

TRANSFERÊNCIA DO URÂNIO E RÁDIO-226 DO SOLO PARA TUBÉRCULOS E RAIZES CULTIVADOS NA COSTA NORTE DE PERNAMBUCO.

Romilton dos Santos Amaral* e Barbara Paci Mazzilli**

*Departamento de Energia Nuclear, UFPE
Av. Prof^o Luiz Freire, 1000
CEP: 50740-530

**IPEN/CNEN-SP
Travessa R, 400
Cidade Universitária-USP
CEP: 05508-900

RESUMO

Os tubérculos e raízes são os gêneros alimentícios de maior produção na costa Norte de Pernambuco. Esta região apresenta anomalias de urânio no subsolo, com uma concentração média de 150 ppm, devido à presença de jazidas de fosfato. As atividades de extração de minério fosfático já realizadas produziram uma movimentação de terra, com a provável transferência de material mais rico em urânio e ^{226}Ra do subsolo para a camada de solo cultivável. Esse fato, associado à intensidade da atividade agrícola na região, determinaram a realização deste trabalho, com o objetivo de determinar os teores de urânio e ^{226}Ra no solo e nos tubérculos e raízes produzidos na região, bem como sua partição no sistema solo-planta. Os resultados encontrados indicam que as concentrações de urânio e ^{226}Ra trocáveis no solo situam-se entre 0,12 e $7,67 \pm 0,56$ Bq/kg de solo seco e 3,7 e $30,3 \pm 1,4$ Bq/kg de solo seco, respectivamente. Por outro lado, as concentrações destes radionuclídeos nos tubérculos e raízes estão nas faixas de 12,9 a $78,8 \pm 8,0$ Bq/kg de peso úmido e de 120 a 1607 ± 80 Bq/kg de peso úmido, respectivamente. Os fatores de transferência calculados situaram-se entre 0,5 e $28,8 \pm 2,1$ para o urânio entre 0,6 e $6,1 \pm 0,3$ para o ^{226}Ra . A análise da correlação entre os teores de urânio e ^{226}Ra nos conjuntos solo-solo, cultivo-cultivo e solo-cultivo, indicou apenas a existência de uma razoável correlação ($r = 0,60$) em termos de ^{226}Ra no conjunto solo-cultivo. Os valores médios encontrados para os fatores de transferência de urânio e ^{226}Ra (8,5 e 3,2) demonstram que o urânio, apesar de se apresentar no solo em menor concentração na forma trocável, é relativamente mais absorvido pelos cultivares do que o ^{226}Ra .

INTRODUÇÃO

Existem diversos processos responsáveis pela transferência dos nuclídeos para a planta[1]. O primeiro é a liberação da fase sólida do solo para a solução do solo, seguida pelo movimento desses íons para localidades onde existam as raízes e, por fim, transporte através da membrana das raízes e o subsequente deslocamento para os tecidos. A transferência de cátions para as plantas está intimamente ligada à disponibilidade dos nutrientes no solo. Além disso, as plantas também podem adsorver os radionuclídeos durante o seu crescimento por intermédio dos sedimentos depositados nas folhas.

A ocorrência normal de urânio nos solos é de cerca de 1 a 4 mg/kg (1 a 4 ppm) com a maioria deles apresentando uma faixa de 1 a 2 mg/kg (1 a 2 ppm)[2]. Em geral, os níveis de urânio nos solos aumenta com o acréscimo dos teores de argila e matéria orgânica. Isso é o resultado da alta afinidade que o

urânio tem com essas substâncias. Solos de areia grosseira com pouca argila e matéria orgânica apresentam baixa quantidade de urânio.

A transferência de rádio do solo para as raízes das plantas é influenciada pelo tipo e pH do solo, teor de alcalinos terrosos, teor de argila, matéria orgânica, cálcio e potássio trocáveis, espécie de planta e forma química do rádio[3].

