

Monitoramento ambiental da radioatividade do U, Th e K oriunda de fertilizantes fosfatados em área agrícola no sul do Brasil

VALTER ANTONIO BECEGATO, Doutor Professor Adjunto do Departamento de Engenharia Rural do Centro de Ciências Agroveterinárias da Universidade do Estado de Santa Catarina – UDESC.

FRANCISCO JOSÉ FONSECA FERREIRA, Doutor Professor Adjunto do Departamento de Geologia da Universidade Federal do Paraná - Laboratório de Pesquisas em Geofísica Aplicada - LPGA, Centro Politécnico.

WILLIAM CEZAR POLLONIO MACHADO, Doutor Professor Adjunto da Universidade Federal Tecnológica do Paraná, Pato Branco-PR.

PAULO CÉSAR CASSOL, Doutor Professor Adjunto do Departamento de Solos da Universidade do Estado de Santa Catarina, Lages-SC.

Resumo: *Medições gamaespectrométricas foram tomadas em solos agrícolas objetivando caracterizar a distribuição espacial das concentrações de radionuclídeos (K, eU e eTh). Na área ocorrem três tipos de Solos: Nitossolo Vermelho Eutrófico, Latossolo Vermelho Eutrófico de textura argilosa e Latossolo Vermelho Distrófico de textura média. Constatou-se que as concentrações de radionuclídeos nos solos mais argilosos foram maiores do que nos solos mais arenosos, em função, principalmente, da maior adsorção dos primeiros. Os teores médios em Bq Kg⁻¹ de K, eU e eTh na área com atividade antrópica foram, respectivamente, de 54,75; 10,22 e 7,27, significativamente maiores do que em áreas virgens sem aplicação de fertilizantes (34,15 de K; 1,69 de eU e 5,36 de eTh). Houve correlações entre os teores de urânio e argila. Foram também observadas variações nas concentrações de radionuclídeos em diferentes formulações de adubos utilizados nas culturas de soja e trigo.*

Palavras-chave: Espectrometria de raios gama. Solos. Fertilizantes.

1 Introdução

A agricultura moderna usa de alta tecnologia, objetivando aumentar a produtividade. Culturas como a soja e o trigo empregam cultivares com grande potencial genético, que, aliados a insumos como os adubos, se exteriorizam na forma de altas produtividades. Não se pode imaginar a agricultura brasileira dos

últimos 20 anos, sem aplicações de grandes volumes de fertilizantes. A presença de radionuclídeos em fertilizantes fosfatados (GUIMOND & HARDIN, 1989; KHAN et al., 1998; ZIELINSKI, et al. 2000; SAN MIGUEL et al., 2003) traz interferências no meio ambiente, cujas consequências ainda são pouco conhecidas.

Pesquisas recentes no Brasil, com elementos radioativos derivados de diferentes for-

mulações de adubos, começam a despertar o interesse da comunidade científica nacional no que concerne às suas implicações ambientais.

Recentemente tem-se utilizado o gesso, que é um subproduto da fabricação dos adubos acidulados. O gesso agrícola, derivado do ácido fosfórico, contém em sua composição cálcio, enxofre e água em diferentes concentrações. O uso deste produto tem por objetivo suprir os solos com cálcio e enxofre nos horizontes mais profundos, propiciando às plantas o desenvolvimento do sistema radicular, explorando maior volume de solos na busca por nutrientes e água (NUERNBERG et al., 2002).

Os adubos e o gesso comercializados no Brasil encerram também elementos radioativos (e.g. MAZZILLI et al., 2000; YAMAZAKI & GERALDO, 2003; SAUEIA et al., 2004), cujos teores dependem da rocha utilizada para o seu fabrico. Especificamente quanto aos adubos fosfatados, diversas são as marcas e formulações comerciais que envolvem teores variados de nitrogênio, fósforo e potássio. Pfister et al. (1976) observaram que a elevada concentração de urânio em superfosfato triplo, em relação ao super simples, depende do modo de fabricação. No primeiro caso, a rocha sofre um ataque com ácido fosfórico, retendo o urânio na forma de um complexo uranil dissolvido. Com relação aos monoamônio-fosfatos e diamônio fosfatos, estes são obtidos pela composição de ácido fosfórico e amônio.

Os solos brasileiros, em sua grande maioria inseridos em regiões tropicais, são em geral pobres, em decorrência de perdas constantes por lixiviação de elementos químicos como nitrogênio, fósforo e potássio, essenciais para grandes culturas como soja, trigo e milho. A forma conhecida até o momento, de repor nutrientes aos solos e, conseqüentemente, fornecer às plantas insumos visando à obtenção de altas produtividades, é por adubação química, através de compostos denominados comercialmente de formulações NPK. Tais formulações são muito variadas nos conteúdos dos elementos retromencionados, cujas concentrações variam de acordo com a necessidade de cada solo e cultura.

Os solos diferem na sua capacidade de retenção de cátions. A capacidade de troca de cátions (CTC) depende da textura, das propriedades físicas, dos teores de argila e do conteúdo de matéria orgânica. Solos mais argilosos retêm mais cátions, ao contrário dos arenosos, nos quais a percolação de água é mais rápida em função da maior macroporosidade, promovendo a lixiviação de elementos químicos que se encontram na solução do solo.

Neste sentido, as pesquisas de radionuclídeos em solos agrícolas ainda são muito incipientes no Brasil. O presente trabalho pretende mostrar uma aplicação da gamaespectrometria em área cultivada com soja no verão e trigo no inverno, onde se usa de alta tecnologia, buscando-se a máxima produtividade de grãos.

2 Materiais e métodos

A área de estudo localiza-se próximo à cidade de Maringá-PR, pólo regional agrícola, e vem sendo utilizada com o cultivo de soja no verão e trigo no inverno. O clima, de acordo com a carta climática do Paraná (IAPAR, 1978), tendo por base a classificação de Köppen, é Cfa, ou seja, subtropical úmido mesotérmico, verões quentes, com tendência de concentração de chuvas nos meses de verão, cuja precipitação média anual é de 1200 mm (RUFINO et al., 1993). Situada no Terceiro Planalto Paranaense, a área envolve o Grupo Caiuá em domínios da Formação Goio-Erê (FERNANDES & COIMBRA, 2000) e apresenta contato transicional com a Formação Serra Geral (basaltos). Ainda segundo os autores, a Formação Goio-Erê é constituída por arenitos quartzosos, marrom-avermelhados e cinza arroxeados, finos a muito finos, mineralogicamente maduros e texturalmente submaduros. Nas partes mais planas predominam materiais retrabalhados das formações Goio-Erê e Serra Geral, originando solos de textura mista entre arenosos e argilosos. À medida que o relevo fica mais acidentado, predominam solos de textura argilosa, oriundos da Formação Serra Geral, cujas rochas afloram em algumas

drenagens. Gimenez et al. (1983) descrevem que na região a paisagem é representada pela ocorrência de relevo de colinas amplas de pequena amplitude, com perfil retilíneo e convexo contínuo e topos extensos planos. As rampas são longas e pouco declivosas enquanto os gradientes mais acentuados ocorrem apenas próximos aos canais de drenagem.

