

## URÂNIO EM MATERIAL BIOLÓGICO II: URÂNIO NO CEARÁ, BRASIL

Pereira, W.S.<sup>1 e 2</sup>, Silva, A. X.<sup>3</sup>, Kelecom, A.<sup>4</sup> e Espindola, C. B.<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Laboratório de Monitoramento de Efluentes Líquidos - LAMEL, Curso de Mestrado Profissional em Ciências do Meio Ambiente, Universidade Veiga de Almeida - UVA, Rua Ibituruna, 108, Tijuca, Rio de Janeiro, CEP 20.271-020, Brasil.

<sup>2</sup> Grupo Multidisciplinar de Radioproteção - GMR, Serviço de Radioproteção - SR, Coordenação de Radioproteção, Licenciamento e Salvaguardas - CPRAL.N, Fábrica do Combustível Nuclear - FCN, Indústrias Nucleares do Brasil S.A. - INB, Rodovia Presidente Dutra km 330 – Engenheiro Passos CEP 27.555-000, Resende – RJ – Brasil.

<sup>3</sup> Programa de Engenharia Nuclear/COPPE, Departamento de Engenharia Nuclear/Escola Politécnica, Universidade Federal do Rio de Janeiro, Caixa Postal 68.509 - Rio de Janeiro CEP 21941-972, Brasil

<sup>4</sup> Laboratório de Radiobiologia e Radiometria Pedro Lopes dos Santos - LARARA-PLS, Grupo de Estudos em Temas Ambientais - GETA, Universidade Federal Fluminense – UFF, C.P. 100436, CEP 24.001-970, Niterói, RJ, Brasil.

### RESUMO

A jazida de Santa Quitéria é uma jazida de fosfato com urânio associado, caracterizando uma mineração *Naturally Occurring Radioactive Material* - NORM. Entre 2006 e 2009 foram analisados cinco materiais biológicos (MB): feijão (8 amostras), leite (11), milho (8), palma (3) e peixe (5). Foram analisadas ao todo 35 amostras. As concentrações de atividade (CA) do urânio natural (*i.e.*  $U_{nat}$  - urânio nas proporções isotópicas naturais) foram determinadas pelo método do arsenazo, que consiste na extração com solvente da fase aquosa e posterior espectrofotometria. Os valores obtidos foram submetidos à análise estatística descritiva e após a uma análise de variância (ANOVA). Por fim, os MB foram agrupados pelo método de “Tukey”. Os valores de CA variaram de 0,0234 a 0,1676 Bq.kg<sup>-1</sup>. A ANOVA demonstrou diferenças entre as CA nos materiais analisados. O método de “Tukey” confirmou esse resultado, agrupando os materiais em três grupos: um com maior concentração de atividade, composto de peixe e palma e outro com menor concentração de atividade, representado por palma, milho, feijão e leite, além de um terceiro grupo composto apenas pela palma que está presente nos dois grupos citados. Pode-se concluir que o comportamento radioecológico dos materiais biológicos analisados é simples havendo um grupo com maiores CA, e outro de menor CA. A palma ficou em uma posição intermediária, sendo neste caso considerado, do ponto de vista radioecológico, um grupo com CA intermediária. Com essa visão radioecológica temos três grupos de MB um de alta CA, outra de CA média e outro com CA baixa entre os MB estudados na região de Santa Quitéria.

### 1. INTRODUÇÃO

Esse trabalho foi realizado na região do município de Santa Quitéria, no Estado do Ceará, Brasil. A área é considerada como de *Naturally Occurring Radioactive Materials* – NORM. Essa classificação se deve ao fato de existir na região uma jazida de fosfato com urânio e tório associado.

As CA dos radionuclídeos naturais no ambiente natural são via de regra baixas, gerando muitas medidas abaixo do limite de detecção ou geralmente, com altas incertezas associadas.

Nas regiões NORM, os radionuclídeos naturais estão presentes, na maioria das vezes, com CA mais altas que as encontradas nas regiões de radioatividade natural, sendo, portanto mais facilmente mensuráveis e tendo menor incerteza associada à medida que a apresentada nas áreas de radioatividade natural.

Por essa razão, as regiões NORM são regiões de interesse na avaliação da radioecologia dos radionuclídeos naturais, sendo considerados laboratórios naturais e bastante estudadas [1-7].