A transferência de rádio para as folhas, raízes e frutos foi apresentada para duas regiões[1] de alta radioatividade natural no Brasil. Com base nos dados, a transferência do rádio em regiões monazíticas se apresenta como sendo limitada pela insolubilidade do mineral radioativo presente no solo. O rádio associado com a apatita da região Araxá-Tabira foi o mais solúvel. Essa maior solubilidade aumenta a difusão do rádio e sua transferência para a planta. A transferência do rádio para gêneros alimentícios cultivados em regiões de alta radioatividade natural no Brasil, Planalto de Poços de Caldas, apresentou valores de ^{226}Ra uma ordem de grandeza superiores

à de regiões normais[1]. Neste mesmo trabalho, também foram apresentados os valores dos fatores de transferência (FTs) para rádio total e trocável, os quais foram de 10^{-3} e 10^{-2} , respectivamente.

As plantas que apresentam as mais altas concentrações de ^{226}Ra são as castanhas do Pará. O ^{226}Ra foi o emissor alfa mais encontrado neste tipo de planta[4]. A concentração natural no solo do local tem média de 0,9 Bq/g de atividade alfa total, embora a contribuição do ^{226}Ra seja uma fração deste valor. Estas castanhas e solos associados também foram analisados por Penna-Franca et al.[5], que determinaram os níveis de ^{226}Ra e ^{228}Ra . Os autores aparentemente não detectaram concentrações significativamente elevadas nos solos, porém nas castanhas estas concentrações cobriram uma faixa de 30 a 52 Bq/kg. Também determinaram que esta planta tem uma elevada capacidade de absorver bário e que existe uma correlação positiva entre rádio e bário nas castanhas e em diferentes partes da planta. Sugeriram que a alta concentração de rádio nas castanhas do Pará-Brasil fosse devida ao fato do bário funcionar como carreador de rádio.

Vários autores[6,7,8,9,10] utilizaram a concentração total do radionuclídeo no solo para cálculo do FT, porém existe muita discussão quanto à utilização da fração trocável ou total para este cálculo. Experimentos realizados em diferentes tipos de solos[11] mostraram que apenas o rádio trocável estava disponível para ser absorvido pelos vegetais. Desta forma, a utilização da fração trocável no cálculo do FT deverá expressar mais realisticamente a capacidade de absorção da planta[12].

Os FTs foram descritos por Ng[7], como a relação adimensional das concentrações dos radionuclídeos em vegetais úmidos e as correspondentes concentrações nos solos secos ao ar. A transferência de um isótopo do solo para a planta depende de várias propriedades interligadas do solo. De acordo com a literatura[1,7,13] os fatores ambientais (bióticos e abióticos) que afetam a transferência dos nuclídeos para as plantas são os seguintes:

- Fatores bióticos: espécie de plantas, sistema de raízes, metabolismo, estágio e taxa de crescimento, partes das plantas, densidade da vegetação e teor de cinzas.
- Fatores abióticos: solubilidade do nuclídeo, pH do solo, concentração de matéria orgânica, forma química e física do nuclídeo, luminosidade, estação climática, textura do solo, mineral dominante na argila, teor de argila, concentração do nuclídeo no solo, capacidade de troca de cátions, cálcio e potássio trocáveis, outros cátions trocáveis.

Este trabalho foi desenvolvido na costa Norte de Pernambuco onde existem jazidas de fosfato, as quais raramente apresentam afloramentos e que situam-se a uma profundidade média de 6 m, com uma extensão de aproximadamente 150 km, cobrindo uma faixa que vai desde o norte de Pernambuco até próximo à divisa da Paraíba com o Rio Grande do Norte. Como são cultivados vários gêneros alimentícios no local, escolheram-se quatro tipos de tubérculos e raízes (inhame, batata-doce, macaxeira e cará) para serem avaliados, porque são os cultivos de maior produção e, conseqüentemente, mais fácil de serem adquiridos. Também foram coletados os solos associados a cada cultivo. Determinou-se o fator de transferência para as plantas usando a fração dos radionuclídeos disponíveis para sua absorção pelas plantas, ou seja, fração trocável. Também foi investigada

a existência de correlação entre o urânio e o ^{226}Ra nas amostras. Tendo em vista a dificuldade apresentada pela extensão da ocorrência fosfática, as amostras foram coletadas apenas nos municípios de Abreu e Lima e Igarassú, localizados na costa Norte de Pernambuco.

