



## MIGRAÇÃO DE RÁDIO NAS ÁGUAS SUPERFICIAIS E SUBTERRÂNEAS DO MORRO DO FERRO E COMPLEXO ALCALINO DO BARREIRO, MINAS GERAIS, BRASIL

L. H. Mancini<sup>1,\*</sup> & D. M. Bonotto<sup>2,\*\*</sup>

<sup>1</sup>Centro de Pesquisas Geocronológicas (CPGeo), Instituto de Geociências (IGc), USP  
Rua do Lago nº 562, CEP 05508-080, São Paulo, São Paulo

<sup>2</sup>Instituto de Geociências e Ciências Exatas (IGCE), UNESP, Rio Claro  
Avenida 24-A nº 1515 CEP 13506-900, Rio Claro, São Paulo  
e-mail: lmancini@usp.br, dbonotto@rc.unesp.br

Recebido em janeiro de 2006, aprovado para publicação em setembro de 2006

### ABSTRACT

Alpha scintillation and gamma-ray spectrometry were used to measure <sup>226</sup>Ra and <sup>228</sup>Ra in underground and surface waters, suspended solids and bottom sediments from two areas situated at Minas Gerais State, Brazil, i.e. the Morro do Ferro, located at the Poços de Caldas alkaline massif, Poços de Caldas city and at the Barreiro de Araxá, situated at Araxá city. The results allowed calculate the distribution coefficient ( $K_d$ ) for <sup>226</sup>Ra and <sup>228</sup>Ra in these areas. The  $K_d$  values for <sup>226</sup>Ra and <sup>228</sup>Ra in underground and surface waters from Morro do Ferro and Barreiro varied too much, in general, between  $10^{-3}$  g/cm<sup>3</sup> and  $10^{-6}$  g/cm<sup>3</sup>.

### RESUMO

Foram usadas técnicas de cintilometria alfa e espectrometria gama para a determinação de <sup>226</sup>Ra e <sup>228</sup>Ra em amostras de águas subterrâneas, superficiais, sólidos em suspensão e sedimentos de fundo coletadas em duas áreas situadas no Estado de Minas Gerais, Brasil, isto é, no Morro do Ferro, localizado no complexo Alcalino de Poços de Caldas, município de Poços de Caldas e no Barreiro de Araxá, localizado no município de Araxá. Os resultados obtidos permitiram determinar o coeficiente de distribuição ( $K_d$ ) de <sup>226</sup>Ra e <sup>228</sup>Ra para as duas áreas. Os valores que foram determinados para o  $K_d$  do <sup>226</sup>Ra e do <sup>228</sup>Ra para as águas do Morro do Ferro e do Barreiro variaram grandemente, situando-se, no geral, dentro do intervalo de  $10^{-3}$  a  $10^{-6}$  g/cm<sup>3</sup>.

### INTRODUÇÃO

O <sup>226</sup>Ra e o <sup>228</sup>Ra são os mais abundantes isótopos de rádio de ocorrência natural. O <sup>226</sup>Ra pertence à série natural de decaimento do urânio (<sup>238</sup>U) e é um emissor alfa ( $\alpha$ ), enquanto o <sup>228</sup>Ra pertence à série natural de decaimento do tório (<sup>232</sup>Th), sendo um emissor beta ( $\beta$ ). 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, Th e respectivos descendentes (IAEA, 1982).

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 prever mudanças espaciais e temporais nas concentrações desse elemento. Dentre eles podem ser citados aqueles realizados por Okubo et al. (1979), Li & Chan (1979), Benes (1984), Key et al. (1985), Davidson & Dickson (1986), Webster et al. (1995), Hancock & Murray (1996) e Moore (1997). Especificamente no Brasil, alguns trabalhos também enfocaram este problema, por exemplo, aqueles realizados por Campos et al. (1986), Barcellos et al. (1990), Bonotto (1998) e Lauria & Godoy (2000).

Uma formulação matemática simples abordada em inúmeros modelos 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).

Um parâmetro que tem mostrado ser extremamente útil para avaliar o transporte de rádio no ambiente constitui o seu coeficiente de distribuição ( $K_d$ ). Este parâmetro tem sido diversamente definido/designado (Bonotto, 1998), porém, neste trabalho, adotou-se a proposição de Benes (1984), a qual relaciona a atividade dos isótopos de rádio ( $^{226}\text{Ra}$  ou  $^{228}\text{Ra}$ ) determinada nas fases líquida e sólida de acordo com a equação:

$$K_d = \frac{A_L}{A_{SS}} \quad (1)$$

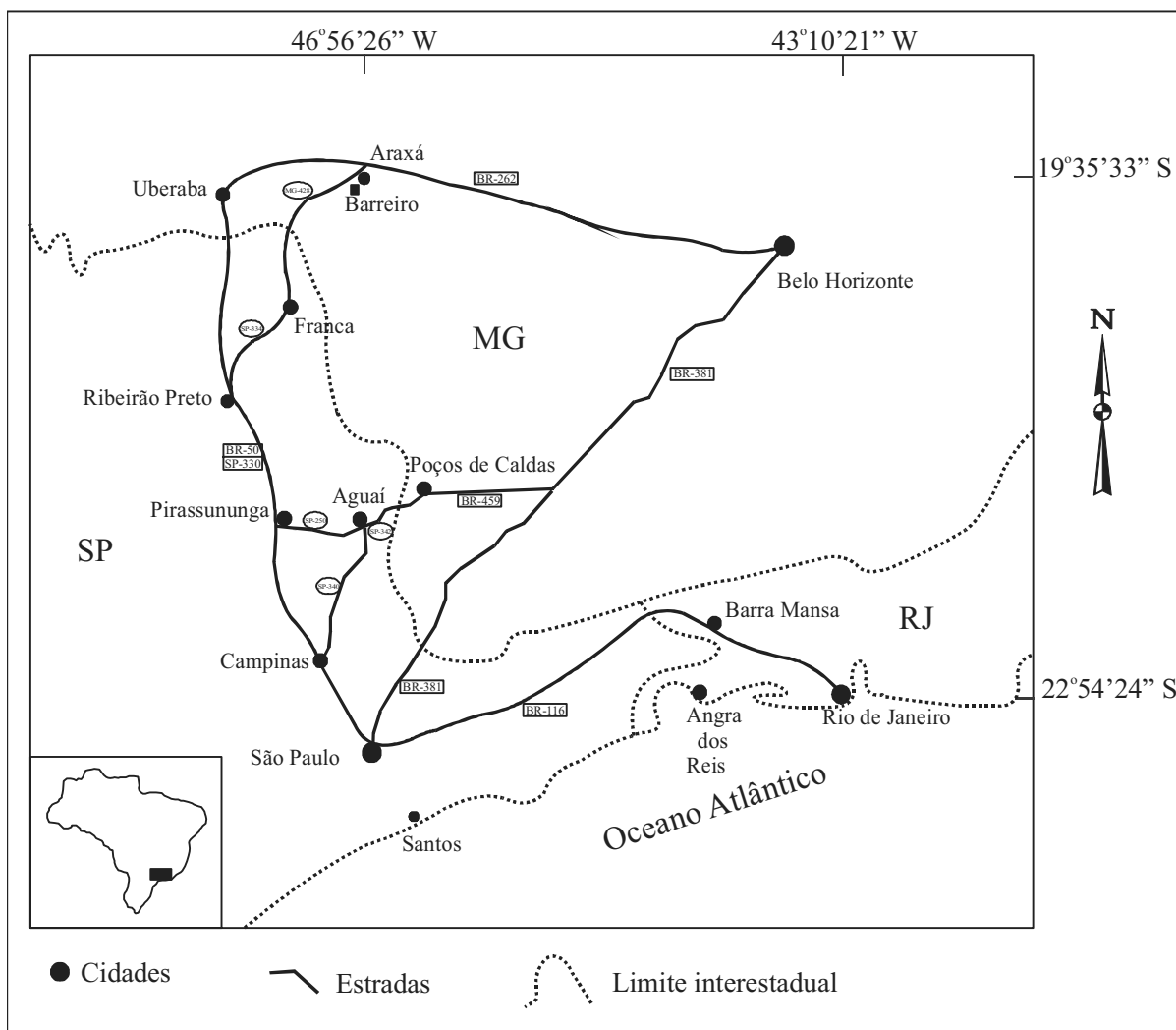
onde:  $K_d$  é o coeficiente de distribuição,  $A_L$  é a atividade do isótopo de rádio na fase líquida e  $A_{SS}$  é a atividade do isótopo de rádio na fase sólida. Geralmente  $K_d$  é expresso em  $\text{g}/\text{cm}^3$ , situando-se seus valores entre  $10^{-3}$  e  $10^{-6}$  (Benes, 1984).

