dos trópicos úmidos, tem sido

demonstrada por inúmeros levantamentos. Juntos, Latossolos e Solos Podzólicos constituem mais de 80% de todas as coberturas residuais brasileiras (MELFI; PEDRO, 1977; 1978; CARVALHO, 1995). Segundo Vidal-Torrado et al. (1999), a transição lateral de Latossolos para Podzólicos, de montante para jusante nas vertentes, é uma das mais freqüentes na paisagem tropical.

O conjunto de evidências demonstra que este sistema pedológico corresponde aos últimos estágios da história das paisagens, resultando da transformação de Latossolos, pré-existentes, em Solos Podzólicos (BOULET et al., 1993). Com base em extrapolações e em evidências indiretas, apresentadas por inúmeros autores, neste trabalho, para todos os efeitos, considera-se uma idade mínima de aproximadamente um milhão de anos (1 Ma) para os Latossolos, desde o momento em que as principais propriedades pedológicas de um perfil bem desenvolvido tenham atingido o equilíbrio dinâmico e, similarmente, entre 100.000 e 500.000 anos para os Solos Podzólicos.

Assim, a utilização isolada dos sistemas de classificação de solos existentes não é suficiente para a compreensão da evolução de uma paisagem no ambiente climático tropical úmido (LUCAS; CHAUVEL, 1992; BOULET et al., 1993; RUELLAN; DOSSO, 1993). Em tal perspectiva, nesta pesquisa, os procedimentos de análise enquadram-se no que preceitua a *análise estrutural da cobertura pedológica* (BOCQUIER; 1973; BOULET; 1978 apud SALOMÃO, 1994). Além da diferenciação vertical dos horizontes de solos (perfil de solos), também é considerada a diferenciação horizontal.

Aqüífero Freático por Porosidade Secundária - O aqüífero freático contido nas coberturas de alteração sobre granitos em ambiente tropical úmido, em geral, tem porosidade total elevada e porosidade útil baixa. Tendo em vista a sazonalidade das precipitações, este tipo de aqüífero apresenta oscilações amplas e bruscas do nível freático, consideráveis volumes de água retidos por forças eletrostáticas e capilares, e grande importância relativa dos processos de capilaridade e evapotranspiração no balanço anual (SCHOELLER, 1962; LELONG, 1966; CUSTODIO; LLAMAS, 1983). Em áreas de ocorrência do sistema de transformação Latossolo-Solo Podzólico, a podzolização dos Latossolos, na parte intermediária das vertentes, leva ao desenvolvimento de um subsistema aqüífero suspenso.

Estes são aspectos importantes que possibilitam entender a influência do regime hídrico do aqüífero freático na exalação de Rn em cada uma das paisagens consideradas.

Fases Hospedeiras e Geoquímica Superficial do U e do Th - Em rochas graníticas comuns, os teores de U são da ordem de 4 ppm e os de Th de 12 a 18 ppm, sendo a razão Th/U ao redor de 4. Em geral estes

radionuclídeos estão distribuídos por diferentes fases minerais, sendo a contribuição mais importante a parcela do U e do Th contida nos minerais acessórios, como zircão, esfeno e monazita, que em algumas rochas chegam a conter mais de 85 % de todo o U (GUTHRIE; KLEEMAN, 1986). Parcela considerável de U associa-se às fases intersticiais nos últimos estágios da alteração deutérica, e, também, no início do intemperismo, sendo mínima a participação do U e do Th associados aos principais minerais formadores de rochas (RAGLAND et al., 1967; TIEH et al., 1980; GUTHRIE; KLEEMAN, 1986).

Durante a alteração superficial, o comportamento geoquímico do U e do Th é determinado basicamente pelas proporções relativas das suas diferentes fases hospedeiras primárias e respectivas estruturas mineralógicas. Em ambiente oxidante, em geral o Th^{+4} permanece inalterado e imóvel enquanto o U^{+4} oxida-se, formando o íon uranila $(UO_2)^{2+}$, o que lhe confere grande mobilidade geoquímica em tal ambiente. No entanto, nas paisagens além do potencial iônico, a mobilidade efetiva de um elemento-traço depende da presença de elementos tipomórficos, o que pode significar mobilidades variadas (SAMAMA, 1971; ROSE et al., 1979). Então, os parâmetros do solo de maior importância na dispersão química dos elementos são o pH, Eh, matéria orgânica, argilo-minerais e óxidos de Fe, Al e Mn, estes elementos tipomórficos comuns em produtos de alteração de rochas silicatadas em clima tropical úmido.

Na concepção adotada nesta pesquisa para o entendimento da dispersão superficial do U e do Th, a utilização do conceito de paisagem geoquímica elementar é de fundamental importância. Segundo Polynov (1951 apud FORTESCUE, 1980), há três tipos elementares de paisagens, que geralmente ocorrem interligadas na mesma área ou região. Paisagem eluvial, terrestre, onde o nível freático ocorre sempre abaixo da superfície topográfica do terreno. Supraqual, onde o nível freático está próximo da atual superfície topográfica e, aqual, onde a superfície do terreno encontra-se abaixo do nível da água, esta não sendo aqui considerada. Glazovskaya (1963 apud FORTESCUE, 1980) considera uma paisagem com características intermediárias entre as paisagens eluvial e supraqual de Polynov, denominada de transeluvial.

Além desses, são utilizados os conceitos de urânio total (Ut), urânio fixo (Uf) e urânio solúvel (Us). O Ut equivale à soma do Uf e Us, este, ao contrário do Uf, é facilmente extraível das amostras em função da fraca ligação com seus hospedeiros. Com base em Vinogradov (1959), a utilização das razões Th/U e Us/Ut podem nos fornecer idéias quantitativas da remobilização do U num determinado ambiente ou material, permitindo inferências a respeito das principais fases fixadoras de U, além do Th, durante a evolução das paisagens.

Então, a distribuição do U e do Th durante a evolução das paisagens foi analisada tendo por base os conceitos apresentados e os de abundância de elementos, migração, fluxos e barreiras geoquímicas, conceitos clássicos da geoquímica de superfície.

U e Th (Ra) - Tendo em vista as dimensões espaço-temporais ressaltadas neste estudo, a cronologia dos principais processos pedogeoquímicos envolvidos na evolução das paisagens e redistribuição do U e do Th, e natureza das fases hospedeiras secundárias, é assumido que os radionuclídeos das cadeias de decaimento do U e do Th estão em equilíbrio radioativo secular, um caso limite de equilíbrio radioativo, no qual a atividade do pai não cai significativamente durante muitas meias-vidas do filho. Tal abordagem permite utilizar o U e o Th como indicadores da distribuição do Ra, precursor do Rn, o que no texto é simbolizado pela notação U e Th (Ra), embora U e Th não sejam os precursores diretos do Ra. Esta opção é vantajosa, pois no caso do U e do Th, diferentemente do Ra, dispõe-se de vasta literatura científica sobre o seu comportamento geoquímico, tanto no ambiente endógeno como superficial, o que permite dar maior robustez aos estudos sobre a distribuição geoquímica superficial dos radionuclídeos envolvidos. No contexto enfocado, desequilíbrio radioativo significativo pode ocorrer em locais específicos, onde a deposição de ²³⁸U é mais recente que 1 Ma, com importantes reflexos nas intensidades de geração de Rn (REBELO, 2000).