METODOLOGIA

Os tubérculos e raízes foram escolhidos para avaliação, por serem os alimentos de maior produção na área analisada. A frequência com que as amostras foram recolhidas dependeu da frequência de cultivo. Elas foram limpas como se fossem destinadas ao consumo humano, pesadas, secas a 80 °C e calcinadas a 450 °C. Em seguida dissolveram-se 10 g das cinzas correspondentes em HNO_3 [6], e a solução foi usada para determinar o ^{226}Ra , enquanto que para determinar o urânio, dissolveram-se 2 g de cinzas com ácido nítrico-perclórico-fluorídrico. O urânio e o ^{226}Ra nos alimentos foram determinados pelas técnicas de fluorimetria[14] e de emissão de ^{222}Rn [15], respectivamente.

No mapa da Figura 1, pode-se ter uma visão geral de todos os pontos de coleta. As amostras de gêneros alimentícios (batata-doce, macaxeira/mandioca, cará e inhame), coletadas juntamente com os solos associados, foram procedentes dos municípios de Abreu e Lima e Igarassú.

A estimativa dos fatores de transferência baseada em amostras úmidas, geralmente requer um controle adequado da umidade, a qual contribui com a incerteza associada ao FT. Para tanto, foram mantidas as condições de umidade natural das amostras até o momento da pesagem inicial. Os FTs foram estimados de acordo com as concentrações dos radionuclídeos nas plantas e solos associados.

Neste trabalho, adotou-se o rádio trocável como valor para determinar o FT do solo para a planta, pois o mesmo reflete melhor a quantidade do cátion que se encontra disponível para ser absorvido pela planta. Apesar de serem encontrados dados na literatura que citam apenas urânio total[16] para o cálculo do FT, usou-se o valor do urânio trocável, partindo do princípio de que a planta somente absorve os cátions que estejam disponíveis.

Para determinação do urânio e ^{226}Ra trocáveis, tomaram-se duas partes do solo, pesando 10 g cada, com granulometria passante na peneira de 2 mm, adicionaram-se 100 ml de acetato de amônio pH 7[9], agitou-se durante a noite (16 horas), centrifugou-se e desprezou-se a fase sólida[17]. As soluções foram filtradas em papel quantitativo e em seguida em papel millipore, sendo uma analisada por fluorimetria[6] para determinação de urânio; enquanto que a outra, foi analisada pela técnica de emissão de ^{222}Rn para determinação de ^{226}Ra [15].

RESULTADOS E DISCUSSÃO

Na Tabela 1 são apresentadas as concentrações de urânio e de ^{226}Ra em solos e alimentos, bem como os respectivos FTs. Observando essa tabela, verifica-se que as concentrações de urânio trocável variaram de 0,12 a 7,67 Bq/kg (peso seco) com um fator de 64 entre diferentes pontos de coleta. O ^{226}Ra

trocável apresentou um fator de 8 e um intervalo de concentração de 3,7 a 30,3 Bq/kg. Esses resultados estão próximos aos encontrados no Planalto de Poços de Caldas[18,19]. Os valores médios para ^{226}Ra e urânio trocáveis foram de 12,1 Bq/kg e de 1,2 Bq/kg de solo seco, respectivamente; entretanto, os valores encontrados para os fatores de transferência de urânio e ^{226}Ra calculados a partir da concentração dos radionuclídeos disponíveis no solo são da mesma ordem de grandeza entre si, apresentando faixa de variação de $0,5 \times 10^{-2}$ a $28,8 \times 10^{-2}$ kg seco/kg úmido e de $0,6 \times 10^{-2}$ a $6,1 \times 10^{-2}$ kg seco/kg úmido, respectivamente. Isso demonstra que esses radionuclídeos, provavelmente, competem igualmente para serem absorvidos pelas culturas regionais.

