

ANOMALIAS GEOQUÍMICAS DE U E DE Th, SOLOS RESIDUAIS E GEOFORMAS EM PAISAGENS TROPICAIS ÚMIDAS SOBRE GRANITO

GEOCHEMICAL ANOMALIES OF U AND Th, RESIDUAL SOILS AND GEOFORMS IN HUMID TROPICAL LANDSCAPES OVER GRANITE

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

RESUMO

O comportamento do U e do Th foi analisado durante a evolução pedogeoquímica e morfogenética de paisagens tropicais úmidas, sobre rocha granítica com teores normais desses elementos, visando estabelecer relações entre rocha-mãe e anomalias de U e de Th, tipos de solos residuais e geoformas resultantes dessa evolução. Em uma vertente caracterizada pelo sistema de transformação Latossolo-Solo Podzólico, anomalias de U e de Th de grande expressão geográfica e intensidade ocorrem na paisagem eluvial, parte superior da vertente onde se verificam declividades entre 0 e 8%. Tais radioanomalias são de natureza relativa/residual predominante e com baixa proporção de U adsorvido, e situam-se no topo do horizonte B dos Latossolos. As anomalias radioativas mais intensas, porém de menor expressão geográfica, localizam-se na paisagem transeluvial, parte mediana das vertentes com declividades entre 8 e 45%. São em parte residuais e em parte absolutas, resultantes da podzolização dos Latossolos, e associam-se ao topo do horizonte B textural dos Solos Podzólicos. Radioanomalias de menor intensidade, e essencialmente uraníferas, situam-se na paisagem supraqual, parte inferior e com baixas declividades da vertente. São de caráter absoluto, com o U fixado principalmente por adsorção às fases argilo-orgânica e óxido dos horizontes A0 e A1 dos Solos Hidromórficos. Nessa paisagem, em áreas de influência da atual rede de drenagem, pode existir desequilíbrio radioativo entre os radionuclídeos da série do ²³⁸U, com reflexos negativos nas intensidades das radiações gama emitidas. Isto se deve à pouca idade de deposição do U nesses locais durante a

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

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

podzolização, entre 100.000 e 500.000 anos. Então, no contexto enfocado, a transformação de rochas com teores normais em U e em Th pode resultar em materiais secundários, com concentrações nesses radionuclídeos mais elevadas que as existentes nas rochas inalteradas. A atuação dos processos geoquímicos responsáveis pela redistribuição do U e do Th ocorreu concorrentemente com a dos processos pedogenéticos, morfogenéticos e hidrogeológicos, durante a evolução das paisagens. Os principais tipos de anomalias de U e de Th, paisagens geoquímicas elementares, tipos e horizontes de solos residuais e geofomas estão cronológica e espacialmente relacionados.

Palavras-chave: Anomalias de U e Th, paisagens úmidas tropicais, solos residuais, geofomas, pedogeoquímica.

EXTENDED ABSTRACT

The geochemical behavior of U and Th during the evolution of humid tropical landscapes was analysed, with the objective of establishing relationships between parent rock, and the resulting U and Th anomalies, types of residual soils and geofoms. In one slope over granite with normal contents of U and Th, and characterized by the soil association Latosol-Podzolic, the pedologic horizons providers and receivers of these radionuclides during the processes of latolization and podzolization were evaluated. Studies were carried out on the main characteristics of the radioanomalies that took place in each landscape, mainly the concentration levels and the secondary hosting phases of U and Th, and their impact on the ratio Th/U and Us/Ut (soluble uranium/total uranium), and on their relative gamma radiometric intensities. Multi and interdisciplinary studies were done, making use of the various data and concepts from worldwide scientific literature, specifically in the fields of geochemistry and pedology. In the first case, emphasis was placed on the characteristics of the primary concentrations of U and Th (table 1), and on the geochemical concepts of element abundance, gradients, migration, flows and geochemical barriers, and of elementary landscape geochemistry (figure 1). In the field of pedology, the concept of transformational pedologic system and the cronology of the main pedogenetic phases were addressed. Moreover, concepts and elements of the areas of geomorphology, hydrogeology of the phreatic aquifer system and the nuclear physics of the series of ^{238}U and ^{232}Th were used and approached from a tridimensional and systemic perspective. The analyses were carried out in short space-temporal limits, according to the dimensions of the slopes and, regarding time specifics, the pedologic scale was found to be the most relevant. In the context studied, the Latosols occur in the eluvial landscape, associated to older, more stable and higher surfaces of the slope, where declivities between 0 and 8% can be observed. In this landscape, the geochemical environment is oxidizing and the pH is acid. The main concentrations of U and Th are due to resistant minerals containing U and Th, insoluble compounds of Th, and U and Th fixed to Fe and Al oxyhydroxides and clays by adsorption. These anomalies are characterized by low Us/Ut and high Th/U ratios, and intense gamma countings (table 2 and 3). They are relative and residual in nature, and are located on the top of latosolic B horizon (figure 2). The Podzolic Soils are of lesser geographic occurrence than the Latosols. Found in the transeluvial landscape, they are related to younger surfaces in intermediate altitudes of the slope, where the declivities are between 8 and 45 %. In this landscape, a strong control of the local parameters of the environment over the configuration and spacial distribution of the soil profiles and their physical properties has been observed. The geochemical environment is oxidizing and the pH is acid on the superficial horizons, changing to reducing toward the B textural horizon (Bt), where the pH levels are higher. The main concentrations of U and Th, being the result of the reworking of those associated with the Latosols, by podzolization, and located on the top of horizon Bt (figure 2 and table 4), present higher levels and higher proportions of soluble U in relation to the total contents. These anomalies show higher Us/Ut and lower Th/U ratios compared to the same ratios in the Latosols and more intense gamma manifestations (table 2). They are partially relative and partially absolute, depending on the migration of radionuclides, inclusively in colloidal solution, due to the eluviation-illuviation processes which take place during podzolization. The Hydromorphic Soils predominate in superequal landscape, where the aeration zone of the aquifer is either thinner or inexistent, and the water-table outcrops or is present at a shallow depth. The geochemical environment works as a reducing agent due to the frequent saturation of the soils and the presence of organic matter (OM), and the pH, in general, ranges from neutral to alkaline. Besides OM, clay phases and Fe compounds with a high cationic exchange capacity are frequently encountered, making up favorable factors for the fixation by adsorption of U originated from eluvial and transeluvial landscapes during latolization and podzolization. The main concentrations are uraniferous and absolute, associated to horizons A0 and A1 of the soils (figure 2), resulting in high ratios Us/Ut, and decreases in Th/U. The gamma radiation emissions are moderate in intensity (table 2). In this landscape, radioactive disequilibrium in the decay series of ^{238}U , with a negative impact for the gamma radiation intensity, may occur in places near the drainage system. This happens due to the young age of ^{238}U deposition in these areas, mainly during the podzolization of the Latosols, between 100,000 and 500,000 years, insufficient time for the re-establishment of the secular radioactive equilibrium in the referred series. Hence,