Radônio - Os isótopos de radônio de maior interesse geológico, ambiental e sanitário, são o ²²²Rn e o ²²⁰Rn. Formado na cadeia do ²³⁸U, pelo decaimento do ²²⁶Ra, o ²²²Rn é o isótopo de radônio de maior relevância por ter a meia-vida mais longa, 3,8 dias. O ²²⁰Rn, também chamado torônio, embora seja gerado em quantidades expressivas, neste caso pelo decaimento do ²²⁴Ra da cadeia do ²³²Th, quantidades substancialmente menores alcançam a atmosfera devido à sua curta meia-vida, 55,6 segundos, que limita a distância que o mesmo pode percorrer antes de decair.

A taxa de geração de Rn num ponto qualquer depende da concentração e decaimento do Ra. No processo de decaimento do Ra, o Rn movimenta-se no meio onde foi gerado (figura 1), com deslocamentos da ordem de nanômetros (nm = 10⁻⁹ m) chamado *recuo alfa*. A *emanação* devida ao recuo alfa é o principal mecanismo de liberação de radônio de materiais geológicos e pedológicos, de modo que os outros mecanismos podem ser negligenciados (BOSSUS, 1984; SEMKOW, 1990; GREEMAN; ROSE, 1996). Sabe-se que os isótopos de Rn gerados, sendo gases inertes, tendem a escapar dos sólidos na fase gasosa, mas somente uma fração do que foi gerado entra nos poros do material hospedeiro. Esta fração é conhecida por

vários nomes: taxa efetiva de geração, taxa de emanação, coeficiente de emanação, poder de emanação (Ci.g⁻¹.s⁻¹ ou Bq.Kg⁻¹.s⁻¹ no SI), taxa de exalação ou fluxo (Bq.m⁻².s⁻¹ no SI), fração ou razão de emanação (%). Quanto menor é o tamanho das partículas maior é a superfície específica, e maior é o poder de emanação dos materiais portadores de Ra. Por outro lado, as altas taxas de emanação de Rn de materias superficiais, além do teor, são devidas à distribuição do Ra próximo à superfície dos materiais portadores. Além destes fatores, o conteúdo de umidade das amostras tem um grande impacto nos coeficientes de emanação (MEGUMI; MAMURO, 1974; SEMKOW, 1990; GREEMAN; ROSE, 1996).

A *permeabilidade* está entre as características físicas mais importantes condicionantes da migração do Rn no solo. A umidade interfere na permeabilidade dos solos ao fluxo de ar. Esta não é afetada significativamente quando os teores de umidade situam-se abaixo da capacidade de campo do solo considerado. Havendo excesso de umidade pode haver bloqueio dos poros e conseqüentemente impedimento da migração do Rn, afetando a sua exalação nas paisagens, situação que pode variar em resposta às variações meteorológicas, em escala sazonal, diária ou mesmo horária (SEMKOW, 1990). A migração de Rn através de um solo seco, ou com pouca umidade, ocorre por uma combinação dos processos de *difusão molecular* e *fluxo convectivo* (NAZAROFF et al., 1988 a, b; GUNDERSEN et al., 1992). A difusão molecular é o processo de migração de Rn dominante em solos silticos a argilosos, de baixa permeabilidade, podendo-se desconsiderar, neste caso, o mecanismo de convecção. Por outro lado, o processo de fluxo convectivo tende a

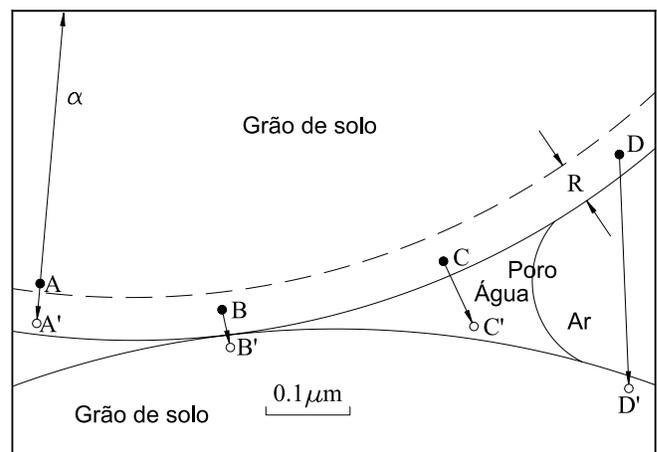


Figura 1: Geração de Rn, trajetórias possíveis e emanação devidas ao recuo alfa do Rn em grãos de solo e para os poros (A-A', B-B', C-C' e D-D'), onde: • = átomos de ²²⁶Ra; ° = átomos de ²²²Rn, e R = alcance de recuo do Rn (Nazaroff et al. 1988b). Rn generation, possible trajectories and emanation due to Rn alpha recoil in grains of soil and towards the pores (A-A', B-B', C-C' and D-D'), where: • = ²²⁶Ra atoms; ° = ²²²Rn atoms, and R = Rn recoil range (Nazaroff et al. 1988b).

dominar em solos arenosos ou com material rudáceo, muito permeáveis. Havendo percolação, parte considerável do Rn é transportada pela água.

Neste trabalho o termo exalação, ou fluxo, é usado no contexto de macroescala, na liberação de Rn da superfície terrestre para a atmosfera. O conceito de emissão aplica-se a grãos individuais ou pequenas amostras (SEMKOW, 1990).

RESULTADOS

SÍNTESE EVOLUTIVA DO SISTEMA VERTENTE

A associação Latossolo-Solo Podzólico nas vertentes dos trópicos úmidos caracteriza um sistema pedológico de transformação, sendo os Solos Podzólicos derivados da transformação dos Latossolos (BOULET et al., 1993). Em tal sistema, com base em dados dos levantamentos de solos efetuados no Brasil, os Latossolos em geral ocorrem nas superfícies mais estáveis e elevadas das vertentes, onde as declividades situam-se entre 0 e 8 % (paisagem eluvial), enquanto os Solos Podzólicos dominam as altitudes intermediárias, em superfícies mais jovens, onde são comuns declividades entre 8 e 45 %

(paisagem transeluvial). Embora vinculados ao sistema vertente como um todo, os produtos das transformações mencionadas, decorrentes da podzolização, estão contidos, *grosso modo*, nos limites da paisagem transeluvial, com relações espaço-temporais específicas, e onde se verifica um forte controle dos parâmetros locais do meio-físico. Na paisagem supraqual ocorrem Solos Hidromórficos (figura 2).

Durante a evolução das paisagens, os minerais resistentes contendo U e Th tendem a concentrar-se principalmente na paisagem eluvial, juntamente com compostos insolúveis de Th. A parcela do U extraível é mobilizada para a solução do solo, ficando, no entanto, sujeita às condições de Eh, pH, presença ou ausência de elementos tipomórficos e dos fluxos da água subterrânea, resultando em distintas concentrações, ou abundâncias, nos materiais das diferentes paisagens. Este padrão de distribuição é válido para a fase de latolização (pH entre 5 e 8) sofrida pelo regolito, padrão que, entretanto, pode ser redesenhado por processos posteriores de podzolização (pH < 5) dos Latossolos. Então, uma nova distribuição ocorre, principalmente nos limites da paisagem transeluvial onde estes processos são mais efetivos, remobilizando inclusive os resíduos com U e Th e compostos de Th.