Em todo o mundo a mineração de fosfato é reconhecida área NORM [1 - 3]. Várias fases do processo podem alterar as CA dos radionuclídeos naturais em diversas matrizes ambientais e com isso gerar impactos radiológicos ambientais (IRA) [1,2, 4 - 7], *e.g.* a mineração [5 e 7]; o beneficiamento [6], o armazenamento de rejeitos e resíduos [5 - 7] e na utilização do fosfato na agricultura [4].

A norma brasileira prevê regulamentação radiológica da prática de mineração e beneficiamento do fosfato. ‘Prática’ é definida em norma [8] como toda atividade humana que introduz *fontes* de *exposição* ou vias de *exposição* adicionais ou estende a *exposição* a mais pessoas, ou modifica o conjunto de vias de *exposição* devida a *fontes* existentes, de forma a aumentar a probabilidade de *exposição* de pessoas ou o número de pessoas expostas.

Para a regulamentação é necessário vários processos administrativos e autorizações do órgão regulador da energia nuclear no Brasil: a Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN). Esses requisitos estão constantes em diversas normas [8 – 14] e outras normas vigentes, além das licenças de outros órgãos reguladores de outros aspectos ambientais e de mineração.

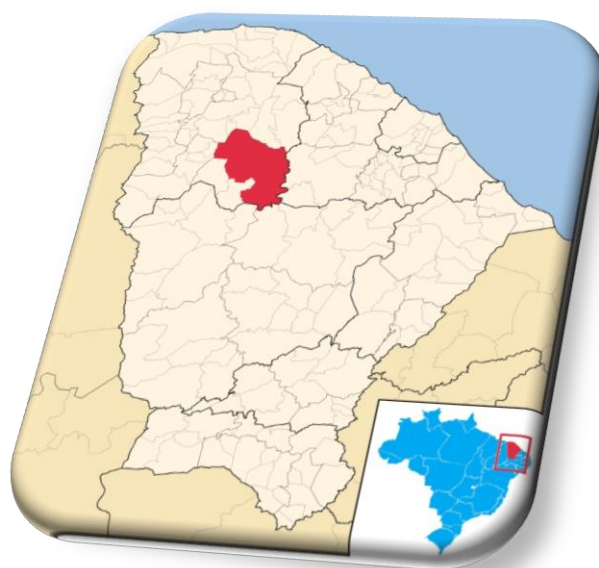
Um dos aspectos importantes do processo de licenciamento é o estabelecimento de uma linha de base, isto é, estabelecimento das CA no ambiente do entorno do futuro empreendimento, para poder realizar a comparação com as alterações que o empreendimento irá causar no ambiente, após sua entrada em operação [9] e assim poder avaliar o IRA do empreendimento visando sua viabilidade e sustentabilidade ambiental do ponto de vista radiológico.

O presente trabalho visa avaliar o comportamento ambiental do  $U_{nat}$  (*i.e.* os isótopos de urânio nas proporções isotópicas naturais) na área de influência da jazida de Santa Quitéria em diversos MB (feijão, leite, milho, palma e peixe) com influência no IRA. A avaliação foi realizada antes da entrada do empreendimento em atividade.

## 2. METODOLOGIA

### 2.1. Área de Estudo

Com uma reserva recuperável de  $8 \cdot 10^6$  t de  $P_2O_5$  e  $80 \cdot 10^3$  t de  $U_3O_8$  equivalentes, a jazida de fosfato de Santa Quitéria se localiza, na região centro norte do Estado do Ceará, ver figura 01 [15]. A área é caracterizada ecologicamente como um ecótono entre caatinga e cerrado, dois ecossistemas ameaçados, com incrustações de florestas tropicais e áreas de ocupação humana [3]. A região está sobre influência do clima “Bsh”, sendo caracterizada como região de clima semiárido, com estação chuvosa entre janeiro e maio, com chuvas esporádicas em junho-julho. A precipitação anual fica entre 550 e 960 mm[15].