Utilizou-se o gamaespectrômetro portátil GS-512 fabricado pela Geofyzika (República Tcheca) e comercializado pela Scintrex (Canadá), projetado para operar com 512 canais num intervalo de 0,1 a 3 Mev, pertencente ao Laboratório de Pesquisas em Geofísica Aplicada – LPGA/UFPR, para a coleta dos dados. O GS-512 consiste de uma sonda (45 cm de comprimento; 12,5 cm de diâmetro e pesa 4,6 kg), a qual encerra um cristal de 76 x 76 mm de NaI(Tl), além de um circuito de detecção e uma fonte radioativa (^{137}Cs) de referência. Um outro módulo (23,5 x 23,0 x 9,0 cm) armazena e processa os dados medidos.

Os elementos de ocorrência natural que produzem raios gama de suficiente intensidade e energia para serem medidos por gamaespectrômetros são o potássio, o urânio e o tório. O potássio é identificado e quantificado

pelo instrumento através da absorção de uma energia de 1,46 Mev, correspondente ao único isótopo natural (^{40}K), o qual representa 0,012 % do K total (os outros isótopos, ^{39}K e ^{41}K , não são radioativos e representam, respectivamente, 93,26 % e 6,73 % do K total). Os isótopos naturais da série do urânio constituem uma mistura, principalmente de ^{238}U (99,3 %) e ^{235}U (0,7 %), representativa de complexas cadeias de decaimento, as quais terminam em isótopos estáveis de ^{206}Pb e ^{207}Pb , respectivamente. O urânio é detectado pela energia de 1,76 Mev, correspondente à absorção do ^{214}Bi da série do ^{238}U , utilizada para identificar e quantificar o urânio natural. O tório natural é essencialmente composto pelo isótopo ^{232}Th e seus produtos de decaimento, representando 100 % do Th total. É identificado pelo pico do ^{208}Tl , correspondente a uma energia de absorção de 2,62 Mev. Portanto as concentrações de urânio e tório são determinadas indiretamente pelo gamaespectrômetro, razão pela qual são denominadas equivalente de urânio (eU) e equivalente de tório (eTh), respectivamente.

Os dados gamaespectrométricos foram obtidos em solos, de acordo com os pontos indicados na Figura 1, bem como em solos sob floresta nativa (sem contaminação por atividade

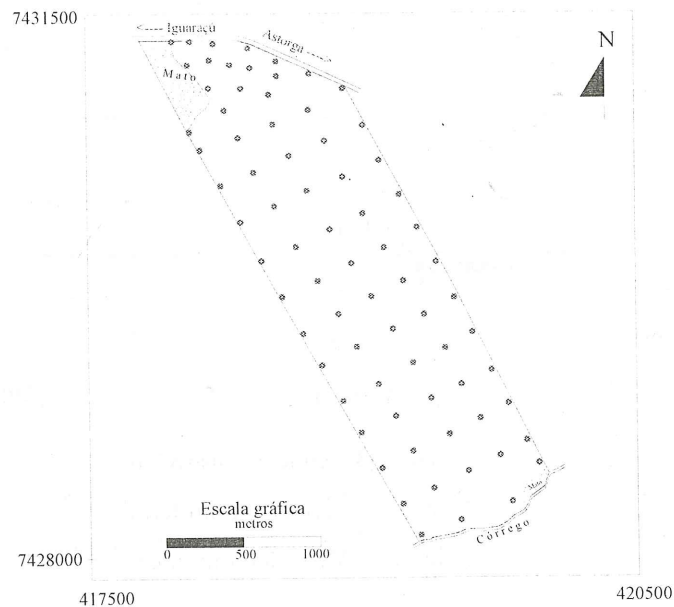


Figura 1 - Malha de pontos para aquisição dos dados

antrópica) e em amostras de adubos e gesso. Nos solos, noventa por cento dos raios gama são emanados pela camada sub-superficial cuja profundidade máxima é de 45 cm (WILFORD et al., 1997).

3 Resultados e discussão

Na área investigada foram identificados 3 tipos de solos (Figura 2): Nitossolo Vermelho Eutrófico de textura argilosa, derivado de rochas basálticas, cuja inserção espacial se dá mais próxima aos canais de drenagens, com relevo mais acidentado; Latossolo Vermelho

Eutrófico, que é um solo mais velho (PRA-DO, 2001), comparativamente ao anterior, de textura argilosa, mais profundo, também originado de rochas basálticas e situado em relevo suave ondulado a praticamente plano e Latossolo Vermelho Distrófico, oriundo do retrabalhamento das Formações Serra Geral e Goio-Erê, cujo teor de argila está entre 16 e 35%, considerado pedologicamente de textura média e espacialmente distribuído em relevo praticamente plano.