A maior disponibilidade do ^{226}Ra deve ser provocada principalmente pela mobilidade do ^{234}U , que pode ser influenciada pela transferência direta do átomo através da interface sólido/líquido devido ao recuo alfa, pelo aumento da fraqueza da solução resultante do deslocamento devido ao recuo com quebra da ligação química, e/ou pela oxidação do U^{4+} para U^{6+} que pode ser resultado do próprio processo de decaimento ou relacionado à diferença de potencial de oxidação entre o local de origem e o novo local; ou ainda, os

descendentes tornam-se vulneráveis a subsequente processo de lixiviação, que pode ser devido ao forte efeito do deslocamento provocado pela seqüência de decaimentos no caso do recuo alfa ou no caso de decaimento beta (ruptura suave)[20].

Foi encontrada uma razoável correlação entre os teores de ^{226}Ra no solo e nos alimentos, como pode ser visto na Figura 2. Entretanto nos conjuntos solo-solo, cultivo-cultivo e solo-cultivo, em termos de urânio e ^{226}Ra , não foram encontradas correlações.

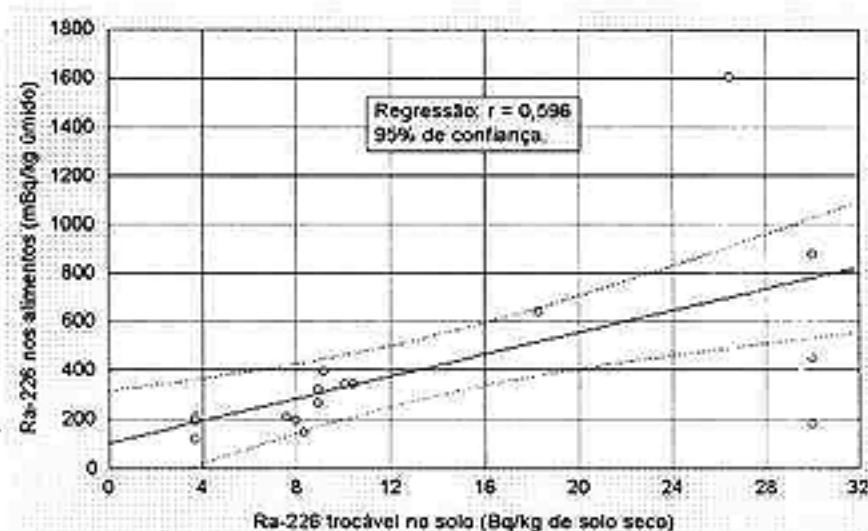


Figura 2. Correlação entre ^{226}Ra no solo e nos alimentos.

Alguns FTs de radionuclídeos naturais do solo para produtos agrícolas apresentados na literatura[1,3,8,12,18,21] são vistos na Tabela 2. Comparados aos FTs obtidos para ^{226}Ra na região de estudo, verifica-se que são da mesma ordem de grandeza dos encontrados por Vasconcellos et al.[12] na região do Planalto de Poços de Caldas; vale salientar que nesta referência foi usada a concentração trocável para cálculo do FT. Em relação à referência [1], os valores dos FTs deste trabalho são uma ordem de grandeza superiores quando se referem ao peso úmido. Em relação aos de outras referências, os valores para urânio e ^{226}Ra , encontrados na costa Norte de Pernambuco, são da mesma ordem de grandeza ou superiores.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] SIMON, S.L. & IBRAIM, S. A. *Biological Uptake of Radium by Terrestrial Plants. THE ENVIRONMENTAL BEHAVIOUR OF RADIUM*. Nº 310, V. 1, Vienna, IAEA, 1990, (Technical Report Series).
- [2] GUIDELINES FOR SURFACE WATER QUALITY. Vol. 1. *Inorganic Chemical Substances*. Inland Waters Directorate. Water Quality Branch. Ottawa, Canada, 1993.
- [3] WATSON, A. P.; ETNIER, E. L. and McDOWELL-BOYYER, L. M. Radium-226 in drinking water and terrestrial food chains: transfer parameters and normal exposure and dose. *Nucl. Saf.*, 25(6):815-829. 1984.
- [4] MERCER, E. A. Absorption by plants of naturally occurring radioactive materials. Annual Report 1961-1962.