Este trabalho investiga a migração (dispersão e transporte) de rádio em duas áreas, uma situada no Morro do Ferro em Poços de Caldas e outra no Complexo Alcalino do Barreiro em Araxá, ambas localizadas no estado de Minas Gerais, Brasil. Para tanto, foi necessário proceder a determinação da atividade de  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  em amostras de água subterrânea, água superficial, sólidos em suspensão (material particulado) e sedimentos de fundo coletadas nas duas áreas.

O conhecimento da presença de rádio nas águas subterrâneas e superficiais do município de Araxá é importante, pois, esses recursos são utilizados tanto para o abastecimento público quanto para o turismo. 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 (Funtec, 1984). O programa destinado à preservação ecológica da Bacia do Barreiro realizou estudos enfocando o impacto da mineração sobre a atividade turístico-hoteleira, com 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. As informações disponíveis resultantes daquele estudo propiciaram a realização deste trabalho enfocando os isótopos de rádio,  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$ .

## ÁREAS DE ESTUDO

O Morro do Ferro localiza-se próximo ao centro do planalto de Poços de Caldas, cerca de 20 km da cidade de Poços de Caldas (Figura 1). O planalto de Poços de Caldas apresenta um formato de aparência circular, com um diâmetro médio de 33 km, área de cerca de 800  $\text{km}^2$ , altitude de 1300 m a 1600 m e topografia consistindo principalmente de vales, morros e colinas suaves. O Morro do Ferro é bastante conhecido por possuir uma mineralização de tório e terras raras em presença de diques de magnetita encaixados em camadas argilosas, o qual, no contexto geológico regional, faz parte de massa de tinguaito localizada na borda de uma área em que a rocha sofreu intensa alteração



**Figura 1:** Localização das cidades de Poços de Caldas e Araxá no estado de Minas Gerais.

hidrotermal (Almeida, 1977, Barbosa, 1979, Barreto e Fujimore, 1986, Björnberg, 1959, Ellert, 1959).

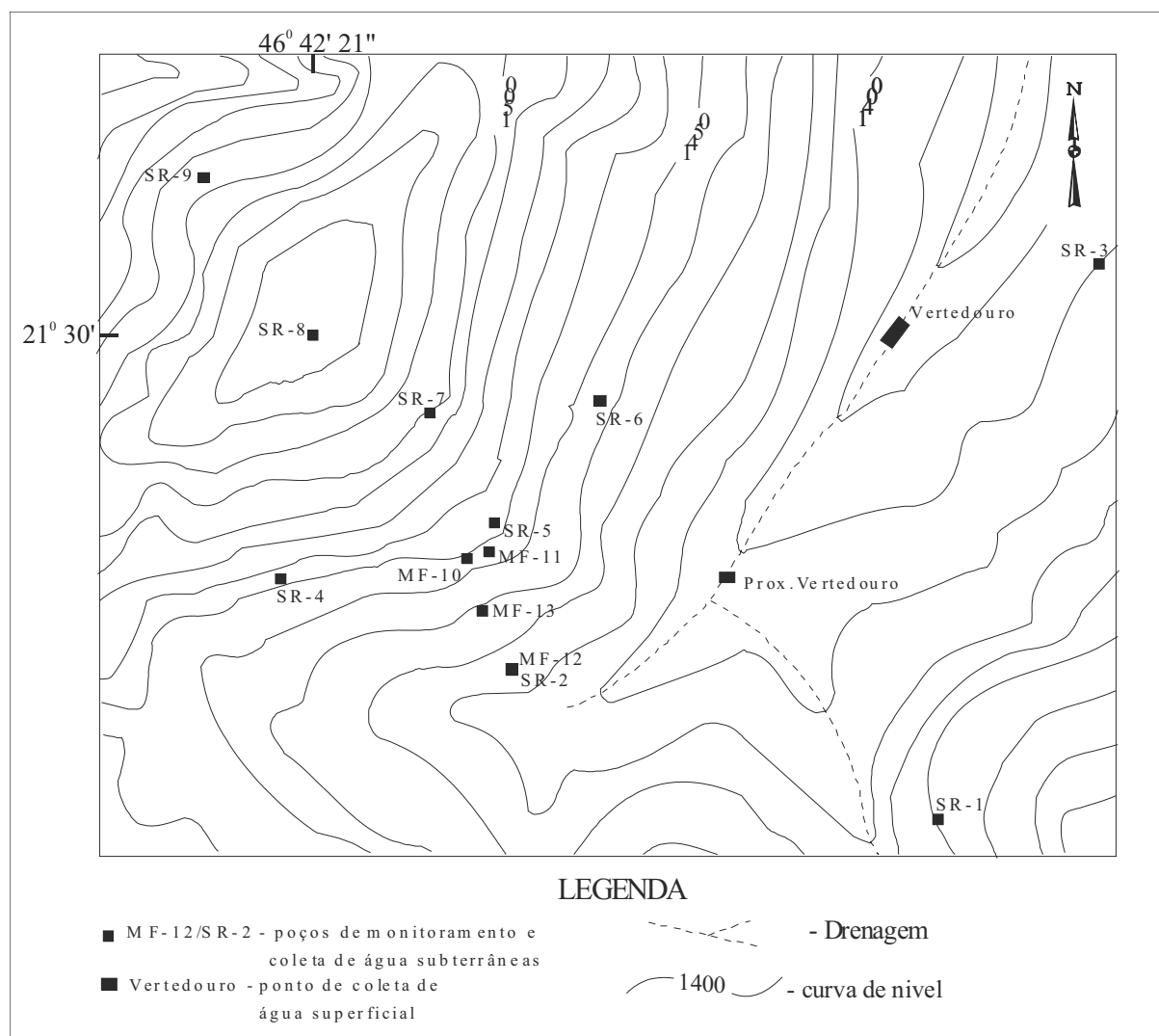
Contribui para a formação de uma pequena bacia de drenagem superficial, onde estão presentes depressões, regos e áreas pantanosas. A drenagem é simples, consistindo principalmente de dois córregos, um a norte e outro a sul do Morro. O córrego Norte é de importância secundária, enquanto que o córrego Sul tem origem na sua base, recebe a maior parte da drenagem da colina, seus afluentes devido a regos são efêmeros e a descarga é significativa apenas durante os períodos chuvosos (no período de estiagem, o fornecimento de água é efetuado pelas águas subterrâneas emergentes) (Lei, 1984).

IPT (1982) realizou no local 9 perfurações (SR-1 a SR-9) para a instalação de piezômetros, de maneira a caracterizar o comportamento do lençol freático (Figura 2). As profundidades variaram de 13 a 65 m, sendo que três furos foram localizados na área mineralizada (SR-5, SR-7 e SR-8), dois bem distantes dessa área (SR-1 e SR-3) e quatro nas vizinhanças da área mineralizada (SR-2, SR-4, SR-6 e SR-9). No final da década de 1980, foram perfurados mais quatro furos (MF-10 a MF-13), que atingiram profundidades maiores (entre 40 e 75 m), sendo dois na área mineralizada (MF-10 e MF-11), um nas vizinhanças desta área (MF-13) e o outro (MF-12) a uma distância aproximada de 3 m de SR-2, às margens do córrego Sul (Holmes et al., 1992) (Figura 2).

O aquífero contém um divisor de águas subterrâneas com direção NW-SE, quase perpendicular ao divisor de águas superficiais, aproximadamente paralelo aos diques de magnetita. Próximo a SR-7, ocorre um desvio da tendência geral das eqüipotenciais, provocando convergência de fluxos que pode evidenciar zona preferencial de escoamento subterrâneo; a configuração condiciona a presença de direções de fluxo divergentes a partir de SR-5. No topo do morro, o nível d'água está a pelo menos 80 m abaixo do nível da superfície do terreno (Holmes et al., 1992). O sistema aquífero situa-se, portanto, dentro da zona de alteração constituído de material inconsistente composto de argila, silte e areia, derivado do intenso intemperismo *in situ* (Bonotto, 1986).

Foram conduzidas duas etapas de coleta de amostras de águas do Morro do Ferro, uma no período de seca (24 e 25 de junho de 1996) e outra no período de chuva (6 de janeiro de 1997), tendo sido efetuada em cada uma delas a coleta de 5 amostras de águas subterrâneas (em SR-4, SR-5, SR-6, SR-9 e MF-12), 2 amostras de águas superficiais (no vertedouro, Vert e a montante dele, Pr-Vert) e uma amostra de sedimentos de fundo.