Os valores médios dos radionuclídeos para os 77 pontos foram de $54,75 \text{ Bq Kg}^{-1}$ de K, $10,22 \text{ Bq Kg}^{-1}$ de eU e $7,25 \text{ Bq Kg}^{-1}$ de eTh (Tabela 1). Souza (1998) encontrou valores de $86,1 \text{ Bq Kg}^{-1}$ de U em solos argilosos no município de

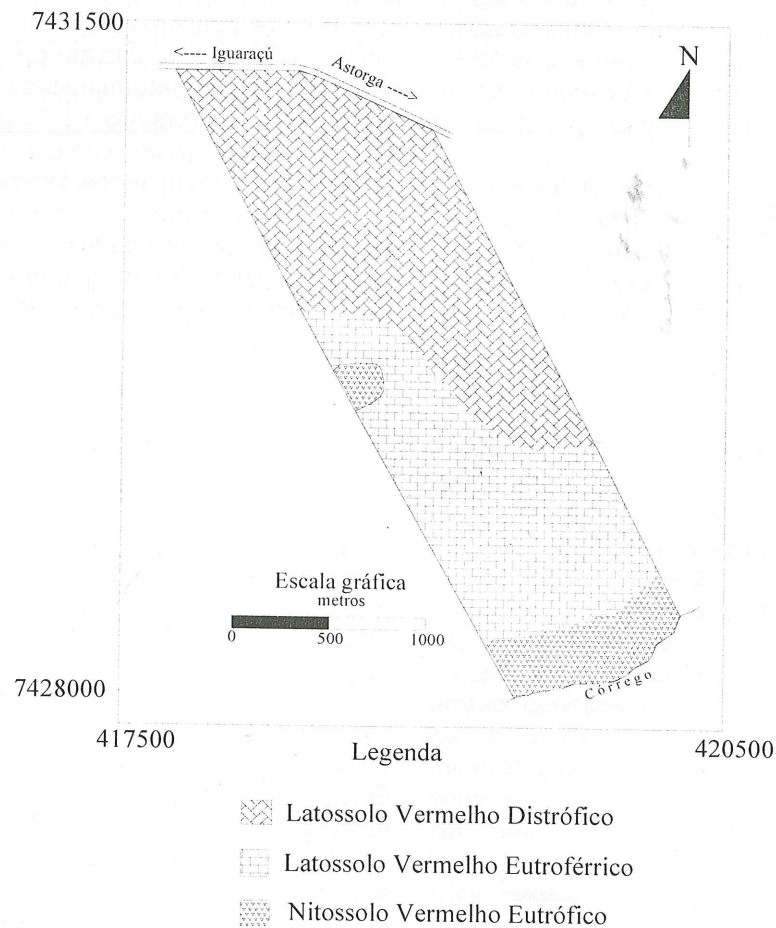


Figura 2 - Mapa de solos

Araras-SP, enquanto Kumru & Bakaç (2003) obtiveram índices médios de 135 Bq Kg^{-1} de U e $17,05 \text{ Bq Kg}^{-1}$ de Th. Kannan et al. (2002), pesquisando radionuclídeos em solos da Índia, encontraram valores de U que vão desde 16 até $359,65 \text{ Bq Kg}^{-1}$.

Levando-se em consideração os solos analisados e suas respectivas texturas, os argilosos (Latosolo Vermelho Eutroférico e o Nitossolo Vermelho Eutrófico) apresentaram valor médio de urânio de $14,9 \text{ Bq Kg}^{-1}$, enquanto o

areno-argiloso (Latosolo Vermelho Distrófico) revelou concentração média de $7,03 \text{ Bq Kg}^{-1}$, de acordo com as tabelas 2 e 3. O teor de urânio é duas vezes maior nos solos argilosos, cujo coeficiente de variação foi de 19,92%, representando menor dispersão dos dados, quando comparado com os 48,4% de toda a área (Tabela 1). O teor médio de potássio no solo areno/argiloso foi de $57,28 \text{ Bq Kg}^{-1}$, ligeiramente maior do que nos solos argilosos, cuja média foi de 51 Bq Kg^{-1} . Já o tório indicou concentração média de $9,03 \text{ Bq Kg}^{-1}$.

Tabela 1 - Estatísticas dos dados gamaespectrométricos e dos teores de argila da área total sem considerar os tipos de solos.

	K	eU	eTh	Argila (%)	
				Profundidades (cm)	
				0 - 20	20 - 40
	-----Bq Kg ⁻¹ -----				
Mínimo	0	2,46	0,41	14	14
Máximo	124	20,91	17,1	88	92
Média	54,75	10,22	7,25	39,3	44,7
Mediana	62	8,4	7,73	26	31
Desvio Padrão	23	4,94	4,35	23,38	25,7
Coeficiente de variação (%)	42	48,4	60	60	57,4
Assimetria	0,4	0,26	0,15	0,60	0,53
Curtose	1,18	-1,20	-0,87	-1,26	-1,36

Tabela 2- Estatística descritiva dos dados geofísicos e dos teores de argila para o solo areno/argiloso.

	Potássio	Urânio	Tório	Argila (%)
	-----Bq Kg ⁻¹ -----			
Mínimo	31	2,46	0,81	14
Máximo	124	14,76	17,09	47
Média	57,28	7,03	9,03	25,20
Desvio padrão	22,61	3,10	3,83	7,40
Coeficiente de variação (%)	39,47	44,10	42,41	29,36
Curtose	1,77	0,29	-0,39	2,14
Assimetria	0,96	0,91	-0,05	1,43

Tabela 3 - Estatística descritiva dos dados geofísicos e dos teores de argila para os solos argilosos.

	Potássio	Urânio	Tório	Argila (%)
	-----	Bq Kg ⁻¹	-----	
Mínimo	0,00	8,61	0,41	46,00
Máximo	93,00	20,91	13,43	92,00
Média	51,00	14,96	4,61	73,58
Desvio padrão	23,40	2,98	3,74	12,40
Coeficiente de variação (%)	45,88	19,92	81,13	16,85
Curtose	0,03	-0,43	-0,37	-0,66
Assimetria	-0,28	-0,35	0,80	-0,42

Kg no solo areno/argiloso, portanto maior do que os 4,61 Bq Kg⁻¹ dos solos argilosos.

Para as áreas sem atividade agrícola, cujos solos se encontram sob vegetação nativa, fragmentos de florestas consideradas reservas, foram tomadas 20 medidas gamaespectrométricas com 3 repetições para cada ponto, sendo considerada a média das 3 medidas, cujo resumo estatístico é indicado na Tabela 4, do mesmo modo discriminando os so-

los argilosos do areno/argiloso, para efeito de comparação com a área cultivada. Assim, pode-se notar que as médias de K, eU e eTh dos solos argilosos da área agricultável (Tabela 4), cujos teores, são, respectivamente de 51,0, 14,9 e 4,61 Bq Kg⁻¹, são maiores do que as respectivas concentrações médias nos solos das áreas virgens, ou seja, 26,4, 1,41 e 1,81 Bq Kg⁻¹. Diferenças tão acentuadas podem ser explicadas pelo aporte de fertilizantes agrícolas. Tais diferenças são

Tabela 4 - Estatísticas dos radionuclídeos medidos nos solos sob floresta nativa (n = 20).