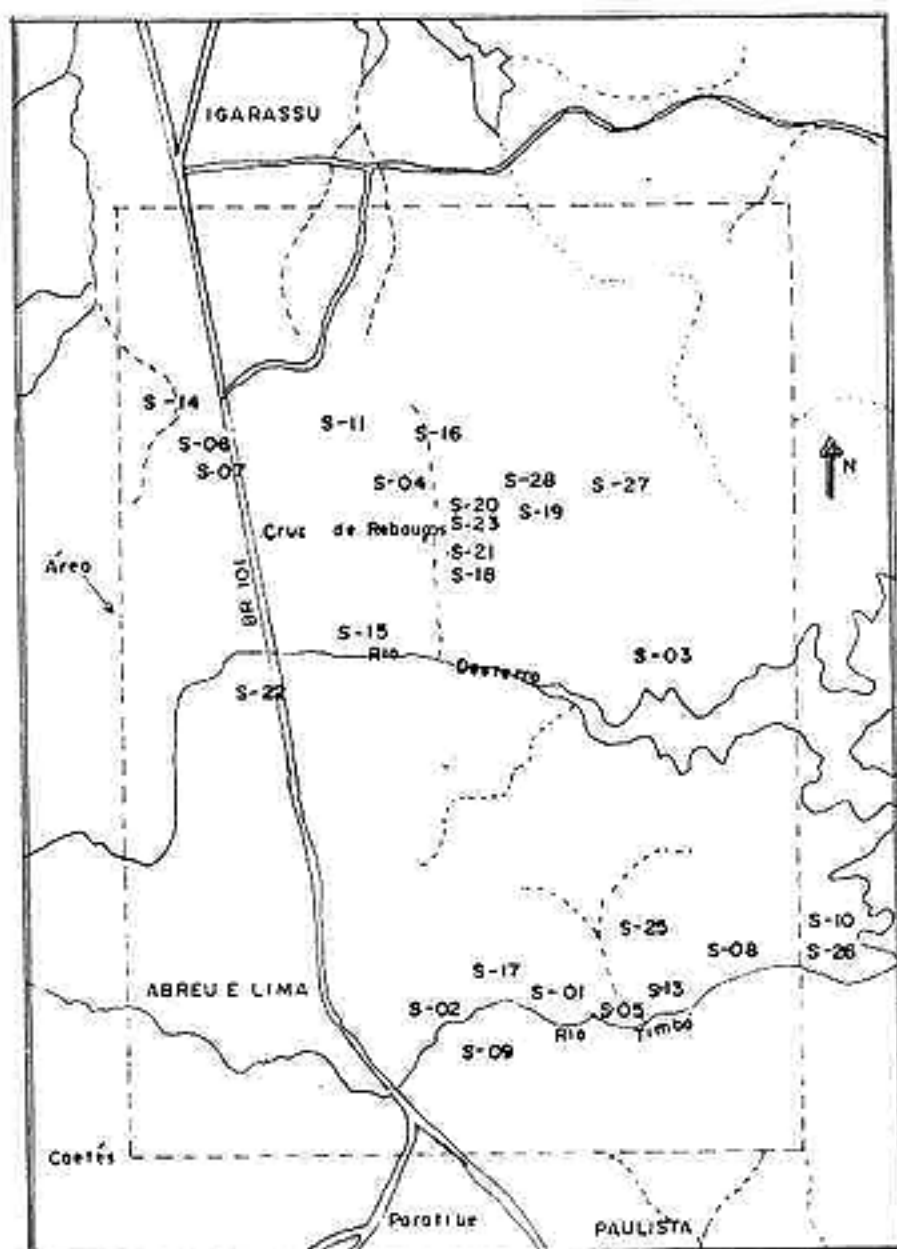


Figura 1. Pontos de coleta na área delimitada.

Radiobiological Laboratory, Agricultural Research Council, Wantage, UK (1962) 82-92. (ARCL L-8).

[5] PENNA-FRANCA, E. Radioactivity of Brazil nuts. Health Phys., 14:95-9, 1968.