O Complexo Alcalino do Barreiro situa-se no município de Araxá (Figura 1), que é uma estância hidromineral bastante conhecida desde as primeiras décadas do século XX, devido a ocorrência de fontes radioativas. Possui mineralizações de minerais fosfáticos e



**Figura 2:** Localização dos pontos de coleta de amostras de águas superficiais e subterrâneas no Morro do Ferro, Poços de Caldas (MG).

niobíferos, ocorrendo o urânio e tório na região associado a minerais secundários sujeitos a processos intempéricos, os quais são responsáveis pelo seu enriquecimento na fase líquida (Braga & Born, 1988, Castro & Souza, 1970, Issa Filho et al, 1984, Grossi Sad & Torres, 1976, Silva, 1987).

O Barreiro está localizado na região do Alto Paranaíba a uma altitude média de 973 m, possuindo área aproximada de 1170 km<sup>2</sup>. 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 1200 m e a mais baixa a 935 m, resultando um gradiente de mais ou menos 270 m.

Beato et al. (2000) definiram dois tipos de aquíferos presentes na área. O primeiro é 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 200 m na porção Sul, próximo à mina de nióbio). Localmente pode ser semiconfinado por níveis mais argilosos do manto intemperizado. O segundo é fraturado, livre a semiconfinado, ocorrendo principalmente nas rochas ao redor do Complexo Carbonático.

A região do Barreiro é drenada por pequenos córregos, de disposição mais ou menos radial, como mostra a Figura 3, 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 do Barreiro também são encontradas quatro barragens: duas no Córrego da Baritina (Barragem “BCM” e “Dique da mina de fosfato”) do lado leste da área e outras duas 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).

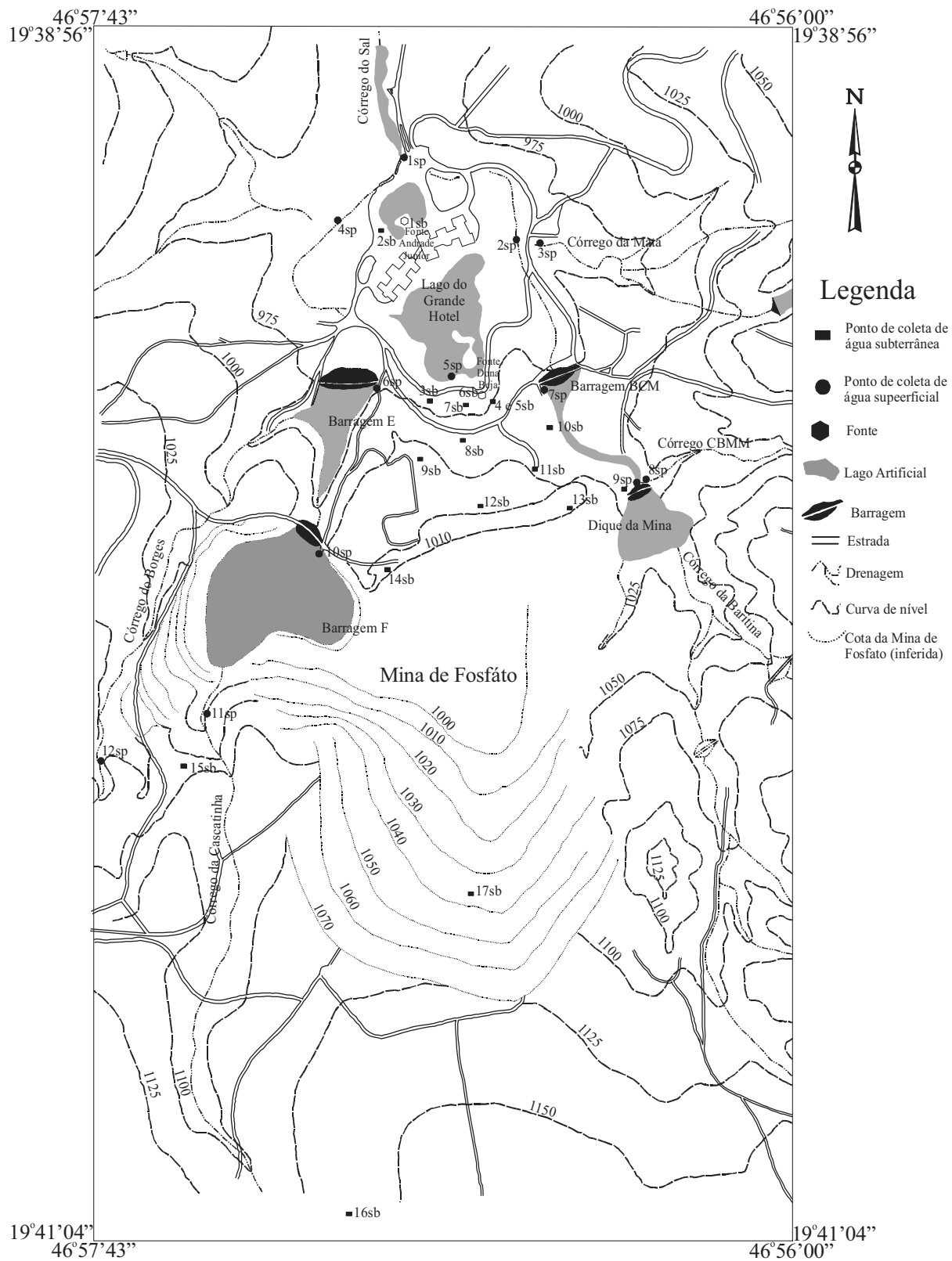
Foram selecionados 12 pontos para a coleta de amostras de águas superficiais e 17 pontos para a coleta de amostras de águas subterrâneas, perfazendo um total de 29 pontos de coleta de água, bem como 6 pontos para coleta de sedimentos de fundo, os quais podem ser observados na Figura 3. As amostragens ocorreram nos períodos de 16-19/02/2000, 12-16/09/2000 e em 15/11/2001.

#### *Procedimento Analítico*

Todas as análises 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. Para cada amostra de água subterrânea e superficial foi coletado, em frasco de polietileno, um volume de 20 a 25 L.

No laboratório, as amostras de água foram filtradas em membrana Millipore de 0,45 µm, para a 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 e 0,177 mm.

Após a filtração, dividiu-se cada amostra de água em três alíquotas: uma de 1 litro para análise química, uma de 4 litros para análise de <sup>226</sup>Ra e o restante para análise de <sup>228</sup>Ra. A membrana utilizada na filtração foi seca e pesada



**Figura 3:** Localização dos pontos de coleta de amostras de águas superficiais e subterrâneas no Complexo Alcalino do Barreiro, Araxá (MG).

para a determinação da quantidade de sólidos em suspensão, parâmetro necessário para a avaliação do rádio presente nessa fase.

Basicamente duas metodologias foram empregadas neste estudo: a técnica emanométrica para a determinação de  $^{226}\text{Ra}$  nas águas e sólidos em suspensão e a espectrometria gama para a análise de  $^{226}\text{Ra}$  nos sedimentos de fundo e de  $^{228}\text{Ra}$  nas águas, sólidos em suspensão e sedimentos de fundo. Os resultados das análises químicas das águas não são objeto de enfoque neste trabalho.

#### *Determinação de $^{226}\text{Ra}$ nas águas e sólidos em suspensão*

O princípio do método consiste em se fazer a emissão e extração do radônio ( $^{222}\text{Rn}$ ) da amostra, proveniente do decaimento do rádio ( $^{226}\text{Ra}$ ), e em se medir a sua atividade (e de seus produtos de decaimento de curta meia-vida) (Lima & Bonotto, 1996).

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:

- 1) Eliminação de  $^{222}\text{Rn}$  residual;
- 2) Espera de no mínimo 26 dias para acúmulo do  $^{222}\text{Rn}$  proveniente do decaimento do  $^{226}\text{Ra}$ ;
- 3) Extração do  $^{222}\text{Rn}$  da amostra através de sistema de circuito fechado, ficando o radônio retido em recipiente contendo carvão ativado a  $-80^\circ\text{C}$ ;
- 4) Transferência do radônio para câmara de cintilação, por meio de um forno a  $200^\circ\text{C}$ ;
- 5) Mensuração do  $^{222}\text{Rn}$  por meio de cintilometria alfa, através de câmara de cintilação acoplada a fotomultiplicadora.