	Textura					
	Areno/argiloso			Argiloso		
	K	eU	eTh	K	eU	eTh
	----- Bq Kg ⁻¹ -----					
Mínimo	0	0	7,32	0	0	0,4
Máximo	93	6,15	11,8	62	2,46	3,66
Média(*)	41,9a	1,97c	8,91e	26,4f	1,41h	1,81j
Média(**)	57,28b	7,03d	9,03e	51,0g	14,9i	4,61k
Mediana	31	1,85	8,5	31	1,23	1,63
Desvio padrão	23,1	1,71	1,19	23,1	0,92	0,9
Coeficiente de variação (%)	55,2	86,9	13,4	87,7	64,8	49,8
Assimetria	0,15	0,81	0,87	0,25	-0,25	0,39
Curtose	0,08	0,47	0,47	-1,04	-1,04	-0,59

comprovadas estatisticamente pelo teste *t* (Student). Comportamento semelhante ocorre também com o solo areno/argiloso, quando se confrontam os resultados obtidos na área agrícola com os correspondentes do trato sem contaminação, exceto pelo fato de que não existe diferença significativa entre as médias do eTh para ambas as áreas, conforme indicam letras iguais nas respectivas médias (Tabela 4). Médias seguidas de letras iguais não diferem significativamente a 5% pelo Teste *t*. (*) média das testemunhas, (**) média dos solos areno/argiloso e argiloso respectivamente.

Para a área virgem, onde domina o solo areno/argiloso, a média do eU foi de $1,97 \text{ Bq Kg}^{-1}$, portanto maior do que os $1,41 \text{ Bq Kg}^{-1}$ dos solos

argilosos. Já os teores de K e eTh, no primeiro trato, foram, respectivamente, de 41,9 e $8,91 \text{ Bq/Kg}$, portanto maiores do que as médias nos solos argilosos, ou seja, 26,4 e $1,81 \text{ Bq/Kg}$. Uma possível explicação reside na idade e na mineralogia dos respectivos solos. Os solos argilosos oriundos da Formação Serra Geral são mais velhos, intemperizados, e conseqüentemente, mais lixiviados, propiciando percolações de K e eTh no perfil. Nos solos de textura mista, originados do retrabalhamento das formações Serra Geral e Goio-Erê, sendo este último de textura arenosa, pode ter havido, para a sedimentação, a contribuição de minerais com teores mais elevados de potássio e tório provenientes das áreas-fonte da Formação Goio-Erê.

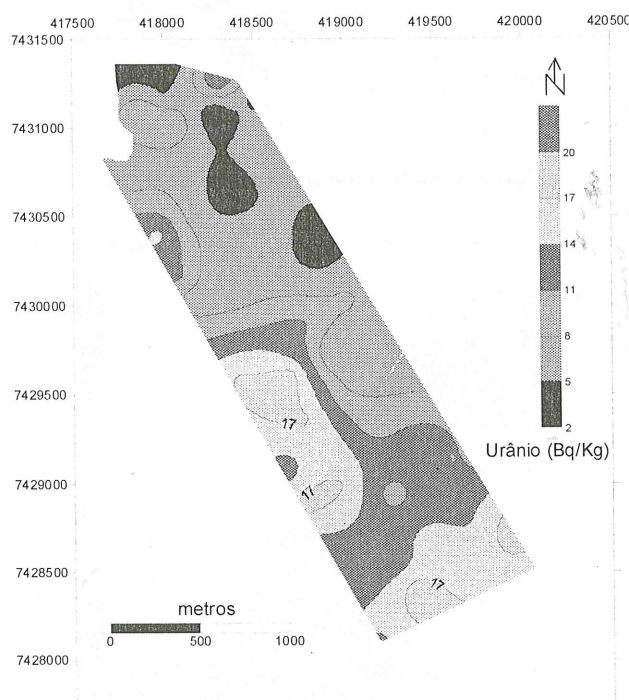


Figura 3 - Distribuição espacial do urânio

A distribuição espacial dos radionuclídeos encontra-se nas figuras 3, 4 e 5. Observa-se, na Figura 3 do urânio, que a maior concentração de radioatividade ocorre nas partes mais argilosas, onde ocorrem os solos Nitossolo Vermelho Eutrófico e o Latossolo Vermelho Eutroférico.

A espacialização do tório (Figura 4), ao contrário, evidencia que a maior parte da radioatividade coincide com exposição do Latossolo Vermelho Distrófico (Figura 2), talvez pela permanência de minerais resistatos. O mapa do potássio (Figura 5) mostra que a parte mais radiativa se concentra na área com solo de textura