**Figura 01 – Localização da área de estudo no Brasil e no Estado do Ceará.**

## **2.2. Material Biológico a ser Avaliado**

Foram amostrados os seguintes materiais biológicos (MB): feijão de corda, leite bovino, sementes de milho, folhas de palma e peixe (tilápia). O tamanho de cada amostra pode ser visto na Tabela 01, abaixo

**Tabela 01 – Material biológico amostrado no entorno da jazida de fosfato de Santa Quitéria e o tamanho da amostra.**

Material biológico	Número de amostras
Feijão de corda	8
Leite bovino	11
Sementes de milho	8
Folhas de palma	3
Peixe (tilápia)	5

## **2.3. Coleta e Preparação das Amostras**

As amostras biológicas foram coletadas no entorno da jazida de fosfato de Santa Quitéria entre os anos de 2006 e 2009, secos até peso constante em temperatura inferior a 90 °C e calcinados. Para calcinação foi usado um aumento progressivo da temperatura onde o processo foi iniciado com a temperatura de 100 °C e aumentando a temperatura em 50 °C a cada quatro horas até atingir 450 °C onde são mantidas por período não inferior a 24 h e até cinzas ficarem com coloração clara.

Após calcinação uma alíquota foi retirada e usando-se uma mistura de HNO<sub>3</sub> (conc.) + H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> proporção de 30:1 com aquecimento em placa aquecedora a temperatura inferior a 80 °C até solubilização total do material.

Após solubilização do material uma alíquota deste solubilizado foi enviada para análise do urânio natural. As CA do  $U_{nat}$  são reportadas em termos de peso úmido.

## 2.4. Análise de Radionuclídeos

O  $^{238}U$  foi analisado segundo [16], usando o método do arsenazo e espectrofotometria.

## 2.5. Desenho Amostral e Preparação dos Dados

Os dados foram organizados de modo a formar uma matriz onde as colunas representam as CA dos distintos materiais biológicos e as linhas representam as repetições de amostragem. Os dados foram analisados pelos programas Excel<sup>®</sup> para Windows<sup>®</sup> e Minitab<sup>®</sup>.

## 2.6. Análise Estatística

### 2.6.1. Estatística Descritiva

Foi realizada uma estatística descritiva dos dados do material biológico estudado contendo dados de média, variância e número de amostras [17 e18].

### 2.6.2. Comparação das Médias

Após as estatísticas descritivas foi realizada uma análise de variância monofatorial (ANOVA) com os dados do material biológico, com as seguintes hipóteses:

$H_0$  = todas as médias de CA do material biológico são idênticas

$H_1$  = existe pelo menos um material biológico com CA diferente

Havendo diferenças entre os pontos os mesmos foram agrupados pelo método de “Tukey” [17-21].

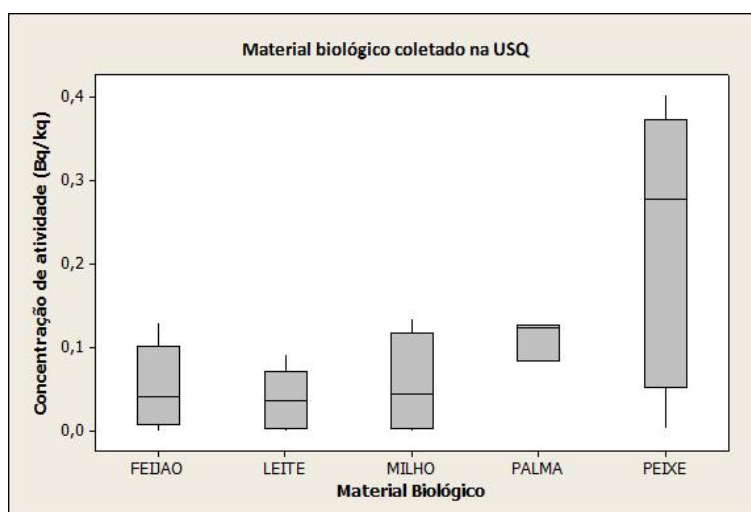
## 3. RESULTADO

### 3.1. Estatística Descritiva

As estatísticas descritivas podem ser vistas na Tabela 02, abaixo. A visualização gráfica das médias pode ser vista na Figura 02, abaixo. Visualmente as médias apresentam diferenças, que serão testadas estatisticamente segundo a metodologia.