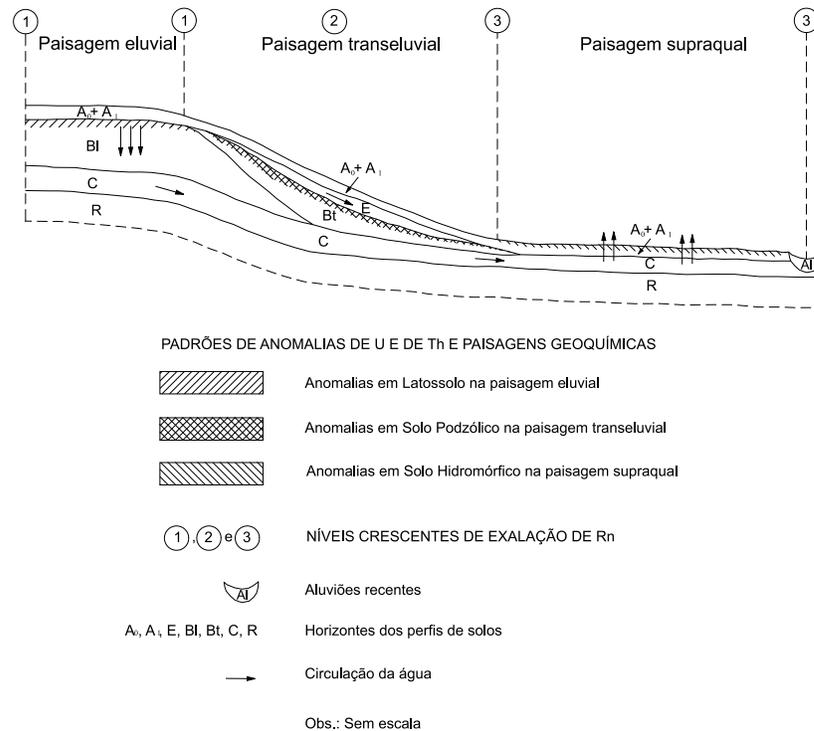


Figura 2: Relações entre sistema de transformação Latossolo-Solo Podzólico, paisagens geoquímicas, padrões de anomalias de U e de Th e intensidades relativas de exalação de Rn, numa vertente modelada em clima tropical úmido sobre granito (REBELO, 2000). *Relationships between the Latosol-Podzolic transformation system, geochemical landscapes, U and Th anomalies patterns, and relative intensities of Rn exhalation, on a slope over granite in humid tropical climate (REBELO, 2000).*

O aquífero freático por porosidade secundária, ausente no início da alteração supergênica, atinge sua máxima evolução durante a fase pedogenética do intemperismo químico. Sua configuração externa, organização e propriedades físicas internas são as mesmas dos elementos das paisagens onde ocorre. Sua zona de aeração é mais espessa na paisagem eluvial, tornando-se mais delgada, ou mesmo desaparecendo, na paisagem supraqual, onde o nível freático aflora ou está muito próximo da superfície. Na paisagem transeluvial, a podzolização dos Latossolos impõe alterações significativas nas permoporosidades dos materiais pedológicos existentes, levando ao desenvolvimento de um subsistema aquífero suspenso, com grande grau de independência em relação ao aquífero principal. Esses aquíferos apresentam fluxos e regimes hídricos diferentes, principalmente durante a época de estiagem, podendo, no entanto, operar em conjunto durante a estação das chuvas.

Então, como resultado da atuação dos processos supergênicos, a evolução do sistema vertente culmina com a associação entre diferentes paisagens geoquímicas, tipos e espessuras de solos, diferentes características de modelado, diferentes configurações do aquífero freático por porosidade secundária e diferentes tipos e intensidades de anomalias de U e de Th (Ra).

ELEMENTOS MORFOLÓGICOS E DINÂMICOS DAS PAISAGENS – GERAÇÃO E EMANAÇÃO DE RADÔNIO

A seguir são descritos os principais elementos morfológicos e dinâmicos de cada uma das paisagens consideradas, destacando os aspectos mais importantes

que afetam a *geração* e *emanação* de Rn. Em item posterior, com base no regime hídrico do aquífero freático, descreve-se as possibilidades da *migração* do Rn emanado para os poros, entre as diferentes paisagens individuais até sua *exalação*.

PAISAGEM ELUVIAL

A paisagem eluvial é a principal área de ocorrência dos Latossolos. Nesta paisagem, os fluxos aquosos predominantes são verticais descendentes, através do horizonte B latossólico, com boa permeabilidade, e a zona de aeração do aquífero exibe aí sua máxima espessura.

O ambiente geoquímico acima do nível freático é francamente oxidante e o pH é ácido, sendo menos oxidante e menos ácido em profundidade, na zona de oscilação do nível freático. Nesta paisagem, as principais concentrações anômalas de U e de Th (Ra) ocorrem no topo do horizonte B dos Latossolos, sendo devidas, sobretudo, à acumulação de minerais resistentes contendo U e Th, compostos insolúveis de Th, e U e Th fixados por adsorção a oxihidróxidos de Fe, Al, Mn e argilas. Concentrações secundárias podem estar disseminadas pelo volume do referido horizonte. As principais anomalias são de caráter dominante residual, com baixa razão Us/Ut e alta Th/U. Comumente se caracterizam por intensas emissões gama, pois os minerais resistentes, em geral, encerram concentrações muito elevadas de U e de Th. Tais informações são confirmadas por dados de inúmeros trabalhos em vários países, com destaque para Vinogradov (1959), Adams e Richardson (1960), Ragland et al. (1967), Langmuir (1978), Weijden e Weijden (1995), Dickson e Scott (1997), Viers et al. (1997) e Wilford et al. (1997), entre outros.

Tabela 1: Estimativa dos níveis relativos de geração e emanação de Rn em solos residuais de paisagens tropicais úmidas sobre granito com teores normais de U e Th (Ra), considerando-se o intervalo de umidade dos solos próximo à capacidade de campo. *Estimate relative levels of Rn generation and emanation in residual soils of humid tropical landscapes over granite with normal U and Th (Ra), considering the soil moisture near the field capacity.*

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

Fonte: Rebelo (2000)

Assim, tendo em vista que a maior parte dos radionuclídeos concentrados na paisagem eluvial está aprisionada em estruturas mineralógicas densas e fechadas, estes muito pouco contribuem para as taxas de emanação de Rn, o que, no entanto, ocorre a taxas maiores ao longo do corpo do referido horizonte, em níveis mais profundos. Aí é maior a proporção de U livre, adsorvido em argilas e colóides de Fe e Al, o que resulta em mais Rn emanado para os poros. Ou seja, a geração de Rn no topo do B latossólico é alta, com uma participação muito significativa do ^{220}Rn , porém a emanação é baixa (tabela 1).