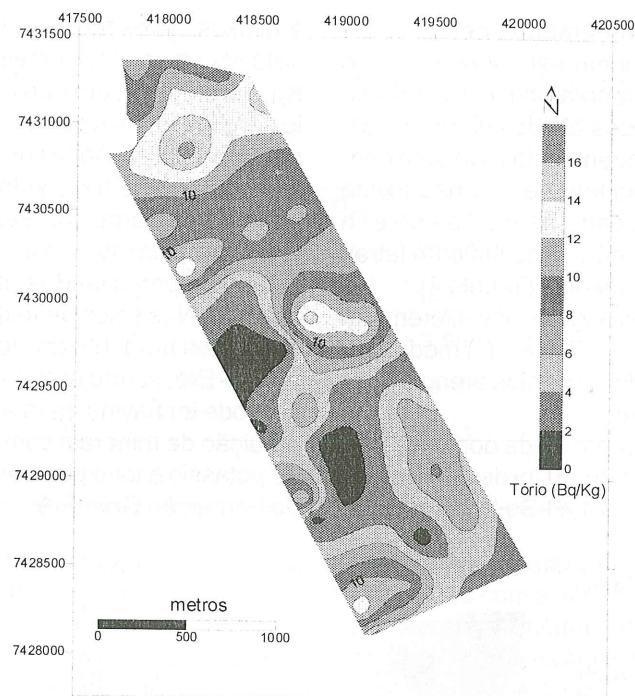


Figura 4 - Distribuição espacial do tório

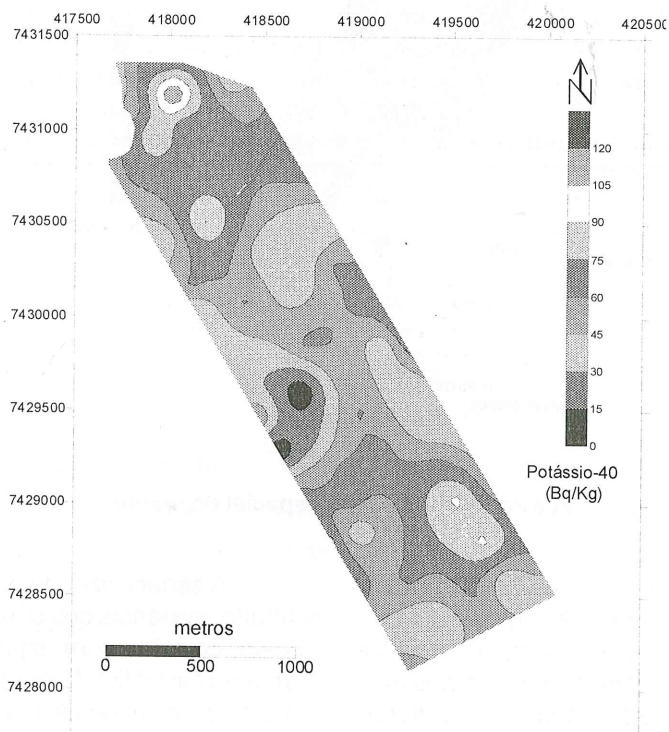


Figura 5 - Distribuição espacial do potássio

mais arenosa, refletindo a possível presença de minerais que contêm potássio, fato corroborado por Nascimento (2003).

As figuras 6, 7 e 8 mostram a distribuição dos radionuclídeos nos perfis verticais dos três tipos de solos, cujas medidas foram feitas diretamente nos perfis dos solos com intervalos de 20 cm. As concentrações dos radionuclídeos no perfil do Latossolo Vermelho Distrófico (Figura 6), de textura areno-argilosa, mostram-se praticamente constantes nos primeiros 20 cm, notando-se, a partir daí, um incremento progressivo do potássio até a profundidade de 60 cm, o mesmo acontecendo, aproximadamente, com o urânio e o tório. Entre 60 e 80 cm, os valores de K decaem, enquanto os de eU e eTh praticamente permanecem constantes. A partir de 80 cm e até o final da amostragem, os índices de K

ra 6), de textura areno-argilosa, mostram-se praticamente constantes nos primeiros 20 cm, notando-se, a partir daí, um incremento progressivo do potássio até a profundidade de 60 cm, o mesmo acontecendo, aproximadamente, com o urânio e o tório. Entre 60 e 80 cm, os valores de K decaem, enquanto os de eU e eTh praticamente permanecem constantes. A partir de 80 cm e até o final da amostragem, os índices de K

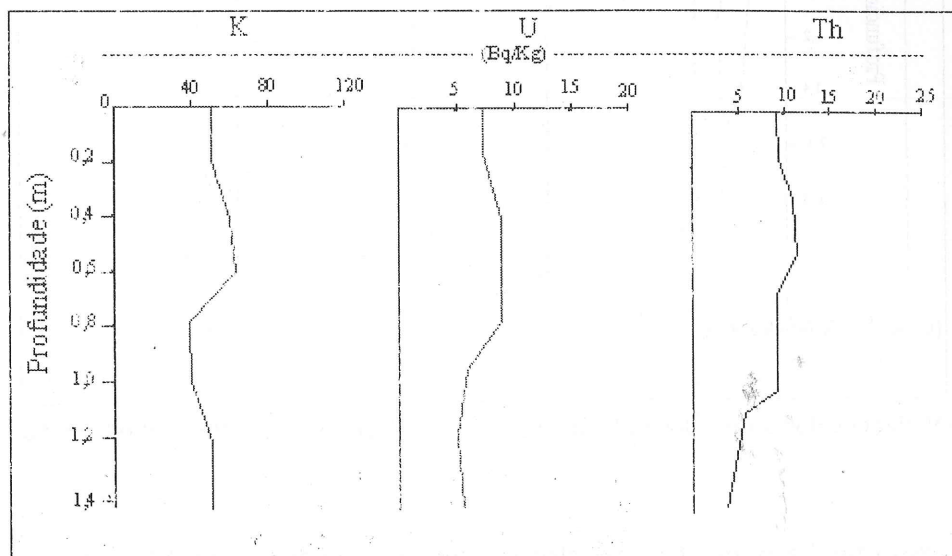


Figura 6 - Variações dos teores dos radionuclídeos no perfil do Latossolo Vermelho Distrófico.

tendem a aumentar levemente para assumir valores semelhantes aos primeiros 20 cm do perfil. Entretanto, os valores de eU e eTh tendem a diminuir com o aumento da profundidade, sobretudo para o último, denotando maiores retenções destes radioelementos em relação à superfície.

Para o perfil do Nitossolo Vermelho Eutrófico (Figura 7), os teores de eU e eTh aumentam até os primeiros 40 cm, permanecem constantes até os 80 cm, e diminuem progressivamente até 160 cm, quando, a partir deste nível, as concentrações crescem no sentido do horizonte C, à medida que se aproximam do material de origem destes solos, denotando depleção de eU e eTh desde a rocha-fonte até a superfície. Comportamento semelhante é obser-

vado no perfil do potássio, onde a partir de 1,6 m, os teores vão aumentando paulatinamente no sentido do horizonte C. Os perfis dos radioelementos no Latossolo Vermelho Eutrófico (Figura 8) exibem desempenho semelhante, observando-se enriquecimento dos teores a partir de 2,2 m de profundidade até o horizonte C.