**Tabela 02 – Estatísticas descritivas do  $U_{nat}$  analisados na região da jazida de fosfato de Santa Quitéria, Ceará.**

Material biológico	Média (Bq·kg <sup>-1</sup> )	Desvio padrão	Número de amostras
Feijão	0,0545	0,0505	8
Leite	0,0355	0,0335	11
Milho	0,0570	0,0604	8
Palma	0,1113	0,0234	3
Peixe	0,2247	0,1676	5



**Figura 02 – Representação gráfica das médias de CA dos materiais biológicos amostrados na região da jazida de fosfato de Santa Quitéria.**

### 3.2.ANOVA

A ANOVA resultou em um teste “F” de 6,19 associado a um valor de “P” associado menor que 0,01. Logo  $H_0$  foi rejeitada, aceitando-se  $H_1$ . Neste caso, as médias são consideradas diferentes, existindo pelo menos uma média com CA diferente dos demais.

### 3.3.Comparação das Médias

As médias foram comparadas utilizando-se o teste de “Tukey” conforme descrito na metodologia. O teste de “Tukey” demonstrou existir três grupos de médias diferentes. O primeiro com maiores CA onde se encontram o peixe e a palma. Com as médias de CA consideradas menores tem a palma, milho, feijão e leite. Por fim a palma forma um grupo intermediário, que pertence ao mesmo tempo aos grupos de maior e menor CA, como pode ser visto na Tabela 03, abaixo.

**Tabela 03 – Teste de “Tukey” para comparação das médias do material biológico estudado no entorno da Jazida de Santa Quitéria.**

Material biológico	N	Média (Bq·kg <sup>-1</sup> )	Agrupamento*	
Peixe	5	0,22467	A	
Palma	3	0,11126	A	B
Milho	8	0,05696		B
Feijão	8	0,05449		B
Leite	11	0,03555		B

\* Os materiais biológicos sobre a mesma letra possuem médias consideradas estatisticamente idênticas

Podemos resumir essa conclusão como um grupo de maior CA composto pelo peixe, um de CA intermediária, composta pela palma e, por fim, um grupo de menor CA composto pelo milho, feijão e leite.

#### 4. CONCLUSÕES

Com base na análise dos dados é possível concluir que, para o  $U_{nat}$ , na região de NORM da jazida de Santa Quitéria, existem três grupos de CA distintas. Um grupo de maior CA composto pelo peixe, outro de CA intermediária, composta pela palma e, por fim, um grupo de menor CA composto pelo milho, feijão e leite.

Com esses dados, podemos estabelecer uma linha de base (background - BG) das CA, para o  $U_{nat}$ , dos MB considerados relevantes para o IRA da população do entorno (indivíduos do público – IP) da jazida de fosfato de Santa Quitéria.

A existência de diferentes CA aponta para, possíveis, diferenças na importância de cada compartimento biológico analisado, no impacto da instalação no IP.

Novas avaliações dos CA depois da entrada em operação da instalação se fazem necessárias, com base em um programa de monitoramento ambiental radiológico. Também se faz necessário a avaliação de outros radionuclídeos que sejam considerados importantes para o estabelecimento da dose efetiva comprometida (dose).

A utilização do compartimento ambiental pelo indivíduo do público (IP), p. ex.: ingestão de material biológico pelo IP, em conjunto com as CA avaliadas nesse trabalho podem, associados a modelos dosimétricos conservativos estimar a exposição natural do IP, através da avaliação da dose. O mesmo procedimento deve ocorrer após a entrada em operação da instalação. A diferença entre as avaliações de doses antes e depois da entrada em operação permitirá estimar o IRA da instalação.