#### *Determinação de $^{226}\text{Ra}$ nos sedimentos de fundo e de $^{228}\text{Ra}$ nas águas, sólidos em suspensão e sedimentos de fundo*

A espectrometria gama baseada na emissão gama natural do  $^{214}\text{Bi}$  (energia da ordem

de 1,76 MeV) foi utilizada para a quantificação de  $^{226}\text{Ra}$  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, adotou-se o procedimento descrito por Duarte & Bonotto (2000). O sistema espectrométrico utilizado foi calibrado em atividade de  $^{226}\text{Ra}$ , utilizando-se para cada padrão a taxa de contagem determinada para o pico do  $^{214}\text{Bi}$  (energia de 1,76 MeV), tendo sido os dois parâmetros normalizados em relação à massa (Mancini, 2002).

A técnica empregada para a determinação de  $^{228}\text{Ra}$  nas águas e sedimentos de fundo foi adaptada de Bonotto (1986, 1996), Mancini (1997) e Mancini & Bonotto (2002). Procedeu-se 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 (Mancini, 2002).

Para a mensuração da atividade de  $^{228}\text{Ra}$  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. Para a obtenção da atividade de  $^{228}\text{Ra}$  foi utilizada a emissão gama natural do  $^{228}\text{Ac}$  com energia da ordem de 911 a 969 keV e o procedimento descrito por Mancini (2002). Neste caso, o sistema empregado para a

detecção da radiação gama consistiu em 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 & Bonotto (2002).

## RESULTADOS E DISCUSSÃO

### *O rádio na área do Morro do Ferro*

A Tabela 1 sumariza os resultados encontrados na análise das amostras das águas subterrâneas e superficiais e dos sólidos em suspensão no Morro do Ferro, Poços de Caldas (MG).

A Figura 4 mostra que baixos valores para o  $^{228}\text{Ra}$  são encontrados tanto na fase líquida quanto no material particulado, porém, quando aumenta o seu transporte nos sólidos em suspensão, também se verifica uma mobilização mais acentuada para a fase líquida. Para algumas amostras, os resultados foram expressos baseando-se no limite crítico de detecção (Mancini & Bonotto, 2002), que é compatível com o determinado por outros pesquisadores (Campos et al., 1986). Para o  $^{226}\text{Ra}$  não é

possível efetuar essa avaliação uma vez que não foram obtidos dados na área relativamente aos sólidos em suspensão. O emprego de escala linear na Figura 4 é conveniente, porque é possível visualizar adequadamente no mesmo gráfico a grande diferença existente no transporte de  $^{228}\text{Ra}$  em SR-5 relativamente aos demais furos de sondagem. Se o diagrama fosse elaborado em escala logarítmica seria também possível verificar que diferenças existem relacionadas com a distribuição de Th nos furos de sondagem e com as respostas às precipitações do nível d'água em cada furo de sondagem (Bonotto, 1989). Devido ao pequeno número de pontos de amostragem, não é justificável a realização de análise estatística direcionada à avaliação da distribuição espacial dos dados na área estudada.

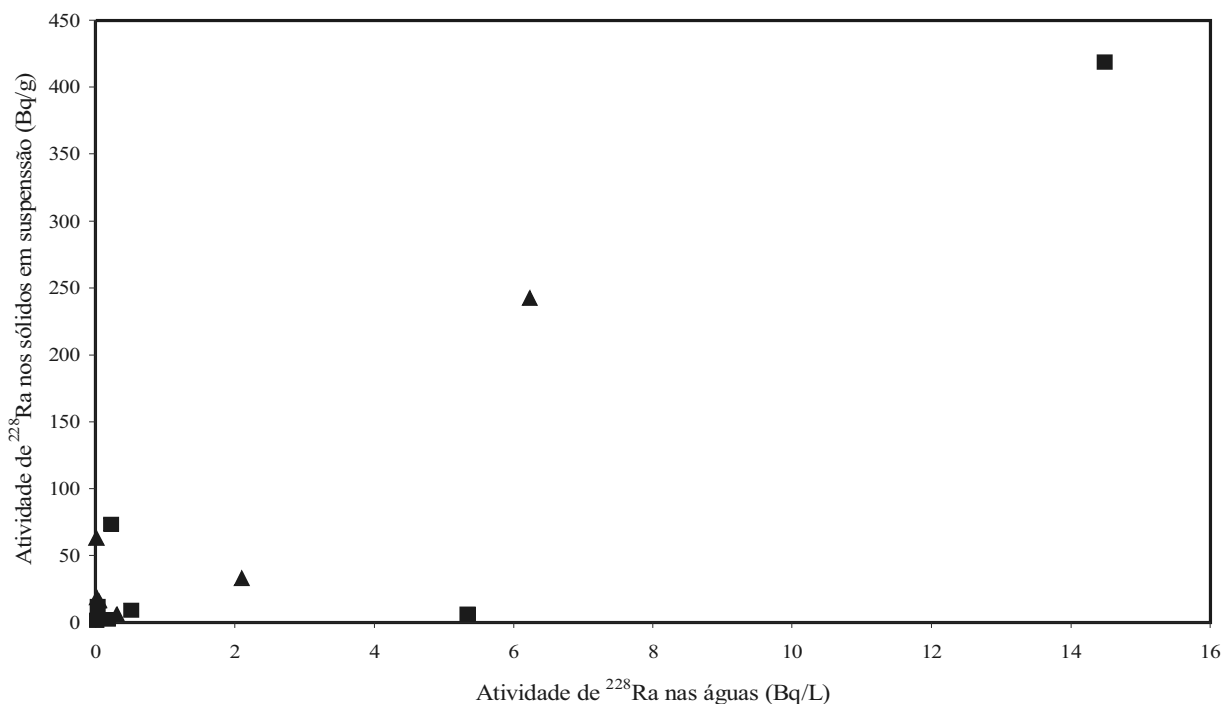
A partir dos valores de atividade de  $^{228}\text{Ra}$  foi possível determinar o  $K_d$  relacionado a este radionuclídeo, como mostra a Tabela 1. É possível constatar que o  $K_d$  do  $^{228}\text{Ra}$ , para as águas subterrâneas, variou de  $1,6 \pm 10^{-7} \text{ g/cm}^3$  a  $6,4 \pm 10^{-5} \text{ g/cm}^3$  (média de  $2,8 \pm 10^{-5} \text{ g/cm}^3$ ) para a coleta realizada em junho de 1996, enquanto que este parâmetro variou de  $3,0 \pm 10^{-6} \text{ g/cm}^3$  a  $8,5 \pm 10^{-4} \text{ g/cm}^3$  (média  $2,0 \pm 10^{-4} \text{ g/cm}^3$ ) para a coleta realizada em janeiro de 1997. Para as

**Tabela 1:** Resultados das análises para  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  nas amostras de águas superficiais, subterrâneas e sólidos em suspensão coletadas na área do Morro do Ferro, Poços de Caldas (MG). Incerteza analítica de  $\pm 10\%$  correspondente a um desvio padrão de 1s.

|                        |                 | Local de Coleta                 |                      |                      |                      |                      |                      |                      |
|------------------------|-----------------|---------------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
|                        |                 | Data de Coleta: 24 e 25/06/1996 |                      |                      |                      |                      |                      |                      |
| Parâmetro              | unidade         | SR-4                            | SR-5                 | SR-6                 | SR-9                 | MF-12                | Pr-Vert              | Vert                 |
| $^{226}\text{Ra}^*$    | Bq/L            | 0,71                            | 1,62                 | 0,89                 | 23,73                | 0,12                 | 0,22                 | -                    |
| $^{228}\text{Ra}^*$    | Bq/L            | < 0,02                          | 6,23                 | < 0,01               | 0,31                 | 2,10                 | < 0,05               | < 0,04               |
| $^{228}\text{Ra}^{**}$ | Bq/g            | < 18,52                         | 242,33               | < 62,96              | 6,26                 | 32,92                | < 16,14              | < 4,87               |
| $K_d^{228}\text{Ra}$   | $\text{g/cm}^3$ | $1,1 \times 10^{-6}$            | $2,6 \times 10^{-5}$ | $1,6 \times 10^{-7}$ | $5,0 \times 10^{-5}$ | $6,4 \times 10^{-5}$ | $3,1 \times 10^{-6}$ | $8,2 \times 10^{-6}$ |
|                        |                 | Data de Coleta: 06/01/1997      |                      |                      |                      |                      |                      |                      |
| $^{226}\text{Ra}^*$    | Bq/L            | 0,38                            | 1,65                 | 0,53                 | 0,33                 | 0,34                 | 0,07                 | 1,20                 |
| $^{228}\text{Ra}^*$    | Bq/L            | < 0,02                          | 14,48                | 0,18                 | 5,34                 | 0,22                 | 0,51                 | < 0,03               |
| $^{228}\text{Ra}^{**}$ | Bq/g            | < 1,53                          | 418,70               | < 2,10               | < 6,25               | 73,22                | < 9,18               | < 12,04              |
| $K_d^{228}\text{Ra}$   | $\text{g/cm}^3$ | $1,3 \times 10^{-5}$            | $3,5 \times 10^{-5}$ | $8,6 \times 10^{-5}$ | $8,5 \times 10^{-4}$ | $3,0 \times 10^{-6}$ | $5,6 \times 10^{-5}$ | $2,5 \times 10^{-6}$ |

\* águas superficiais e subterrâneas; \*\* sólidos em suspensão.