PAISAGEM TRANSELUVIAL

A paisagem transeluvial é o local preferencial de ocorrência de Solos Podzólicos, que exibem horizontes A e E arenosos e permeáveis e B textural (Bt) de baixa permeabilidade. Aqui ocorre um subsistema aquífero freático suspenso, onde os fluxos são predominantemente laterais, fortemente canalizados através dos horizontes A e E.

O ambiente geoquímico é oxidante nos horizontes mencionados, gradando para redutor a partir do topo do Bt para as partes mais profundas, onde são maiores os níveis de pH. As anomalias de U e de Th (Ra), por resultarem do retrabalhamento das partes associadas aos Latossolos, durante a podzolização, e condicionadas agora por um ambiente geoquímico mais favorável, apesar de exibirem fases hospedeiras similares, acrescidas de matéria orgânica, apresentam teores mais elevados nesses radionuclídeos e maior proporção de U livre (Us) em relação ao total (Ut). Processos de queluviação e eluviação-iluviação de material radioativo mobilizam tanto o U associado aos óxidos de Fe e Al e argilas, como os minerais resistatos contendo U e Th, além dos compostos insolúveis de Th, resultando em horizontes A e E depletados nesses radionuclídeos, ou com fracas concentrações se os processos foram parciais. A principais anomalias de U e de Th situam-se no topo do Bt e caracterizam-se por Us/Ut superior e Th/U inferior às mesmas razões nos Latossolos. Em geral, as contagens gama no topo do Bt são muito intensas, sendo que anomalias de menor intensidade podem ocorrer disseminadas pelo corpo do referido horizonte. Estas informações são corroboradas por dados dos autores citados na paisagem anterior e em dados de Tieh et al. (1980), Borovec et al. (1979) e Borovec (1981).

Assim, com base no apresentado, no topo do horizonte B textural dos Solos Podzólicos da paisagem transeluvial, a geração de Rn é muito alta e a emanação é alta (tabela 1).

PAISAGEM SUPRAQUAL

Nesta paisagem, a zona de aeração do aquífero é pouco espessa ou ausente, e o nível freático aflora ou está a pequena profundidade. Os fluxos são predominantemente laterais na época das chuvas e verticais ascendentes, pela conjugação dos processos de capilaridade e evaporação, durante a época de estiagem. A zona de transição desta paisagem para a transeluvial é o local onde o sistema aquífero freático principal da vertente e o subsistema suspenso estão inter-relacionados.

O ambiente geoquímico é redutor pela existência de matéria orgânica (MO) e saturação hídrica freqüente dos solos. O pH é em geral neutro a alcalino, sobretudo em regiões subúmidas, podendo, no entanto, ser localmente ácido influenciado pela presença de ácidos húmicos. Além da MO ocorrem fases argilosas e compostos de Fe com alta capacidade de troca catiônica, conjunto de fatores favoráveis à fixação por adsorção do U (ROSE et al., 1979). Tanto a paisagem eluvial como a transeluvial, durante suas histórias evolutivas, contribuíram com soluções uraníferas para o enriquecimento em U da paisagem supraqual. As anomalias desta paisagem são essencialmente uraníferas, associadas aos horizontes A0 e A1 dos Solos Hidromórficos e com a maior parte do U fixado por adsorção à superfície das fases hospedeiras, principalmente MO, argilas e óxidos metálicos, resultando numa alta relação Us/Ut, que tende à unidade, e baixa de Th/U.

Desequilíbrio radioativo entre os radionuclídeos da série do ^{238}U , com reflexos negativos na intensidade de geração de Rn e das emissões gama, pode ocorrer em áreas geograficamente localizadas nas imediações da atual rede de drenagem nesta paisagem. Isto deve-se à pouca idade de deposição do ^{238}U nesses locais, durante a podzolização dos Latossolos, entre 100.000 e 500.000 anos. O gradiente hidráulico elevado do subsistema aquífero suspenso na paisagem transeluvial, condicionado por um horizonte B textural (Bt) inclinado e pouco permeável, condiciona fluxos laterais fortemente canalizados através dos horizontes A e E dos Solos Podzólicos, essencialmente arenosos e com boa permeabilidade, direcionando o transporte do U acima mencionado (REBELO, 2000).

Embora este tipo de anomalias, em geral, não se caracterize por apresentar altos teores de U e contagens gama elevadas, contribui significativamente para a taxa de emanação de Rn, tendo em vista que a adsorção é a principal forma de hospedagem do U. Nesta paisagem, associada aos solos hidromórficos, a geração é média e a emanação é muito alta (tabela 1).

MIGRAÇÃO E EXALAÇÃO DE RADÔNIO NAS PAISAGENS

A partir das anomalias de U e de Th em materiais pedogenéticos, a *migração* do radônio gerado e emanado próximo à superfície é governada pela sua própria *difusão* e/ou *convecção* e pelos movimentos da água do aquífero freático. No ambiente tropical, com estações contrastadas, a umidade dos solos interfere profundamente no ciclo do Rn. Se por um lado favorece a taxa de emanação, por outro lado interfere na permeabilidade dos solos ao fluxo de ar, afetando a sua difusibilidade e convecção, que são negligenciáveis em solos saturados e efetivas em solos secos refletindo-se, ao final, na taxa de exalação de Rn nas paisagens.

Solos saturados têm parcelas de Rn transportado pela água. No caso enfocado, intemperismo de granitos em ambiente tropical úmido, o principal fluxo migracional dos fluidos, água e radônio, deve ocorrer através dos grandes poros dos horizontes A, B e C dos Latossolos na paisagem eluvial, e A, E e C dos Solos Podzólicos na paisagem transeluvial. Como os horizontes mencionados permitem uma boa circulação de fluidos, no caso da paisagem eluvial

os fluxos se processam, sobretudo, através de percolação vertical descendente até atingirem a superfície freática. A partir daí, os fluxos são laterais no sentido das paisagens a jusante, em posições menos elevadas da vertente. Nos Solos Podzólicos o horizonte B é argiloso e pouco permeável, e os fluxos de fluidos são predominantemente laterais através dos horizontes A, E e C, no sentido das paisagens supraqual e aqual. A presença na paisagem transeluvial de um horizonte B textural impede o transporte vertical do radônio gerado abaixo desse horizonte, impelindo o gás a mover-se lateralmente através do regolito. Nos horizontes A e E arenosos, que ocorrem na parte superficial das encostas, a percolação só é possível na época das precipitações (figura 2). Na paisagem supraqual, quando os solos não estão saturados, a migração de Rn e água associados a esta zona do sistema freático, além do processo de difusão gasosa, ocorre por difusão de vapor, resultado da combinação dos mecanismos de capilaridade e evaporação, efetivos a partir do final das precipitações. Nesta paisagem a migração ascendente de Rn em maiores proporções, e sua exalação ocorre após o fim das chuvas, com o início da evaporação. Com os solos saturados é improvável qualquer manifestação superficial significativa de Rn (tabela 2; figura 2).