#### 5. REFERÊNCIAS

- 1) International Atomic Energy Agency, *Management of Radioactive Waste from the Mining and Milling of Ores, Safety Standards Series* No. WS-G-1.2, Ed. IAEA Vienna, 48 pp, (2002).
- 2) International Atomic Energy Agency and International Labour Office, *Occupational Radiation Protection in the Mining and Processing Of Raw Materials, Safety Standards Series* No. RS-G-1.6, Vienna, 104 pp, (2004).
- 3) Pereira, W. S. Kelecom, A and Pereira, J. R. S. "Analysis of Radium Isotopes in Surface Waters nearby a Phosphate Mining with NORM at Santa Quitéria, Brazil," *Journal of Environmental Protection*, **Vol. 5**, No. 3, pp. 193-199, (2014). doi: [10.4236/jep.2014.53023](https://doi.org/10.4236/jep.2014.53023).
- 4) Ashraf, E. M., Khater, H. A. and Sewaidan, A. L. "Radiation Exposure Due to Agricultural Uses of Phosphate Fertilizers," *Radiation Measurements*, **Vol. 43**, No. 8, pp. 1402-1407, (2008). DOI <http://dx.doi.org/10.1016/j.radmeas.2008.04.084>.
- 5) Rutherford, P. M., Dudas, M. J., and Arocena, J. M. "Radio-Activity and Elemental Composition of Phosphogypsum Produced from Three Phosphate Rock Sources," *Waste Management & Research*, **Vol. 13**, No. 5, pp. 407-423, (1995).
- 6) Beddow, H., Black, S. and Read, D. "Naturally Occurring Radioactive Material (NORM) from a Former Phosphoric Acid Processing Plant," *Journal of Environmental Radioactivity*, **Vol. 86**, No. 3, pp. 289-312. (2006.) DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2005.09.006>

- 7) Othman, I. & Al-Masri, M. S., “Impact of Phosphate Industry on the Environment: A Case Study,” *Applied Radiation and Isotopes*, **Vol. 65**, No. 1, pp. 131-141, (2007). DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2006.06.014>
- 8) Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN, Norma CNEN-NN-3.01: “Diretrizes Básicas de Proteção Radiológica,” Ed. CNEN, RJ, p. 34, (2005a)
- 9) Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN, “Posição Regulatória 3.01/008: 2011: Programa de Monitoração Radiológica Ambiental,” Ed. CNEN, RJ, p. 5, (2011a).
- 10) Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN, “Posição Regulatória 3.01/009 :2011: Modelo para Elaboração de Relatórios de Programa de Monitoração Radiológica Ambiental,” Ed. CNEN, RJ, p. 5, (2011b).
- 11) Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN, Norma CNEN-NN-4.01: Requisitos De Segurança E Proteção Radiológica Para Instalações Mínero-Industriais. Ed. CNEN, RJ, 19 pp, (2005b).
- 12) Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN, Norma CNEN-NE-3.02: Serviços de Radioproteção, Ed. CNEN, RJ, 17 pp, (1988)
- 13) Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN, Norma CNEN-NN-8.01: Gerência De Rejeitos Radioativos De Baixo E Médio Níveis De Radiação, Ed. CNEN, RJ, 45 pp, (2014).
- 14) Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN, Norma CNEN-NE-8.02: Licenciamento De Depósitos De Rejeitos Radioativos De Baixo E Médio Níveis De Radiação, Ed. CNEN, RJ, 32 pp, 2014
- 15) Silva, J. R., “Caracterização Hidrogeológica da Jazida de Itataia,” Dissertação de mestrado, Universidade Federal do Ceará, Ceará, pp. 126, (2003).
- 16) Savvin, S. B., “Analytical Applications of Arsenazo III—II: Determination of Thorium, Uranium, Protactinium, Neptunium, Hafnium and Scandium,” *Talanta*, **Vol. 11**, No. 1, pp. 1-6. (1964) DOI: [http://dx.doi.org/10.1016/0039-9140\(64\)80003-5](http://dx.doi.org/10.1016/0039-9140(64)80003-5).
- 17) Ceteno, A. J., “Curso de Estatística Aplicada a Biologia,” Universidade Federal de Goiás, Goiânia, p. 188, (1999).
- 18) Arango, H. G., “Bioestatística: Teórica e Computacional Com Bancos de Dados Reais em Disco,” 3rd Edition, Ed. Guanabara & Koogan, pp. 438, (2009).
- 19) Ferreira, D. F., “Estatística Multivariada,” Editora da UFLA, Lavras, pp 650 (2008).
- 20) Valentin, J. L. “Ecologia Numérica. Uma Introdução a Análise Multivariada de Dados Ecológicos,” Ed. Interciência, Rio de Janeiro, pp. 117, (2000).
- 21) Gotelli, N. J. & Ellison, A. M. “A Primer of Ecological Statistic,” Sinauer Associates, Sunderland, Pp. 510, (2004).