**Figura 4:** Atividade do  $^{228}\text{Ra}$  nos sólidos em suspensão em função da atividade do  $^{228}\text{Ra}$  nas águas do Morro do Ferro, Poços de Caldas (MG) durante a (triângulos) primeira campanha de coleta realizada em 24 e 25/06/1996 e (quadrados) segunda campanha de coleta realizada em 06/01/1997.

águas superficiais, obteve-se um valor médio para o  $K_d$  do  $^{228}\text{Ra}$  na coleta realizada em junho de 1996 correspondente a  $5,6 \pm 10^{-6} \text{ g/cm}^3$ , enquanto que um valor médio de  $2,9 \pm 10^{-5} \text{ g/cm}^3$  para a coleta realizada em janeiro de 1997.

Estes valores médios indicam que tanto para as águas subterrâneas quanto para as águas superficiais, o  $K_d$  do  $^{228}\text{Ra}$  é superior (por um fator de 5-7 vezes) no período chuvoso (janeiro 1997) relativamente ao seco (junho de 1996),

**Tabela 2:** Atividade de  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  nos sólidos em suspensão e águas superficiais do Complexo Alcalino do Barreiro, Araxá (MG). Incerteza analítica correspondente a um desvio padrão de 1s.

| amostra | Coleta 1 (16-19/02/2000) |        |                   |        | Coleta 2 (12-16/09/2000) |        |                   |        |
|---------|--------------------------|--------|-------------------|--------|--------------------------|--------|-------------------|--------|
|         | $^{226}\text{Ra}$        |        | $^{228}\text{Ra}$ |        | $^{226}\text{Ra}$        |        | $^{228}\text{Ra}$ |        |
|         | mBq/L*                   | Bq/g** | mBq/L*            | Bq/g** | mBq/L*                   | Bq/g** | mBq/L*            | Bq/g** |
| 1sp     | 589±30                   | 42±5   | 1971±108          | 56±5   | 1267±54                  | 16±1   | 122±18            | 23±4   |
| 2sp     | 465±28                   | 3±1    | 173±23            | 116±9  | 628±26                   | 53±5   | 223±22            | < 85   |
| 3sp     | 543±33                   | 11±1   | 217±43            | 81±8   | 228±13                   | 30±3   | 93±8              | < 87   |
| 4sp     | 1312±52                  | 39±3   | 364±66            | 40±5   | 1731±64                  | 14±2   | 146±24            | 26±4   |
| 5sp     | 520±23                   | 14±2   | 228±24            | 42±2   | 387±19                   | 24±2   | 245±29            | < 41   |
| 6sp     | 556±36                   | 19±2   | 55±11             | 43±3   | 283±15                   | 24±3   | 58±8              | 76±4   |
| 7sp     | 351±13                   | 3±1    | 156±23            | 26±4   | 103±8                    | 26±2   | 197±14            | 30±7   |
| 8sp     | 920±39                   | 34±5   | 251±20            | 34±6   | 2381±91                  | 25±2   | 182±32            | 31±6   |
| 9sp     | 281±17                   | 33±3   | 144±16            | 85±3   | 244±10                   | 24±4   | 145±19            | < 41   |
| 10sp    | 349±18                   | -      | 65±8              | 42±4   | 588±27                   | 42±2   | 47±5              | 20±3   |
| 11sp    | 200±9                    | 13±1   | 63±8              | 24±2   | 320±14                   | 39±6   | 51±7              | 38±7   |
| 12sp    | 1071±60                  | 16±1   | 162±13            | 278±13 | 1417±71                  | 55±4   | 63±13             | 14±3   |

\* águas superficiais; \*\* sólidos em suspensão.

mostrando que as diferenças sazonais afetam o transporte de  $^{228}\text{Ra}$ .

No que se refere ao  $K_d$  para o  $^{226}\text{Ra}$ , uma vez que não foram determinados valores para os sólidos em suspensão, pode-se obter uma estimativa a partir do valor correspondente a 0,76 Bq/g encontrado para o  $^{226}\text{Ra}$  nos sedimentos de fundo. Considerando a primeira campanha de coleta realizada em 24 e 25/06/1996, bem como o valor de 0,22 Bq/L determinado para o  $^{226}\text{Ra}$  dissolvido nas águas superficiais, é possível estimar um  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$  em cerca de 3500  $\text{cm}^3/\text{g}$ . Este resultado é razoável quando comparado com aqueles determinados por Barcellos et al. (1990), que encontraram um valor médio de 5000  $\text{cm}^3/\text{g}$  para o mesmo parâmetro a partir da análise de amostras de águas superficiais do planalto de Poços de Caldas.

Contudo, para fins de comparação com o  $K_d$  determinado para o  $^{228}\text{Ra}$  é preciso efetuar a inversão do valor correspondente a 3500  $\text{cm}^3/\text{g}$ , o que acaba resultando em cerca de  $3 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$ . Isto sugere maior mobilidade para a fase líquida do  $^{226}\text{Ra}$  relativamente ao  $^{228}\text{Ra}$ , possivelmente relacionada com a maior mobilidade do urânio relativamente à do tório

no ambiente supérgeno e/ou posição diferencial de cada um desses nuclídeos em suas respectivas séries de decaimento.

#### *O rádio nas águas superficiais do Barreiro*

Na Tabela 2 constam os resultados da atividade de  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  nos sólidos em suspensão e águas superficiais do Barreiro nas duas etapas de campo. Foi necessário determinar o limite crítico de detecção (Mancini & Bonotto, 2002) da atividade de  $^{228}\text{Ra}$  nos sólidos em suspensão para 4 amostras na segunda etapa de coleta. Na Tabela 3 constam os coeficientes de distribuição para o  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  nas águas superficiais do Barreiro, para as duas etapas de campo.

Para as águas superficiais correspondentes ao lado leste da área (grupo 1), o  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$  variou de  $0,3 \pm 10^{-4}$  a  $5,7 \pm 10^{-4} \text{ g/cm}^3$  (média de  $1,6 \pm 10^{-4} \text{ g/cm}^3$ ) para a primeira etapa de campo, e de  $0,04 \pm 10^{-4}$  a  $1 \pm 10^{-4} \text{ g/cm}^3$  (média de  $0,3 \pm 10^{-4} \text{ g/cm}^3$ ) para a segunda. No geral, a diminuição do  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$  para o período seco está relacionada com a diminuição da atividade de  $^{226}\text{Ra}$  na fase líquida.

Para as águas superficiais correspondentes ao lado oeste da área (grupo

**Tabela 3:** Coeficiente de distribuição ( $K_d$ ) do  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  para as águas superficiais do Complexo Alcalino do Barreiro, Araxá (MG).

| Amostra | Coleta 1 (16-19/02/2000)                                       |  | Coleta 2 (12-16/09/2000)                                       |  |
|---------|--|--|--|--|
|         | $K_d (^{226}\text{Ra})$<br>( $\times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$ ) | $K_d (^{228}\text{Ra})$<br>( $\times 10^{-6} \text{ g/cm}^3$ ) | $K_d (^{226}\text{Ra})$<br>( $\times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$ ) | $K_d (^{228}\text{Ra})$<br>( $\times 10^{-6} \text{ g/cm}^3$ ) |
| 1sp     | 0,23   | 35,00  | 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   |

2), obteve-se uma variação para o  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$  de  $0,3\pm 10^{-4}$  a  $1,3\pm 10^{-4}$   $\text{g}/\text{cm}^3$  (média de  $0,7\pm 10^{-4}$   $\text{g}/\text{cm}^3$ ) para a primeira etapa de campo, e de  $0,3\pm 10^{-4}$  a  $1,2\pm 10^{-4}$   $\text{g}/\text{cm}^3$  (média de  $0,4\pm 10^{-4}$   $\text{g}/\text{cm}^3$ ) para a segunda etapa de campo. Neste caso, assim como para o grupo 1, a diminuição do  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$  para o período seco está relacionada com a diminuição da atividade de  $^{226}\text{Ra}$  na fase líquida, embora para o grupo 1 as diferenças sejam menores, não ficando tão evidente a influência sazonal no comportamento do  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$ . O que parece controlar as variações do  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$  para o grupo 1 é a maior presença de  $^{226}\text{Ra}$  nos sólidos em suspensão.