Tabela 2: Influência do regime hídrico do aquífero freático nos processos de emanação, migração e exalação de Rn. Aplicação a paisagens tropicais úmidas sobre rocha granítica, caracterizadas pela associação Latossolo-Solo Podzólico. *Influence of the water regimen of the phreatic aquifer in the Rn emanation, migration and exhalation processes; application to humid tropical landscapes over granite rock, and characterized by the Latosol-Podzolic soil association.*

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

Fonte: Rebelo (2000)

Em épocas em que os níveis de umidade são iguais ou ligeiramente inferiores à capacidade de campo, que é a situação real mais comum, a movimentação de Rn processa-se predominantemente por difusão e/ou convecção, tanto na paisagem eluvial como transeluvial. Na paisagem supraqual, nestes intervalos de umidade, os processos de capilaridade/evaporação têm sua máxima efetividade.

Em intervalos de umidade próximos à secura, a efetividade dos processos de difusão e convecção de Rn é máxima, a percolação é nula e os mecanismos de capilaridade/evaporação não são mais efetivos, sendo a migração do Rn devida exclusivamente à sua própria difusão nas paisagens eluvial e supraqual e por convecção e difusão na paisagem transeluvial, através das encostas podzolizadas.

De acordo com o contido na tabela 2, em intervalos de umidade próximo à saturação, apesar da emissão de Rn ser máxima, a exalação permanece em níveis mínimos, devendo ocorrer somente através da encosta podzolizada na paisagem transeluvial, associada principalmente com a drenagem lateral da água de percolação. Isto porque, nesse regime, o aquífero tem a superfície freática elevada, sendo a encosta com horizontes A e E arenosos o local preferencial de drenagem desse subsistema freático. Quando os solos se encontram na capacidade de campo, a emissão é intensa e a exalação ocorre em níveis intensos nos solos podzolizados da encosta e na zona dos solos hidromórficos, e com menor intensidade nos Latossolos. No primeiro caso a migração é condicionada principalmente pela associação dos processos de difusão e convecção através dos horizontes A e E, que são permeáveis. No segundo caso, o fator predominante na migração e exalação do Rn é a conjugação dos fenômenos de capilaridade e evaporação que, na paisagem supraqual e durante a estiagem, são muito efetivos e predominam. Adicione-se a isso que a percolação de águas através do sistema vertente capta radônio em diferentes horizontes das paisagens eluvial e transeluvial e o transporta, principalmente através do horizonte C, até a supraqual. Em solos próximos à secura, se a emissão for mínima, a exalação também o será. Neste caso a migração do Rn é fundamentalmente controlada por difusão nos setores eluvial e supraqual e convecção e difusão no transeluvial.

Face ao exposto, numa vertente modelada em clima tropical úmido sobre rocha granítica, contendo teores normais dos radionuclídeos U e Th, e revestida de solos residuais, as maiores probabilidades de ocorrência dos fluxos de Rn mais intensos se verificam nas paisagens supraqual e transeluvial, e as menores na eluvial. Nos limites da paisagem eluvial, a grande espessura de solos,

a profundidade relativamente alta da zona de oscilação do nível freático, onde deve ser maior a proporção de U adsorvido, e a pequena taxa de emissão dos minerais resistentes com U e Th, mais superficiais, constituem-se em fatores capazes de condicionar a baixa exalação do ^{222}Rn e do ^{220}Rn . É, no entanto, a região onde o ^{220}Rn deve apresentar as manifestações mais significativas, tendo em vista a concentração de Th, seu precursor primordial, nos níveis superiores do perfil. Ainda assim, devido ao seu diminuto tempo de meia-vida, 55s, os fluxos desse radioisótopo são pouco intensos. Nas demais paisagens o ^{222}Rn é o dominante. Ressalvas devem ser feitas para áreas nas adjacências da atual rede de drenagem da paisagem supraqual, onde pode haver desequilíbrio radioativo entre os membros da série do ^{238}U , afetando negativamente a exalação de Rn, devido à pouca idade de deposição, inferior a 1 Ma, do ^{238}U nesses locais.

Assim, atribuindo-se nível de risco 1, com relação à intensidade dos fluxos de Rn, à paisagem eluvial, à parte mediana da paisagem transeluvial deve ser atribuído 2 e à paisagem supraqual nível 3 (figura 2).

DISCUSSÃO

Os principais estudos com fundamentação geológica existentes sobre radônio (AKERBLOM et al., 1984; NERO; NAZAROFF, 1984; NAZAROFF et al., 1988 a, b; NERO, 1988; GUNDERSEN et al., 1992; PURTSCHELLER et al., 1995; HUDAK, 1996; SILVA; MENDES, 1996; CHOUBEY; RAMOLA, 1997; SHIRAV; VULKAN, 1997, APTE et al., 1999, entre outros), foram executados sem considerar elementos importantes das paisagens. A maior parte dos levantamentos citados foi executada em escala regional, com base em elementos litoestruturais, consubstanciados por dados radiométricos, estatísticos sobre Rn e pelas principais características físicas dos solos, resultando em modelos de difícil aplicabilidade em escalas locais. A principal lacuna constatada em termos de aplicação do conhecimento científico diz respeito à redistribuição dos radionuclídeos U e Th (Ra) das rochas durante a evolução das paisagens. Tal alteração distributiva não se processa isoladamente, mas de forma concorrente com o conjunto de processos que modela as paisagens, forma os solos e constrói o aquífero freático por porosidade secundária. São todos elementos geneticamente relacionados e com papel importante no ciclo do Rn no solo, cujas relações só podem ser verificadas de maneira consistente através de pesquisas interdisciplinares.

Um dado importante e muito usado em estudos sobre Rn, num determinado local ou região, é a concentração de Ra obtida por derivação de dados de eU e eTh

extraídos de levantamentos gamaespectrométricos, aéreos ou terrestres. Nesses estudos, os dados radiométricos têm sido usados em bruto, como em Akerblom et al. (1984), Nero e Nazaroff (1984), Gundersen et al. (1992) e Apte et al. (1999), entre outros, sendo relacionados diretamente com as rochas subjacentes, e não com as suas coberturas residuais, cuja evolução, em ambiente tropical úmido leva a uma redistribuição profunda do U e do Th (Ra). Desse processo resultam padrões de distribuição dos radionuclídeos, e radioanomalias, muito diferentes daqueles da rocha original (ADAMS; RICHARDSON, 1960; SAMAMA, 1971; GRANIER, 1973; LANGMUIR, 1978; ROSE et al., 1979; FORTESCUE, 1980; TIEH et al., 1980; GUTHRIE; KLEEMAN, 1986; CARVALHO, 1995; VIERS et al., 1997, entre outros). As mencionadas coberturas são as verdadeiras fontes das emissões gama, como demonstram com muita propriedade Silva (1994), Dickson et al. (1996), Dickson e Scott (1997), Wilford et al. (1997) e Souza (1998). Estabelecer uma relação direta entre a concentração de Ra, obtida conforme mencionado, e possíveis fluxos de Rn no solo, pode levar a imprecisões consideráveis nas paisagens elementares. De fato, em geral, as anomalias gama mais facilmente detectáveis, pela sua posição topográfica elevada, afloramento e intensidade, ocorrem na paisagem eluvial. Estas anomalias, na posição indicada, como visto, contribuem acentuadamente às emissões gama, devido aos minerais resistentes ricos em U e Th (Ra) e compostos de Th, os quais pouco participam nas taxas de emissão de Rn. Ao contrário, na paisagem transeluvial, horizontes arenosos recobrimo níveis enriquecidos em U e Th (Ra) não permitem a detecção de anomalias gama intensas. No entanto, tendo em vista a permeabilidade dos referidos horizontes, essas radioanomalias contribuem mais significativamente para a emissão e exalação de Rn.