Dickson e Scott (1997) observaram mudanças significativas dos elementos radiogênicos em solos oriundos de rochas máficas na Austrália. O basalto originou solos com perdas de até 50% de K e aumento do U e do Th, próximos aos teores de rochas félsicas. Ainda segundo os autores, em áreas dominadas por solos mais profundos, fortemente intemperizados, também

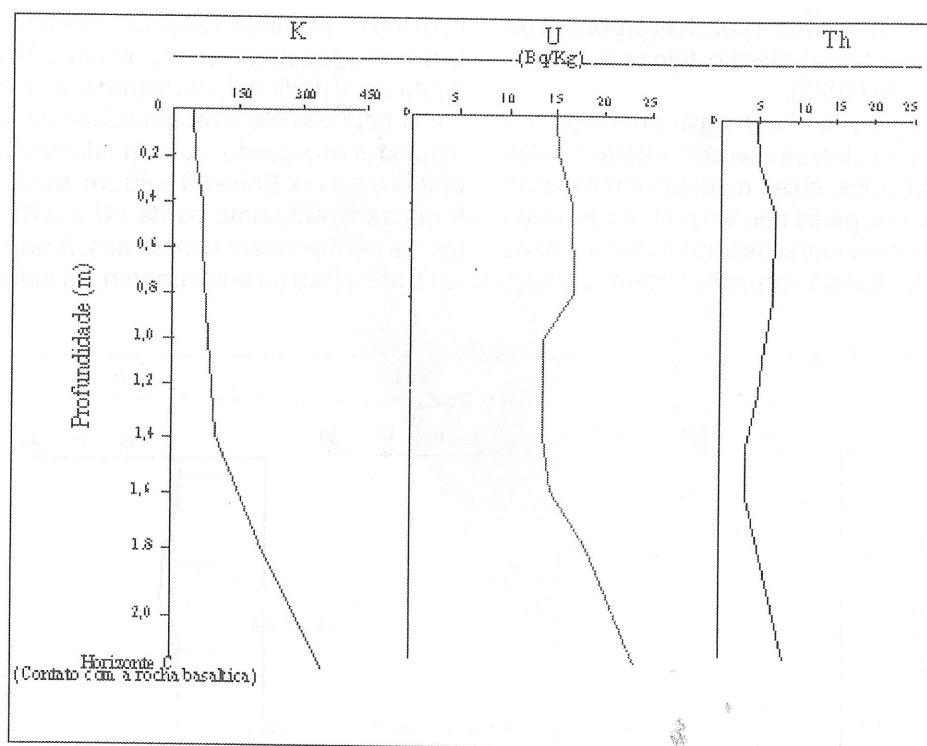


Figura 7 - Variações dos teores dos radionuclídeos no perfil do Nitossolo Vermelho Eutrófico

derivados de rochas basálticas, houve depleção de K e as respostas do U e do Th foram semelhantes às obtidas para solos derivados de rochas félsicas. Tal padrão de distribuição difere, como visto, do comportamento dos radionuclídeos nos perfis dos solos estudados, possivelmente por sua localização em região subtropical úmida, com precipitações médias de 1492 mm/ano (RUFINO et al., 1993), aliado ao intemperismo físico/químico, principalmente do Latossolo Vermelho Eutrófico, mais velho e mais profundo, em contraposição a climas mais secos, como na Austrália, acarretando retenção dos radioelementos nos perfis dos solos mencionados. Condição climática análoga à da Austrália é a que ocorre em algumas partes do nordeste brasileiro, onde determinados solos acumulam teores elevados de sais em sub-superfície oriundos do processo de capilaridade.

Dowdall & O'dea (2002), estudando a radioatividade em perfis de solos orgânicos na

Irlanda, observaram que há um acréscimo de U nos perfis onde a oxidação da matéria orgânica é significativamente reduzida, o que acontece a partir de aproximadamente 15-20 cm de profundidade, onde a ausência de oxigênio origina um ambiente predominantemente redutor, desacelerando a decomposição da matéria orgânica pelos microorganismos do solo e, conseqüentemente, aumentando a capacidade de troca catiônica de tais solos, o que culminaria com o aumento da retenção do U.

Um resumo estatístico dos teores de radionuclídeos tomados por amostragens aleatórias em fertilizantes fosfatados (duas formulações) e pilhas de gesso, num total de 20 determinações, é indicado na Tabela 5, a qual denota grande variabilidade nas concentrações, principalmente dos adubos. Para estes, as variações de K, eU e eTh foram de 603,0 a 522,4; de 647,6 a 58,0 e de 753,9 a 10,82 Bq Kg⁻¹, respectivamente, cujas médias foram de 562,7; 352,8 e

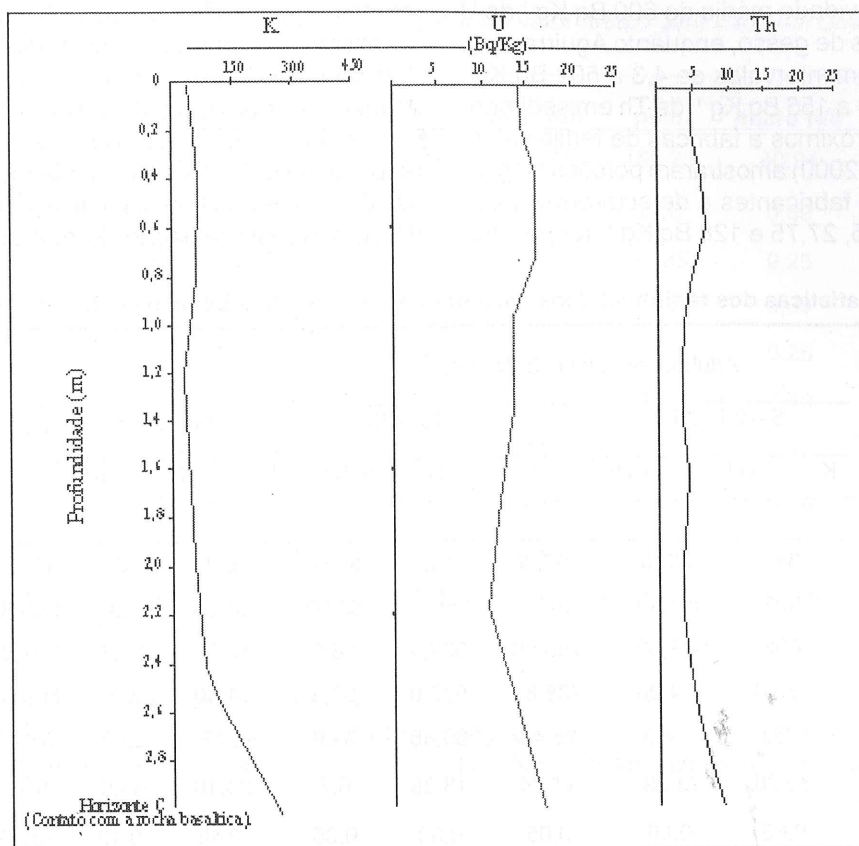


Figura 8 - Variações dos teores dos radionuclídeos no perfil do Latossolo Vermelho Eutroférrico

382,3 Bq Kg⁻¹.