A variação do  $K_d$  do  $^{228}\text{Ra}$  nas águas superficiais do lado leste do Barreiro (grupo 1) para as duas etapas de campo foi de  $1,5\pm 10^{-6}$  a  $7,3\pm 10^{-6}$   $\text{g}/\text{cm}^3$  (média de  $3,9\pm 10^{-6}$   $\text{g}/\text{cm}^3$ ) para a primeira etapa de campo e de  $1,1\pm 10^{-6}$  a  $6,6\pm 10^{-6}$   $\text{g}/\text{cm}^3$  (média de  $4,0\pm 10^{-6}$   $\text{g}/\text{cm}^3$ ) para a segunda etapa de campo. Praticamente não há diferença para o  $K_d$  do  $^{228}\text{Ra}$  entre os períodos chuvoso e seco mostrando, assim, a pouca mobilidade do  $^{228}\text{Ra}$ , principalmente na fase líquida.

A variação do  $K_d$  do  $^{228}\text{Ra}$  nas águas superficiais do lado oeste do Barreiro (grupo 2)

para as duas etapas de campo foi de  $0,6\pm 10^{-6}$  a  $9,0\pm 10^{-6}$   $\text{g}/\text{cm}^3$  (média de  $3,0\pm 10^{-6}$   $\text{g}/\text{cm}^3$ ) para a primeira etapa de campo e de  $0,8\pm 10^{-6}$  a  $5,6\pm 10^{-6}$   $\text{g}/\text{cm}^3$  (média de  $2,9\pm 10^{-6}$   $\text{g}/\text{cm}^3$ ) 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  $^{228}\text{Ra}$ , principalmente porque nesta região ocorre uma menor atividade de  $^{228}\text{Ra}$  nos sedimentos.

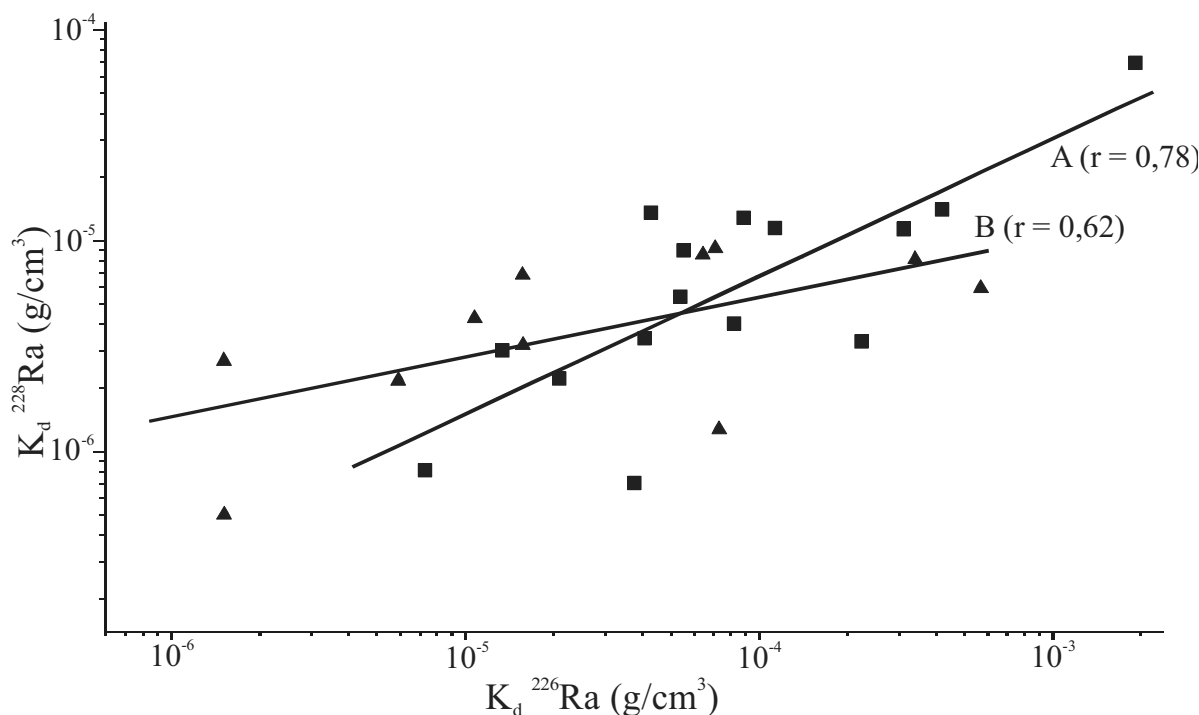
O ponto 5sp apresenta valores do  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$  da mesma ordem de grandeza dos demais pontos, para as duas etapas de campo (Tabela 2). Há um aumento de aproximadamente duas vezes no valor para a segunda etapa de campo em relação à primeira etapa. Já o  $K_d$  do  $^{228}\text{Ra}$  apresentou 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  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$  são da mesma ordem de grandeza da maioria dos pontos analisados, sem ocorrer queda no período seco. Já o  $K_d$  do  $^{228}\text{Ra}$  tem um comportamento inverso ao  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$ , com um valor superior aos demais para a primeira etapa de campo (Tabela 2), o qual se deve ao valor anômalo da atividade de  $^{228}\text{Ra}$  na água. Este comportamento do ponto

**Tabela 4:** Atividade de  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  nos sólidos em suspensão e águas subterrâneas do Complexo Alcalino do Barreiro, Araxá (MG). Incerteza analítica correspondente a um desvio padrão de 1s.

| amostra | Coleta 1 (16-19/02/2000) |         |                   |        | Coleta 2 (12-16/09/2000) |        |                   |        |
|---------|--------------------------|---------|-------------------|--------|--------------------------|--------|-------------------|--------|
|         | $^{226}\text{Ra}$        |         | $^{228}\text{Ra}$ |        | $^{226}\text{Ra}$        |        | $^{228}\text{Ra}$ |        |
|         | mBq/L*                   | Bq/g**  | mBq/L*            | Bq/g** | mBq/L*                   | Bq/g** | mBq/L*            | Bq/g** |
| 1sb     | 589±30                   | 45±4    | 133±13            | 45 ±2  | -                        | 58±2   | 42±6              | 23±3   |
| 2sb     | 465±28                   | 12±1    | 11±2              | 15±2   | 79±7                     | 52±5   | 45±1              | <86    |
| 3sb     | 543±33                   | 26±1    | 65±7              | 29±3   | 983±48                   | 14±1   | 116±15            | 13±2   |
| 4sb     | 1312±52                  | 12±1    | 173±16            | 15±1   | 460±17                   | 30±2   | 146±10            | < 21   |
| 5sb     | 520±23                   | 12±1    | 127±14            | 9±1    | 1872±77                  | -      | 92±18             | < 126  |
| 6sp     | 556±36                   | 79±8    | 140±12            | 168±8  | 396±22                   | 26±2   | 155±14            | < 48   |
| 7sb     | 351±13                   | 1±0,3   | 114±17            | 8±1    | 48±8                     | 32±3   | 156±11            | < 58   |
| 8sb     | 920±39                   | 0,5±0,1 | 55±7              | 1±0,1  | -                        | -      | -                 | -      |
| 9sb     | 281±17                   | 3±1     | 48±4              | 12±1   | 129±8                    | 12±1   | 47±6              | 11±1   |
| 10sb    | 349±18                   | 4±0,4   | 98±9              | 8±1    | 798±36                   | -      | 114±22            | 9±1    |
| 11sb    | 200±9                    | 4±0,3   | 54±7              | 10±1   | 1818±64                  | 13±1   | 137±10            | 23±2   |
| 12sb    | 1071±60                  | 5±1     | 58±8              | 18±2   | -                        | -      | -                 | -      |
| 13sb    | -                        | -       | -                 | -      | 2496±109                 | 8±1    | 74±9              | 9±1    |
| 14sb    | 355±19                   | 1±0,2   | 49±6              | 4±0,5  | 387±15                   | 6±0,5  | 33±3              | 4±1    |
| 15sb    | 705±39                   | 18±1    | 61±11             | 18±2   | 596±18                   | 8±1    | 32±7              | < 25   |
| 16sb    | -                        | -       | -                 | -      | 637±23                   | 30±4   | -                 | 44±6   |
| 17sb    | 683±39                   | 12±2    | 126±11            | 14±2   | 414±22                   | 70±5   | 51±5              | 23±2   |

\*águas superficiais; \*\* sólidos em suspensão.