[6] AMARAL, R. S. Dose na população da região uranofosfática pernambucana, devida à presença de urânio e ^{226}Ra nos cultivares. Tese de Doutorado, IPEN/CNEN-SP, USP, São Paulo. 1994.

[7] NG, Y. C. A Review of Transfer Factors for Assessing the Dose from Radionuclides in Agricultural Products. Nucl. Saf., 23(1), 1982.

[8] TRACY, B. L.; PRANTL, F. A. & QUINN, J. M. Transfer of ^{226}Ra , ^{210}Pb and Uranium from Soil to Garden

Produce: Assessment of Risk. Health Phys., 44(5):469-477, 1983.

[9] VASCONCELLOS, L. M. H. AMARAL, E. C. S.; PENNA-FRANCA, E.; VIANNA, M. E. C. M. Concentrações de ^{226}Ra e ^{210}Po em Produtos Agrícolas Cultivados nas Vizinhanças da Mina e Usina de Urânio do Planalto de Poços de Caldas, Minas Gerais. Ciência e Cultura. 388(8). 1986.

[10] BETTENCOURT, A. O.; TEIXEIRA, M. M. G. R.; MADRUGA, M. J. and FAISCA, M. C. Dispersion of ^{226}Ra in a Contaminated Environment. Rad. Prot. Dosim., 24(1-4):101-108, 1988.

[11] MORSE, R. S. & WELFORD, G. A. Dietary Intake of ^{226}Ra , Health Phys., 21(1):53-55. 1971.

TABELA 1. Concentração de Urânio e ^{226}Ra Trocáveis no Solo, nos Tubérculos e Raízes e o Fator de Transferência de Acordo com o Local de Cultivo

| GÊNEROS ALIMENTÍCIOS | CONCENTRAÇÃO TROCÁVEL NO SOLO (Bq/kg de solo seco) | | CONCENTRAÇÃO NOS ALIMENTOS (mBq/kg úmido) | | FT (10 ⁻² kg seco/kg úmido) | |
|----------------------|--|-------------------|---|--------------------|--|-------------------|
| | URÂNIO | ^{226}Ra | URÂNIO | ^{226}Ra | URÂNIO | ^{226}Ra |
| Inhame-02 | | | 38,0 | 875 ^(a) | 4,3 | 2,9 |
| Macaxeira-02 | 0,880 | 30,3 | 33,9 | 180 | 3,9 | 0,6 |
| Batata-doce-02 | | | 78,8 | 447 ^(a) | 9,0 | 1,5 |
| Macaxeira-04 | | | 56,8 | 205 ^(a) | 28,8 | 5,6 |
| Inhame-04 | 0,198 | 3,7 | 26,8 | 190 | 13,6 | 5,1 |
| Cará-05 | 0,124 | 8,3 | 14,1 | 144 ^(a) | 11,3 | 1,7 |
| Macaxeira-06 | 2,26 | 10,1 | 32,2 | 345 ^(a) | 1,4 | 3,4 |
| Macaxeira-09 | 0,309 | 7,6 | 41,0 | 205 | 13,3 | 2,7 |
| Batata-doce-13 | 0,310 | 10,4 | 17,8 | 345 | 5,8 | 3,3 |
| Macaxeira-14A | | | 26,8 | 320 | 11,4 | 3,6 |
| Inhame-14A | 0,236 | 8,9 | 26,7 | 266 | 11,4 | 3,0 |
| Inhame-14B | 0,570 | 3,7 | 19 | 120 | 3,3 | 3,2 |
| Macaxeira-15 | 7,67 | 26,4 | 34,8 | 1607 | 0,5 | 6,1 |
| Macaxeira-16 | 0,347 | 8,0 | 43,2 | 196 | 12,4 | 2,5 |
| Macaxeira-17 | | | 13,2 | 390 | 3,2 | 4,2 |
| Inhame-17 | 0,409 | 9,2 | 33,3 | 382 | 8,1 | 1,0 |
| Batata-doce-18 | 0,521 | 18,3 | 12,9 | 638 | 2,5 | 3,5 |