Muito embora a literatura existente relacionando Rn com elementos litoestruturais do meio físico seja relativamente muito difundida, o mesmo não pode se afirmar sobre estudos que estabelecem relações genéticas entre perfis de solos e níveis de Rn. Dentre os poucos trabalhos existentes sob tal enfoque, destacamos os de Flexser et al. (1993) e Greeman; Rose (1996). Nos dois casos são estabelecidas relações entre os níveis da concentração e modo de distribuição de U, Th e Ra associados às fases pedogenéticas dos diferentes horizontes dos perfis de solos, e as intensidades de Rn resultantes, mais especificamente as respectivas taxas de emissão. Flexser et al. (1993) concluíram que as principais taxas de emissão de Rn estão associadas com fases pedogenéticas secundárias portadoras de U, Th e Ra, enfatizando os processos de e-luviação como mecanismos de transporte e reorganização de materiais de alteração no interior do perfil de solos. Por sua vez, Greeman e Rose (1996) enfocam o coeficiente de emissão dos solos, constatando que os valores de Rn (^{222}Rn e ^{220}Rn) em perfis de solos residuais são comumente baixos nos horizontes pedológicos A e E, e que os maiores valores situam-se no topo do horizonte B (tabela 3 e figura 3). Estes resultados corroboram a premissa estabelecida nesta pesquisa, que, salvo condições de natureza localizada envolvendo desequilíbrio radioativo na série do ^{238}U , é vantajoso utilizar o U e o Th como indicadores da distribuição do Ra.

No entanto, nos estudos mencionados, inferências a respeito de possíveis taxas de exalação nas paisagens, e, também, de dados sobre os teores de U, Th e Ra na rocha inalterada, bem como os níveis de umidade dos solos, não são disponibilizados, além de somente existir um perfil de solos sobre um mesmo corpo rochoso, fatos que impossibilitam uma análise evolutiva tridimensional das grandezas abordadas.

Tabela 3: Relações entre coeficientes de emissão de Rn em diferentes horizontes de um Ultissolo¹ residual sobre um granito da Carolina do Norte, EUA, e teores em argila, carbono orgânico, óxido de Fe, U, Th e Ra, mostrando enriquecimento no horizonte Bt. *Relationships between Rn emanation coefficients in different horizons of a residual Ultisol¹, and clay, organic carbon, Fe oxide, U, Th and Ra contents, on a granite in North Carolina, USA, showing enrichment in the textural B horizon.*

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

Fonte: Greeman & Rose (1996)

Nota: ¹Ultissolo equivale a Podzólico Vermelho Amarelo.

Percebe-se, então, que existe um considerável descompasso entre o conhecimento científico existente sobre a evolução das paisagens, sobretudo a dispersão superficial dos elementos químicos e suas relações genéticas com os materiais pedológicos, em particular dos radionuclídeos U e Th (Ra), e a parcela desse conhecimento incorporada aos principais modelos existentes na pesquisa de Rn, o que constitui um paradoxo. A utilização de dados gamaespectrométricos e médias estatísticas de valores de Rn representando estados, regiões ou mesmo grandes áreas, o que tem ocorrido com grande frequência, tendo em vista a representação escalar desses dados, além de terem um significado meramente indicativo do potencial de Rn,

levam ao ocultamento de inúmeros contextos geológico/pedológicos capazes de condicionar fluxos de Rn de grande intensidade.

CONCLUSÕES

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

Em regiões com espessos perfis de solos residuais, a estruturação interna das vertentes de uma unidade de drenagem, pela atuação dos processos supergênicos durante os tempos geológico e pedológico, conduz à diferenciação das paisagens, geração dos solos, constituição do aquífero freático por porosidade secundária e redistribuição dos radionuclídeos. No caso de granitos, durante as transformações, a concentração e hospedagem inicial do U e do Th (Ra) são profundamente modificadas, resultando em radioanomalias relativas, ou de repartição, associadas aos Latossolos (paisagem eluvial), radioanomalias em parte relativas e em parte absolutas vinculadas aos Solos Podzólicos (paisagem transeluvial) e anomalias predominantemente absolutas relacionadas com os Solos Hidromórficos (paisagem supraqual). Os produtos da alteração, configurados num "sistema morfológico vertente", são materiais em que os atuais processos radioativos de geração, emissão, migração e exalação de Rn, processos afetados pelo regime hídrico do aquífero freático por porosidade secundária, apresentam taxas consideravelmente mais elevadas que as taxas medidas nas rochas inalteradas. Então, tendo em vista tal conjunto de fatores, e considerando o nível de umidade dos solos próximo às suas capacidades de campo, a emissão deve ser mínima na paisagem eluvial, intensa, na transeluvial e máxima, na supraqual. Avaliadas as diferentes possibilidades de migração do Rn emanado para os poros, as suas mais altas taxas de exalação devem

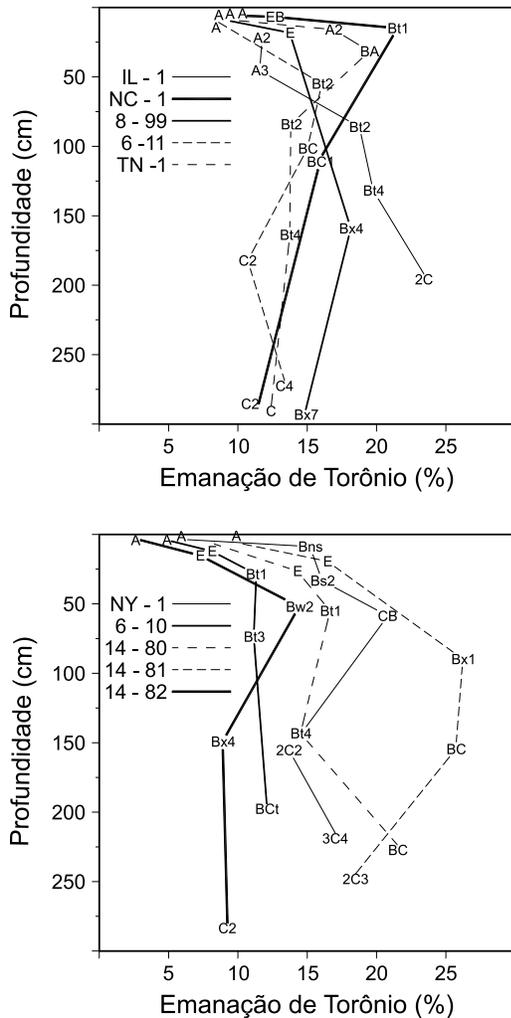


Figura 3: Variação dos coeficientes de emissão do ^{220}Rn com a profundidade, em vários perfis de solos do nordeste dos Estados Unidos da América, mostrando enriquecimento no horizonte B (GREEMAN; ROSE, 1996). ^{220}Rn emanation coefficient variation with the depth of measurement, in several soil profiles of the northeastern region of the United States, showing enrichment in B Horizon (GREEMAN; ROSE, 1996).

manifestar-se em áreas das paisagens supraqual e transeleuvial.