**Figura 5:** Relação entre o  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$  e o  $K_d$  do  $^{228}\text{Ra}$  das águas subterrâneas do Complexo Alcalino do Barreiro, Araxá (MG) no (A, %) período chuvoso e (B, 20%) período seco.

Isp relativo ao  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  demonstra como podem ocorrer alterações pontuais significativas afetando o seu transporte. Tais mudanças também foram observadas para outros pontos analisados. Apesar destas peculiaridades, em termos gerais, quando se consideram as médias obtidas para os  $K_d$ s de  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$ , verifica-se um comportamento relativamente similar entre as duas drenagens.

#### *O rádio nas águas subterrâneas do Barreiro*

Na Tabela 4 constam os resultados da atividade de  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  nos sólidos em suspensão e águas subterrâneas do Barreiro nas duas etapas de campo. Para a segunda etapa de coleta, foi necessário determinar o limite crítico de detecção (Mancini & Bonotto, 2002) da atividade de  $^{228}\text{Ra}$  nos sólidos em suspensão para 6 amostras. Na Tabela 5 constam os

**Tabela 5:** Coeficiente de distribuição ( $K_d$ ) do  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  para as águas subterrâneas do Complexo Alcalino do Barreiro, Araxá (MG).

| Amostra | Coleta 1 (16-19/02/2000)  |   | Coleta 2 (12-16/09/2000)  |   |
|---------|---|---|---|---|
|         | $K_d$ ( $^{226}\text{Ra}$ )<br>( $\times 10^{-4}$ g/cm <sup>3</sup> ) | $K_d$ ( $^{228}\text{Ra}$ )<br>( $\times 10^{-5}$ g/cm <sup>3</sup> ) | $K_d$ ( $^{226}\text{Ra}$ )<br>( $\times 10^{-4}$ g/cm <sup>3</sup> ) | $K_d$ ( $^{228}\text{Ra}$ )<br>( $\times 10^{-5}$ g/cm <sup>3</sup> ) |
| 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  | -   |
| 17sb    | 0,55  | 0,90  | 0,06  | 0,22  |

coeficientes de distribuição para o  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  nas águas subterrâneas do Barreiro, para as duas etapas de campo.

O  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$  para o aquífero granular variou de  $0,1\pm 10^{-4}$  a  $19,6\pm 10^{-4}$   $\text{g}/\text{cm}^3$  (média de  $2,5\pm 10^{-4}$   $\text{g}/\text{cm}^3$ ) para a primeira etapa de campo e de  $0,01\pm 10^{-4}$  a  $5,5\pm 10^{-4}$   $\text{g}/\text{cm}^3$  (média de  $1\pm 10^{-4}$   $\text{g}/\text{cm}^3$ ) para a segunda. Este aquífero se comporta de maneira similar às águas superficiais relativamente ao  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$ , 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 variação do  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$  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  $^{226}\text{Ra}$  na fase líquida quanto na sólida.

A variação do  $K_d$  do  $^{228}\text{Ra}$  nas águas subterrâneas do Barreiro, para as duas etapas de campo, para o aquífero granular, variou de  $0,1\pm 10^{-5}$  a  $7,1\pm 10^{-5}$   $\text{g}/\text{cm}^3$  (média de  $1,2\pm 10^{-5}$   $\text{g}/\text{cm}^3$ ) para a primeira etapa de campo e de  $0,1\pm 10^{-5}$  a  $1,2\pm 10^{-5}$   $\text{g}/\text{cm}^3$  (média de  $0,5\pm 10^{-5}$   $\text{g}/\text{cm}^3$ ) para a segunda. Da mesma forma que para o  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$ , há uma diminuição do  $K_d$  do  $^{228}\text{Ra}$  para o período seco, neste caso, relacionado com o aumento do  $^{228}\text{Ra}$  na fase sólida. Observa-se, ainda, que o  $K_d$  do  $^{228}\text{Ra}$  exibe um comportamento mais regular do que o do  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$ , 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  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$  e  $K_d$  do  $^{228}\text{Ra}$  ocorrendo no período chuvoso.

Testes estatísticos de correlação, com nível de significância de 95% e grau de liberdade 1, envolvendo o  $K_d$  dos dois isótopos de rádio para as duas etapas de coleta foram realizados (Figura 5), indicando que eles estão relacionados, de uma maneira geral, em toda a área de investigação.

### *Coeficiente geral de distribuição de rádio para a área do Barreiro*

Os resultados obtidos permitiram determinar os coeficientes gerais para a distribuição de Ra na área do Barreiro, 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  $K_d$  médio do  $^{226}\text{Ra}$  para as águas superficiais é de  $9,83\pm 10^{-5}$   $\text{g}/\text{cm}^3$  e para o período seco é de  $3,37\pm 10^{-5}$   $\text{g}/\text{cm}^3$ , implicando, assim, numa média geral de  $6,60\pm 10^{-5}$   $\text{g}/\text{cm}^3$  para o  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$ . O  $K_d$  médio do  $^{228}\text{Ra}$  para as águas superficiais é de  $6,26\pm 10^{-6}$   $\text{g}/\text{cm}^3$  para o período chuvoso e de  $3,79\pm 10^{-6}$   $\text{g}/\text{cm}^3$  para o período seco, implicando, assim, numa média geral de  $5,02\pm 10^{-6}$   $\text{g}/\text{cm}^3$ . Verifica-se, portanto, que o  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$  é superior por um fator de 13 ao  $K_d$  do  $^{228}\text{Ra}$ , indicando menor mobilidade do  $^{228}\text{Ra}$  relativamente ao  $^{226}\text{Ra}$ , conforme também constatado neste trabalho para o Morro do Ferro.

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

### CONSIDERAÇÕES FINAIS

Os valores que foram determinados para o  $K_d$  do  $^{226}\text{Ra}$  e do  $^{228}\text{Ra}$  para as águas do Barreiro e do Morro do Ferro estão, no geral, dentro do intervalo definido por Benes (1984), que é de  $10^{-3}$   $\text{g}/\text{cm}^3$  a  $10^{-6}$   $\text{g}/\text{cm}^3$ . Barcelos (1990) obteve um  $K_d$  médio para o  $^{226}\text{Ra}$  da

ordem de  $10^{-4}$  g/cm<sup>3</sup> para águas superficiais do Planalto de Poços de Caldas, que é da mesma ordem de grandeza daquele que foi determinado para o Córrego Sul, neste trabalho. Esta ordem de grandeza é, contudo, superior por um fator de 10 à do  $K_d$  do <sup>226</sup>Ra para as águas superficiais do Barreiro, refletindo as particularidades de cada área.

Bonotto (1998) também estimou o  $K_d$  para as águas subterrâneas de SR-5 no Morro do Ferro, encontrando valores de  $5,6 \pm 10^{-5}$  g/cm<sup>3</sup> e de  $6,3 \pm 10^{-4}$  g/cm<sup>3</sup>, respectivamente, para o <sup>226</sup>Ra e <sup>228</sup>Ra. Segundo estes dados, a mobilidade do <sup>228</sup>Ra para a fase líquida seria superior à do <sup>226</sup>Ra, diferentemente do que foi verificado neste trabalho. Ainda, no caso do <sup>228</sup>Ra, o valor referido por Bonotto (1998) é maior que aqueles encontrados neste trabalho. Por isto, é importante ressaltar que diferenças sazonais são de extrema importância nos estudos de migração/transporte de radionuclídeos para a fase líquida, assim como comumente verificado para parâmetros físico-químicos e elementos principais/menores avaliados durante os processos de interação água/solo-rocha no ambiente supérgeno.

Especificamente na área do Barreiro, verifica-se um transporte preferencial de <sup>226</sup>Ra e de <sup>228</sup>Ra para a fase líquida das águas subterrâneas em relação às superficiais, talvez relacionado com o maior tempo de residência das águas subterrâneas no aquífero, uma vez que isto pode favorecer a ocorrência da transferência de rádio para a fase líquida, em decorrência das interações que ocorrem com os estratos do aquífero. Porém, os dados disponíveis para o Morro do Ferro não possibilitam afirmar se isto também ocorre naquela área, sobretudo, quando também se leva em conta as influências sazonais no transporte de radionuclídeos.