Paschoa et al. (1984) analisaram as concentrações de U em amostras de vários tipos de adubos e obtiveram uma média de 1044,26 Bq Kg⁻¹. Yamazaki & Geraldo (2003), estudando os teores de U em amostras de adubos NPK oriundas de diversos fabricantes brasileiros, determinaram variações entre 63,59 e 667,89 Bq Kg⁻¹, com média de 333,25 Bq Kg⁻¹.

Segundo Pfister et al. (1976), as diferenças nas concentrações da radioatividade de vários produtos são atribuídas principalmente ao modo de fracionamento durante a reação química na fase de acidulação da produção do ácido fosfórico. Produtos como o MAP (mono amônio fosfato) mostraram que as concentrações de rádio são dez vezes maiores do que a de

urânio, face ao processo de fabricação do referido fertilizante, o qual utiliza amônia, que, por sua vez, não reage com a rocha fosfática, ao contrário do ácido fosfórico, que é rico em urânio. As apatitas, nos concentrados fosfáticos, são destruídas pela ação do ácido sulfúrico durante a fabricação dos superfosfatos. Entretanto, o urânio permanece como sulfato de uranila e sulfato uranoso, ambos solúveis em água. Na ausência de matéria orgânica e em solos arenosos, o U geralmente é móvel e transportado como um complexo de carbonato hexavalente ou como íon uranila divalente (ROTHBAUM et al., 1979).

Os teores médios dos radionuclídeos encontrados nas amostras de gesso foram de 51,1. 607,31 e 170,33 Bq Kg⁻¹ de K, eU e eTh, respectivamente (Tabela 5). Bolivar et al. (1995)

indicaram atividade média de 600 Bq Kg^{-1} de U em depósitos de gesso, enquanto Aguirre et al. (1995) citaram intervalos de 4,3 a 502 Bq Kg^{-1} de U e de 2,4 a 156 Bq Kg^{-1} de Th em sedimentos de rios próximos a fábricas de fertilizantes. Mazzili et al. (2000) amostraram porções de gesso de quatro fabricantes e detectaram valores médios 17,75, 27,75 e 128 Bq Kg^{-1} , respectiva-

mente de K, U e Th. Na Tabela 6 encontram-se as estimativas das taxas de radiação (dose), derivadas dos teores de potássio, urânio e tório. As maiores emanações de radioatividade advêm dos adubos e do gesso, 69,45 e $34,07 \text{ mR/h}$, respectivamente. As menores taxas são oriundas das áreas sob floresta nativa. A área cultivada emana mais radiação do que os tratos vir-

Tabela 5 - Estatísticas dos radionuclídeos em amostras (n = 20) de adubos e gesso.

	Adubos/formulações (N-P-K)						Gesso		
	5 - 25 - 25			0 - 16 - 25					
	K	eU	eTh	K	eU	eTh	K	eU	eTh
	Bq Kg^{-1}								
Mínimo	341	385,0	567,36	403	51,66	5,3	0	552,27	155,8
Máximo	992	911,43	985,3	651	63,97	14,65	93	656,82	183,96
Média	603	647,60	753,90	522,4	58,0	10,82	51,1	607,31	170,33
Mediana	573,4	634,06	758,85	527,0	57,8	11,40	62	609,47	170,13
Desvio padrão	185,6	144,3	88,48	69,88	3,89	2,62	32,2	31,47	8,25
Coefficiente de variação (%)	30,78	22,29	11,74	13,38	6,7	24,16	63,0	5,19	4,8
Assimetria	0,65	-0,06	0,05	0,33	0,05	-0,45	-0,13	-0,25	0,20
Curtose	-0,12	-0,27	2,68	-0,44	-1,22	-0,6	-1,07	-0,71	-0,85

gens, evidenciando que o uso e o acúmulo de fertilizantes fosfatados são responsáveis por maiores doses.

As doses foram calculadas pelo somatório das contribuições do potássio, do urânio e do tório, em mR/h , objetivando comparar com a dose máxima permitida, a qual é superior a 300 mR/semana (SHERIFF, 1999) ou 1786 mR/h . Nascimento & Ferreira (2003) tomaram medidas gamaespectrométricas em experimento agrícola conduzido pela Embrapa/Planaltina-DF, e constataram que a adição de fertilizantes, incluindo o carbonatito, elevou os teores de K, eU e eTh e, conseqüentemente, a taxa da radioatividade natural nas parcelas experimentais, cuja maior dose advém do carbonatito, com $34,90 \text{ mR/h}$, semelhante aos valores obtidos nas amos-

tras de gesso, $34,07 \text{ mR/h}$, determinados neste trabalho.

4 Conclusões

Os solos Nitossolo Vermelho Eutrófico e Latossolo Vermelho Eutroférrico de textura argilosa retêm mais radionuclídeos do que o Latossolo Vermelho Distrófico de textura mista.

Os teores de radionuclídeos são mais baixos em área de floresta nativa, quando comparados com os tratos de atividade agrícola, denotando a contribuição dos fertilizantes fosfatados e do gesso no incremento dos teores nos solos cultivados.

Foram constatadas diferenças nos teo-

Tabela 6 -Taxas de radiação (dose) calculadas a partir do valor médio para cada um dos radionuclídeos.

Variáveis	%	K micro R/h	ppm	U micro R/h	ppm	Th micro R/h	Soma micro R/h
Adubo (5-25-25)	1,94	2,29	52,65	26,22	185,23	40,94	69,45
Adubo (0-16-25)	1,68	1,98	4,72	2,35	2,66	0,59	4,92
Gesso	0,2	0,24	49,37	24,58	41,85	9,25	34,07
Solos geral	0,17	0,20	0,83	0,41	1,78	0,39	1,0
Solos argilosos	0,16	0,19	1,22	0,61	1,13	0,25	1,05
Solo areno/argiloso	0,18	0,21	0,57	0,28	2,21	0,49	0,98
Solo areno/argiloso (testemunha)	0,13	0,15	0,16	0,08	2,19	0,48	0,71
Solos argilosos (testemunha)	0,08	0,09	0,12	0,06	0,45	0,10	0,25
Rochas	1,29	1,52	1,92	0,96	2,73	0,60	3,08

Fatores de conversão: 1% de K = 1,18 micro R/h; 1ppm de eU = 0,498 micro R/h; 1 ppm de eTh = 0,221 micro R/h (Fonte: Sherif, 1999).

res de radionuclídeos, em correspondência às formulações dos adubos, as quais se refletiram nas medidas gamaespectrométricas;

Por enquanto, não há motivo de preocupação ambiental no que se refere aos teores U, Th e K nos solos estudados.