Cabe ressaltar que este tipo de relações, no contexto enfocado, só podem ser estabelecidas de maneira clara por estudos que valorizem a escala pedológica do tempo e as dimensões espaciais das vertentes, como os limites principais desses estudos. Como geoquímica de paisagens e seqüências de solos envolvem conceitos similares, os modelos pedogeocímicos, de natureza híbrida ou interdisciplinar, evidenciaram-se como a peça central dos modelos previsionais estabelecidos.

AGRADECIMENTOS

Agradecimentos ao Dr. Ayrton Caubit da Silva, Diretor de Radioproteção e Segurança Nuclear, e ao Dr. Paulo Roberto Cruz, Coordenador de Matérias - Primas e Minerais da Comissão Nacional de Energia Nuclear-CNEN pela liberação do servidor Antonio M. A. Rebelo para frequentar o Curso de Doutorado do Departamento de Geologia, Setor de Ciências da Terra, da Universidade Federal do Paraná-UFPR. Agradecimento também à Professora Areta Ulhana Galat pela tradução, e ao Acadêmico de geologia Tiago Bittencourt Rossi pela revisão do *Extended Abstract*.

REFERÊNCIAS

- ADAMS, J. A. S.; RICHARDSON, K. A. Thorium, uranium and zirconium concentrations in bauxite. *Economic Geology*, n. 55, p. 1653-1675, 1960.
- AKERBLOM, G.; ANDERSSON, P.; CLAVENSJO, B. Soil gas radon – a source for indoor radon daughters. *Radiation Protection Dosimetry*, v. 7, n. 1-4, p. 49-54, 1984.
- APTE, M. G.; PRICE, P. N.; NERO, A. V.; REVZAN, K. L. Predicting New Hampshire indoor radon concentrations from geologic information and other covariates. *Environmental Geology*, v. 37, n. 3, p. 181-194, 1999.
- BEAN, J. A.; ISACSON, P.; HAHNE, R. M. A.; KIALER, J. Drinking water and cancer incidence in Iowa. – Radioactivity in drinking water. *American Journal of Epidemiology*, n. 116, p. 924 - 932, 1982.
- BOROVEC, Z.; KRIBEK, B.; TOLAR, V. Sorption of uranyl by humic acids. *Chemical Geology*, n. 27, p. 39-46, 1979.
- BOROVEC, Z. The adsorption of uranyl species by fine clay. *Chemical Geology*, n. 32, p. 45-58, 1981.
- BOSSUS, D. A. W. Emanating power and specific surface area. *Radiation Protection Dosimetry*, n. 7 n. 1-4, p. 73-76, 1984.
- BOULET, R.; LUCAS, Y.; FRITCH, E.; PAQUET, H. Géochimie des paysages: le rôle des couvertures pédologiques. In: COLL. SEDIMENTOLOGIE ET GÉOCHIMIE DE LA SURFACE, à la mémoire de Georges Millot, 1993, p. 55-76. Boulet Paris *Anais...* 1993.
- CAMARGO, M. N.; KLAMT, E.; KAUFFMAN, J. H. Classificação de solos usada em levantamentos pedológicos no Brasil. Separata de: *Boletim Informativo, Sociedade Brasileira da Ciência do Solo*, v. 12, n. 1, p. 11-33, 1987.
- CARVALHO, I. G. *Fundamentos da geoquímica dos processos exógenos*. Salvador: Bureau Gráfica e Editora, 1995. 213 p.
- CHOUBEY, V. M.; RAMOLA, R. C. Correlation between geology and radon levels in groundwater, soil and indoor air in Bhilangana Valley, Garhwal Himalaya, India. *Environmental Geology*, v. 32, n. 4, p. 258 - 262, 1997.
- COMISSÃO DE SOLOS. *Levantamento de reconhecimento dos solos do estado de São Paulo*. Rio de Janeiro: CNEPA, Ministério da Agricultura, 1960. v. 12, 350 p.
- CRUZ, O. A escala temporal-espacial nos estudos dos processos geomorfológicos erosivos atuais. Uma questão de método. São Paulo, Instituto de Geografia, Universidade de São Paulo, *Geomorfologia*, v. 33, n. 1-6, 1985.
- CUSTODIO, E.; LLAMAS, M. R. *Hidrologia subterranea*. 2. ed. Barcelona: Ediciones Omega, 1983. 2347 p. (v. 1-2).
- DICKSON, B. L.; FRASER, S. J.; KINSEY-HENDERSON, A. Interpreting aerial gamma-ray surveys utilizing geomorphological and weathering models. *Journal of Geochemical Exploration*, n. 57, p. 75-88, 1996.
- DICKSON, B. L.; SCOTT, K. M. Interpretation of aerial gamma-ray surveys adding the geochemical factors. *AGSO Journal of Australian Geology & Geophysics*, v. 17, n. 2, p. 187-200, 1997.
- FLEXSER, S.; WOLLENBERG, H. A.; SMITH, A. R. Distribution of radon sources and effects on radon emanation in granitic soil at Ben Lomond, California. *Environmental Geology*, n. 22, p. 162-177, 1993.
- FORTESCUE, J. A. C. *Environmental geochemistry*. New York: Springer-Verlag, 1980. 347 p.
- GRANIER, C. L. *Introduction a la prospection géochimique des gîtes métallifères*. Paris: Masson et Cie., Éditeurs, 1973. 143 p.
- GREEMAN, D. J.; ROSE, A. W. Factors controlling the emanation of radon and thoron in soils of the eastern USA. *Chemical Geology*, n. 129, p. 1-14, 1996.
- GUNDERSEN, L. C. S.; SCHUMANN, R. R.; OTTON, J. K.; DUBIEL, R. F.; OWEN, D. E.; DICKINSON, K. A. Geology of radon in the United States. Geological Society of America. *Special Paper*, n. 271, p. 1-16, 1992.
- GUTHRIE, V. A.; KLEEMAN, J. D. Changing uranium