#### AGRADECIMENTOS

À FAPESP-Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo pelo suporte financeiro (Processos Nº 96/0728-7 e Nº 99/12401-0). À CAPES-Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior pela Bolsa de Mestrado concedida. Ao CNPq – Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico pela Bolsa de Doutorado concedida (Processo Nº 141528/1998-2). Aos revisores anônimos pelas sugestões oportunas e relevantes.

#### REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ALMEIDA, E. B. (1977) Geology of the bauxite deposits of the Poços de Caldas district, State of Minas Gerais, Brazil. Stanford.PhD Thesis- Stanford University.
- BARBOSA, R. A. (1979) Síntese petrográfica do planalto de Poços de Caldas. *Min. Met.*, 42(408): 38-41.
- BARCELLOS, C. C.; AMARAL, E.; ROCHEDO, E. (1990) Radionuclide transport by Poços de Caldas plateau rivers, Brazil. *Environmental Technology*, 11(6): 533-540.
- BARRETTO, P. M. C. & FUJIMORI, K. (1986) Natural analogue studies: geology and mineralogy of Morro do Ferro, Brazil. *Chemical Geology*, 55(3/4): 297-312.
- BEATO, D. A. C.; VIANA, H. S.; DAVIS, E. G. (2000) Avaliação e diagnóstico hidrogeológico dos aquíferos de águas minerais do Barreiro do Araxá, MG – Brasil. Joint World Congress on Groundwater, I. Fortaleza. Anais... Fortaleza,. 1 CD-ROM.
- BENES, P. Migration of radium in terrestrial hydrosphere. (1984) In *The Behavior of Radium the Waterways and Aquifers*, IAEA TECDOC 301: 117-173, Vienna.
- BJÖRNBERG, A. J. S. (1959) Rochas clásticas do Planalto de Poços de Caldas. São Paulo, Boletim da FFCL USP (Geologia), São Paulo, 237(18): 65-123,.

- BONOTTO, D.M. (1986) Aplicações Hidrogeoquímicas dos Isótopos Naturais das Séries do U(4n+2) e Th(4n) no Morro do Ferro, Poços de Caldas (MG). Tese de Doutorado - Instituto Astronômico e Geofísico, Universidade de São Paulo, 378p.
- BONOTTO, D. M. (1989) The behaviour of dissolved uranium in groundwaters of the Morro do Ferro thorium deposit, Brazil. *Journal of Hydrology*, 107: 155-168.
- BONOTTO, D. M. (1996) Comportamento hidrogeoquímico do  $^{222}\text{Rn}$  e isótopos de urânio  $^{238}\text{U}$  e  $^{234}\text{U}$  sob condições controladas de laboratório e em sistemas naturais. Tese de Livre Docência, IGCE – UNESP, 223p.
- BONOTTO, D. M. (1998) Implication of groundwater weathered profile interaction to the mobilization of radionuclides. *Journal of South American Earth Sciences*, 11(4): 389-405.
- BRAGA, J.R.K. & BORN, H. (1988) Características geológicas e mineralógicas da mineralização apatítica de Araxá. Congresso Brasileiro de Geologia, 35. Belém, Anais ... Belém, SBG, 1: 219-226.
- CAMPOS, M. J.; FRANCA, E. P.; LOBÃO, N.; TRINDADE, H.; SACHETT, I. (1986) Migration of radium from the thorium ore deposit of Morro do Ferro, Poços de Caldas, Brazil. *J. Environ. Radioactivity*, 3: 145-161.
- CASTRO, L. O. & SOUZA, J. M. (1970) Estudo de urânio e terras raras associadas ao nióbio de Araxá - MG. Instituto de Pesquisa Radioativas. UFMG, CNEN, 59p.
- DAVIDSON, M. R. & DICKSON, B. L. (1986) A porous flow model for steady state transport of radium in groundwater. *Water Resources Research*, 22(1): 34-44.
- DUARTE, C. R. & BONOTTO, D. M. (2000) Calibração em energia e concentração de espectrômetro gama para análise de U, Th e K. *Geociências*, 19(2): 313-319.
- EDGINGTON, D.N. (1982) Sediment-water interactions and models for the transport and fate of radionuclides in rivers. In *Sediments and pollution in waterways*, Vienna IAEA - TECDOC-302: 159-185.
- ELLERT, R. (1959) Contribuição à geologia do maciço alcalino de Poços de Caldas. São Paulo, *Boletim da FFCL USP (Geologia)*, São Paulo, 237(8): 5-64.
- FUNTEC (1984) 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.
- GROSSI SAD, J. H. & TORRES, N (1976) Geology and mineral resources of the Barreiro Complex, Araxá, Brazil. Simpósio Internacional de Carbonatitos, I. Poços de Caldas. Anais ... Poços de Caldas, 307-312.
- HANCOCK, G. J. & MURRAY, A. S. (1996) Source and distribution of dissolved radium in the Bega River estuary, Southeastern Australia. *Earth and Planetary Science Letters*, 138:145-155.
- HOLMES, D. C.; PITTY, A. E.; NOY, D. J. (1992) Geomorphological and hydrogeological features of the Poços de Caldas Caldera analogue studies sites. *J. Geochem. Expl.*, 45: 215-247.
- IAEA (1982) International Atomic Energy Agency, *Sediments and pollution in waterways*. IAEA – TECDOC 302, Vienna.
- IPT (1982) Instituto de Pesquisas Tecnológicas do Estado de São Paulo S/A. Estudos para caracterização do comportamento do lençol freático na área do Morro do Ferro, Poços de Caldas (MG). São Paulo, DMGA. Relatório, 16423 (22): 16p.

- ISSA FILHO, A.; LIMA, P. R. A. S.; SOUZA, O. M. (1984) 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, 21-44.
- KEY, R. M.; STALLARD, R. F.; MOORE, W. S.; SARMIENTO, J. L. (1985) Distribution and flux of  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Ra}$  in the Amazon River Estuary. *Journal of Geophysical Research*, 90(C4): 6995-7004.
- LAURIA, D. C. & GODOY J. M. (2000) Origem e transporte de rádio nas águas subterrâneas de Buena (RJ). *Joint World Congress on Groundwater, I. Fortaleza, Anais ... Fortaleza.*, 1 CD-ROM.
- LEI, W. (1984) Thorium mobilization in a terrestrial environment. New York, New York University Medical Center, Ph.D. Thesis, 414p.
- LI, Y.H. & CHAN, L.H. (1979) Desorption of Ba and  $^{226}\text{Ra}$  from river borne sediments in the Hudson Estuary. *Earth and Planetary Science Letters*, 49: 343-350.
- LIMA, J. L. N. & BONOTTO, D. M. (1996) Etapas Analíticas Para A Mensuração de Radônio-222 e Implicações Na Avaliação da Radioatividade de Águas da Prata (Sp). *GEOCHIMICA BRASILIENSIS, RIO DE JANEIRO (RJ)*, 10(2): 283-295.
- MANCINI, L. H. (1997) 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, 138p.
- MANCINI, L. H. (2002) Migração de  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  nas águas superficiais e subterrâneas no Complexo Alcalino do Barreiro, Araxá (MG). *Tese de Doutorado*. Instituto de Geociências e Ciências Exatas, Universidade Estadual Paulista. Rio Claro, 168p.
- MANCINI, L. H. & BONOTTO, D. M. (2002) A method for evaluating  $^{228}\text{Ra}$  in environmental matrices and its use at Poços de Caldas plateau, Brazil. *Applied Radiation and Isotopes*, 57: 591-600.
- OKUBO, T.; FURUYAMA, K.; SAKANOUÉ, M. (1979) Distribution of  $^{228}\text{Ra}$  in surface sea water of the East Indian Ocean. *Geochemical Journal*, 13: 201-206.
- SILVA, A.B. (1987) Jazida de nióbio de Araxá, Minas Gerais. *Principais depósitos minerais do Brasil*, 2(XXXV): 435-453.
- WEBSTER, I. T.; HANCOCK, G. J.; MURRAY, A. S. (1995) Modeling the effect of salinity on radium desorption from sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 59(12): 2469-2476.

(Footnotes)

To whom the correspondence should be sent: [lmancini@usp.br](mailto:lmancini@usp.br),