Nota: (a) Amaral et al. ⁽²²⁾

TABELA 2. Comparação de Resultados deste Trabalho com os Encontrados na Literatura

| GÊNEROS ALIMENTÍCIOS | REFE- RÊNCIA | FT (10 ⁻³ kg seco/kg úmido) | | | |
|--|-----------------|--|-------------|--------------------|--------------------|
| | | URÂNIO | | ²²⁶ Ra | |
| | | MÉDIA | INTERVALO | MÉDIA | INTERVALO |
| RAÍZES VEGETAIS | [18] | 0,31 | 0,08-1,2 | 3,3 | 1,8-5,7 |
| BATATA CENOURA BATATA ^(a) | [1] | - - - | - - - | 1,0 4,0 29,0 | - - - |
| BATATA-DOCE ^(a) | [21] | - | 15,0-51,0 | - | - |
| BATATA-DOCE ^(a) BATATA-DOCE | [b] | - 57,7 | - 25-90 | - 27,7 | 24,0-67,0 15-35 |

Notas :

1. A referência [18] adotou o rádio total e usou a média geométrica para os cálculos;
2. (a) Corresponde a peso de cinzas;
3. A referência [1] apresenta valores para as plantas em termos de peso úmido e em peso de cinzas ;
4. (b) corresponde a este trabalho.

[12] VASCONCELLOS, L. M. H., AMARAL, E. C. S., VIANNA, M. E. & PENNA-FRANCA, E. Uptake of ²²⁶Ra and ²¹⁰Pb by Food Crops Cultivated in a Region of High Natural Radioactivity in Brazil. *J. Environ. Radioact.*, 5:287-302. 1987.

[13] LÉTOUNEAU, C. Transfer of Radionuclides of the Uranium and Thorium Decay Chains in Aquatic and Terrestrial Environmental; Canada, Atomic Energy Control Board Ottawa, April 1987.

[14] CENTANNI, F. A.; ROOS, A. M.; DESESA, M. A. Fluorimetric determination of uranium. *Anal. Chem.*, 28(11):1651-57, 1957.

[15] RUSHING, D. R., GARCIA, W. J.; CLARK, D. A. The analysis of effluents and environmental samples for uranium mills and of biological samples for radium, polonium and uranium. *Radiological Health and Safety in Mining and Milling of Nuclear Materials*. V. 2, p. 187-229. Vienna, IAEA. 1964.

[16] FRINDIK, O., Uran in Böden. Gemüse, Getreide und Obst. *Landwirtsch. Forschung* 41:188-192, 1988.

[17] PAGE, A. L. *Methods of Soil Analysis*. Number 9 (part 2) in the Series Agronomy. Second Edition. Madison, Wisconsin USA. 1982.

[18] AMARAL, E. C. S. Modificação da Exposição à Radiação Natural Devido a Atividades Agrícolas e Industriais numa Área de Radioatividade Natural Elevada no Brasil. Rio de Janeiro, 1992. (Tese de Doutorado, Univ. Fed. do Rio de Janeiro).

[19] AMARAL, E. C. S., CARVALHO, Z. L.; GODOY J. M. Transfer of ²²⁶Ra and ²¹⁰Po to Forage and Milk in a Brazilian High Natural Radioactivity Region. *Radiation Protection Dosimetry*, 24(1/4):119-21, 1988.

[20] OSMOND, J. K. AND COWART, J. B. The natural and uses of natural uranium isotopic variations in hydrology. *Atomic Energy Review*, 14:4, p. 621-679. IAEA, Vienna, 1976.

[21] MORISHIMA, O.; KOGA, T.; KAWAI, H; HONDA, Y. and KATSURAYAMA, K. Studies on the movement and distribution of uranium in the environment-distribution of uranium in agricultural products. *J. Radiat. Res.*, 18:139-50, 1977.

[22] AMARAL, R. S.; MAZZILLI, B. P. e KHOURY, H. J. Determinação de ²²⁶Ra em alguns cultivares da região fosfática de Pernambuco. IV Cong. Geral de Energia Nuclear-CGEN. Rio de Janeiro. 1992.