- distributions during weathering of granite. *Chemical Geology*, n. 54, p. 113-126, 1986.
- HUDAK, P. F. Distribution of indoor radon concentration and uranium-bearing rocks in Texas. *Environmental Geology*, n. 28, n. 1, p. 29-33, 1996.
- LANGMUIR, D. Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, n. 42, p. 547- 569, 1978.
- LELONG, F. Régime des nappes phréatiques contenues dans les formations d'altération tropicale. Conséquences pour la pédogenèse. *Sciences de la Terre*, v. 11, n. 2, p. 201-247, 1966.
- LIMA, J. L. N.; BONOTTO, D. M. *Etapas analíticas para mensuração de radônio-222 e uso na avaliação da radioatividade das águas de Águas da Prata (SP)*. Rio Claro, UNESP, Departamento de Petrologia e Metalogenia, 1994.
- LUCAS, Y.; CHAUVEL, A. Soil formation in tropically weathered terrains. In: BUTT, C. R. M.; ZEEGERS, H. (Ed.). *Regolith Exploration Geochemistry in Tropical and Subtropical Terrains*. Amsterdam, Elsevier: Handbook of Exploration Geochemistry, 1992. p. 57-77. (v. 4).
- MEGUMI, K.; MAMURO, T. Emanation and exhalation of radon and thoron gases from soil particles. *Journal of Geophysical Research*, v. 79, n. 23, p. 3357-3360, 1974.
- MELFI, A. J.; PEDRO, G. Estudo geoquímico dos solos e formações superficiais do Brasil. Parte 1- Caracterização e repartição dos principais tipos de evolução pedogeoquímica. *Revista Brasileira de Geociências*, v. 7, p. 271-286, 1977.
- _____. Parte 2- Considerações sobre os mecanismos geoquímicos envolvidos na alteração superficial e sua repartição no Brasil. *Revista Brasileira de Geociências*, v. 8, p. 11 - 22, 1978.
- NAZAROFF, W. W.; DOYLE, S. M.; NERO, A. V.; SEXTRO, R. G. Radon entry via potable water. In: NAZAROFF, W. W.; NERO, A. V. (Ed.). *Radon and its decay products in indoor air*. New York: John Wiley & Sons, 1988. 518 p.
- NERO, A. V.; NAZAROFF, W. W. Characterising the source of radon indoors. *Radiation Protection Dosimetry*, v. 7, n. 1-4, p. 23- 29, 1984.
- NERO, A. V. Radon and its decay products in indoor air: an overview. In: NAZAROFF, W. W.; NERO, A. V. (Ed.). *Radon and its decay products in indoor air*. New York: John Wiley & Sons, 1988. 518 p.
- OLIVEIRA, J.; ASSUMPÇÃO, S. P.; NAZHLI, B.; PECEQUILO, B. R. S.; SAMPA, M. H. O.; BAMBALAS, E. Determinação dos níveis de radioatividade natural presente nas águas utilizadas para abastecimento público no estado de São Paulo. In: ENCONTRO NACIONAL DE APLICAÇÕES NUCLEARES, 4., 1997, Poços de Caldas, *Anais...*, Poços de caldas, 1997.
- PURTSCHELLER, F.; PIRCHL, T.; SIEDER, G.; STINGL, V.; TESSADRI, T.; BRUNNER, P.; ENNMOSE, O.; SCHNEIDER, P. Radon emanation from giant landslides of Koefels (Tyrol, Austria) and Langtang Himal (Nepal). *Environmental Geology*, n. 26, p. 32-38, 1995.
- RAGLAND, P. C.; BILLINGS, G. K.; ADAMS, J. A. S. Chemical fractionation and its relationship to the distribution of thorium and uranium in a zoned granite batholith. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v. 31, n. 1, p. 17-33, 1967.
- REBELO, A. M. A. *Processos supergênicos na distribuição de radônio em paisagens tropicais úmidas*. Curitiba, 2000, 210 p. Tese (Doutorado) - Departamento de Geologia, Setor de Ciências da Terra, Universidade Federal do Paraná - UFPR.
- ROSE, A. W.; HAWKES, H. E.; WEBB, J. S. *Geochemistry in mineral exploration*. 2. ed. London: Academic Press, 1979. 657 p.
- RUELLAN, A.; DOSSO, M. *Regards sur le sol*. Universités Francophones. Foucher: Aupeff, 1993. 191 p.
- SALOMÃO, F. X. T. *Processos erosivos lineares em Baurio (SP)*: Regionalização cartográfica aplicada ao controle preventivo urbano e rural. São Paulo, 1994, 200 p. Tese (Doutorado) - Departamento de Geografia, FFLCH – Universidade de São Paulo.
- SAMAMA, J. C. Ore deposits and continental weathering: a contribution to the problem of geochemical inheritance of heavy metal contents of basement areas and of sedimentary basins. In: CONG. SÉD. INTERN, 8., 1971, Heidelberg. *Anais...* Heidelberg, 1971.
- SCHOELLER, H. *Les eaux souterraines*. Paris: Masson & Cie, 1962. 642 p.
- SEMKOW, T. M. Recoil-emanation theory applied to radon release from mineral grains. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, n. 54, p. 425-440, 1990.
- SHIRAV, M.; VULKAN, V. Mapping radon-prone areas – a geophysical approach. *Environmental Geology*, v. 31, n. 3-4, p. 167-173, 1997.
- SILVA, D. C. *Espectrometria de raios gama aplicada na classificação de granitóides*. São Paulo, 1994, 83 p. Dissertação (Mestrado) - Departamento de Geofísica do Instituto Astronômico e Geofísico da Universidade de São Paulo.
- SILVA, L. M. C.; MENDES, R. L. R. Projeto UFPA: Estudo de radioatividade em Monte Alegre. In: WORKSHOP DE GEOFÍSICA APLICADA AO MEIO AMBIENTE, 1996, Belém. *Anais...* Belém, 1996.
- SOUZA, J. L. Anomalias aerogamaespectrométricas (K, U e Th) da quadrícula de Araras (SP) e suas relações com processos pedogenéticos e fertilizantes fosfatados. Curitiba., 1998, 218 p. Dissertação (Mestrado) - Departamento de Geologia, Setor de Ciências da Terra, Universidade Federal do Paraná-UFPR.
- TIEH, T. T.; LEDGER, E. B.; ROWE, M. W. Release of uranium from granitic rocks during in situ weathering and initial erosion (central Texas). *Chemical Geology*, n. 29, p. 227-248, 1980.
- VIDAL-TORRADO, P.; LEPSCH, I. F.; CASTRO, S. S.; COOPER, M. Pedogênese de uma seqüência Latossolo – Podzólico na borda de um platô na Depressão Periférica Paulista. *Revista brasileira de ciência do Solo*, Viçosa, Minas Gerais, n. 23, p. 909 - 921, 1999.

VIERS, J.; DUPRÉ, B.; POLVÉ, M.; SCHOTT, J.; DANDURAND, J. L.; BRAUN, J. L. Chemical weathering in the drainage basin of a tropical watershed (Nsimi-Zoetele site, Cameroon): comparison between organic-poor and organic-rich waters. *Chemical Geology*, n. 140, p. 181-206, 1997.

VINOGRADOV, A. P. *The geochemistry of rare and dispersed chemical elements in soils*. New York: Consultants Bureau, 1959. 187 p.

WEIJDEN, C. H.; WEIJDEN, R. D. Mobility of major, minor and some redox-sensitive trace elements and rare-earth elements during weathering of four granitoids in central Portugal. *Chemical Geology*, n. 125, p. 149-167, 1995.

WILFORD, J. R.; BIERWIRTH, P. N.; CRAIG, M. A. Application of airborne gamma-ray spectrometry in soil / regolith mapping and applied geomorphology. *AGSO Journal of Australian Geology & Geophysics*, v. 17, n. 2, p. 201-216, 1997.