5 Environmental monitoring of radioactivity from U, Th and K derived from phosphate fertilizers in agricultural areas in the south of Brazil

Abstract: Gamma-ray spectrometry measurements were taken from agricultural areas near the City of Maringá, in the Northwest region of the Paraná state, south Brazil, in order to determine the spatial distribution of radionuclides (K, eU, and eTh). Three different types of soils are present in this agricultural area: Alfisol, clayey texture Oxisol, and medium texture Oxisol. It could be observed that in more clayey soils both the concentration of radionuclides and susceptibility values are higher than in more sandy soils, especially due to the higher adsorption in the former and to the higher availability of magnetic minerals in the latter. The average ppm and Bq Kg⁻¹ grades for K, eU, and eTh in the areas under anthropic activity are of 54.75, 10.22, and 7.27, respectively. These grades are significantly higher than those of non-occupied or non-fertilized areas (34.15 K, 1.69 eU, and 5.36 eTh). Correlations were observed between uranium and clay. Varied concentrations of radionuclides were also observed in different fertilizer formulations applied to soy and wheat cultures.

Key-words: Gamma-ray spectrometry. Soils. Fertilizers.

6 Referências

- AGUIRRE, A.M., LÉON, M.G. & IVANOVICH, M. U and Th speciation in river sediments. **The Science of the Total Environment**. 173/174: 203-209, 1995.
- BOLIVAR, J.P., TENÓRIO, R.G. & LÉON, G. Fluxes and distribution of natural radionuclides in the production and use of fertilizers. **Appl. Radiat. Isot.** v.46, n.6/7, p.717-718, 1995.
- DICKSON, B.L. & SCOTT, K.M. Interpretation of aerial gamma-ray surveys – adding the geochemical factors. **AGSO Journal of Australian Geology & Geophysics**, Austrália, v.17, n. 2, p.187-200, 1997.
- DOWDALL, M. & O'DEA, J. $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ disequilibrium in an upland organic soil exhibiting elevated natural radioactivity. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 59, p. 91-104. 2002.
- FERNANDES, L.A. & COIMBRA, A.M. Revisão estratigráfica da parte oriental da bacia Bauru (Neocretáceo). **Revista Brasileira de Geociências**. 30(4), p.723-734, 2000.
- GIMENEZ, A.F., PIRES NETO, A.G. & RICOMINI, C. **Mapeamento geológico do bloco SF-22T (ACS-33)**. São Paulo: Instituto de Pesquisas Tecnológicas, 1983, 69p. (relatório 14845). 1983.
- GUIMOND, R.J. & HARDIN, J. M. Radioactivity released from phosphate-containing fertilizers and from gypsum. **Journal Radiat. Appl. Instrum. Radiat. Phys. Chem.** v.34, n.2, p. 369-315, 1989.
- IAPAR. 1978. **Cartas climáticas básicas do Estado do Paraná**. Londrina, 41 p.
- PASCHOA, A.S., MAFRA, O.Y., CARDOSO, D.O. & ROCHA, A.C.S. Application of SSNTD to the Brazilian phosphate fertilizer industry to determine uranium concentrations. **Nuclear Tracks and Radiation Measurements**. v.8, n. 1-4, p.469-472, 1984.
- NASCIMENTO, C.T.C DO. & FERREIRA, F.J.F. 2003. **Relatório das medições gamaespectrométricas e de resistividade elétrica realizadas na área do projeto carbonatito**. Relatório inédito. 28p.
- PFISTER, H., PHILIPP, G. & PAUL, Y.H. Population dose from natural radionuclides in phosphate fertilizers. **Radiation and Environmental Biophysics**. v. 13, p. 247-261, 1976.
- KHAN, K., KHAN, H.M., TUFAIL, M., KHATIBEH, A.J.A.H. & AHMAD, N. **Radiometric Analysis of Hazara Phosphate Rock and Fertilizers in Pakistan**. **Journal of Environ. Radioactivity**. v. 38 N. 1, p. 77-84, 1998.
- KANNAN, V., RAJAN, M.P., IYENGAR, M.A.A.R. & RAMESH, R. Distribution of natural and anthropogenic radionuclides in soil and beach samples of Kalpakkam (India) using hyper pure germanium (HPGe) gamma ray spectrometry. **Appl. Radiat. Isot.** 57:109-119, 2002.
- KUMRU, M.N. & BAKAÇ, M. R-mode factor analysis applied to the distribution of elements in soils from the Aydin basin, Turkey. **Journal of Geoch. Exploration**. 77, 81-91, 2003.
- MAZZILLI, B., PALMIRO, V., SAUEIA, C. & NISTI, M.B. Radiochemical characterization of Brazilian phosphogypsum. **Journal of Environ. Radioactivity**, 49:113-122, 2000.
- ROTHBAUM, H.P., MCGAVESTON, D.A., WALL, T., JOHNSTON, A.E. & MATTINGLY, G.E.G. Uranium accumulation in soils from long-continued applications of superphosphate. **Journal of Soil Science**. v.30, n.1, 147-153, 1979.
- NUERNBERG, N.J., RECH, T.D. & BASSO, C. 2002. **Usos do gesso agrícola**. Florianópolis: Epagri, 31p. Boletim Técnico, 122.
- PRADO, H. 2001. **Solos do Brasil: gênese, morfologia, classificação e levantamento**. 2.ed. Rev. e ampl. 220 p.
- RUFINO, R.L., BISCAIA, R.C.M., & MERTEN, G.H. Determinação do potencial erosivo da chuva do estado do Paraná, através de pluviometria: Terceira aproximação. **Revista Brasileira de Ciência do Solo**, Campinas. v.17, p.439-444. 1993.
- SAN MIGUEL, PÉREZ-MORENO, J.P., BOLÍVAR, J.P. & GARCÍA-TENÓRIO, R. Validation of isotope signatures in sediments affected by anthropogenic inputs from uranium series radionuclides. **Environmental Pollution**. 123:125-130, 2003.
- SAUEIA, C.H., MAZZILLI, B.P. & FÁVARO, D.I.T. Natural radioactivity in phosphate rock, phosphogypsum and phosphate fertilizers in Brazil. **Journal of Radioanalytical and Chemistry**, v. 264, n.2, p. 445-448, 2004.