the transformation by the action of supergenic processes, mainly the pedogeochemical ones, of rocks with normal contents of U and Th, may result in materials with different distributions and concentrations of these radionuclides, considerably higher than the ones in unaffected rocks (table 3). Even the intensively leached soils, such as the ones of the association Latosol-Podzolic, present a relative increase in the U and Th values, due to the concentration of resistant minerals and their association with oxide, clay and carbon phases of the soils. U and Th distribution and levels of concentration reveal the nature of fixation of these radionuclides in their original hosting phases and their real mobilities in the different geochemical landscapes along the slope. In conclusion, in the present study, the landscapes which show the highest probability of containing high anomalies of U and Th are the transeluvial landscape, on the top of the textural B horizon of the Podzolic Soils, and the eluvial, on the top of the latosolic B horizon of the Latosols. In the supraequal landscape, the anomalies are uraniferous and associated with horizons A0 and A1 of the Hydromorphic Soils (figure 2 and table 2). Consequently, in the referred climatic environment, the action of the geochemical processes which lead to the re-distribution of U and Th, took place concomitantly with the pedogenetic, morphogenetic and hydrogeological ones, throughout the evolution of the landscapes. The main types of U and Th anomalies, types and horizons of the residual soils, elementary geochemical landscapes and geofoms are cronologically and spatially related.

Key-words: anomalies of U and Th, humid tropical landscapes, residual soils, geofoms, pedogeochemical processes.

INTRODUÇÃO

Com base no comportamento geoquímico do U e do Th, busca-se entender neste trabalho quais os sistemas e horizontes pedogenéticos fornecedores e receptores de U e de Th durante a alteração supergênica nos trópicos úmidos, de maneira a se estabelecer uma regra operacional associando rocha-mãe, anomalias radioativas, paisagens geoquímicas, perfis e tipos de solos residuais e geofomas em uma determinada vertente.

No âmbito mundial, existem inúmeros exemplos relacionando anomalias radioativas e solos residuais. No contexto climático tropical úmido, durante o intemperismo químico e a pedogênese, a lixiviação, o transporte e deposição de elementos solúveis são comandados principalmente pela circulação da fase aquosa do sistema de alteração, enquanto modificações de volume da rocha fazem aparecer níveis de concentrações relativas, neste caso, sem o deslocamento dos elementos. Em tal ambiente, em geral oxidante acima do nível freático, podem ocorrer duas situações limite, que variam em função do pH e das condições de lixiviação; o elemento considerado migra para a parte inferior do perfil ou permanece na parte superficial. Havendo inclinação da superfície topográfica, que é o caso da maioria das vertentes, à lixiviação *per descensum* soma-se o efeito da lixiviação lateral (Granier 1973). Percebe-se, então, que inter-relacionados aos fatores pedogeoquímicos, os fatores hidrogeológicos e geomorfológicos são importantes neste tipo de evolução.

Assim, é lícito afirmar que a atuação dos processos geoquímicos que levaram à redistribuição do U e do Th tenham se processado concorrentemente com os processos pedogenéticos, morfogenéticos e hidrogeológicos, durante a evolução das paisagens (Rebello 2000). É, pois,

de se esperar que as principais anomalias de U e de Th, positivas ou negativas, tipos e horizontes de solos residuais e geofomas das várias paisagens geoquímicas elementares de uma vertente, estejam cronológica e espacialmente relacionadas. Isto analisado neste trabalho, tendo por base a evolução de uma vertente sobre rocha granítica com teores normais em U e Th, durante os tempos geológico e pedológico, sem considerar possíveis aportes externos dos radioelementos em foco. Serão evidenciadas as principais características das anomalias ocorrentes em cada paisagem, notadamente as fases hospedeiras secundárias do U e do Th e seus reflexos nas razões Th/U e Us/Ut, além de suas intensidades gamaradiométricas relativas.

MEIOS E MÉTODOS

Esta pesquisa sobre o comportamento geoquímico do U e do Th durante a evolução de paisagens tropicais úmidas, sob a ação dos processos supergênicos, de caráter multi e interdisciplinar, compreendeu estudos de dados, informações e conceitos a partir da literatura científica mundial, principalmente nas áreas da geoquímica de superfície, pedologia, geomorfologia e hidrogeologia, num enfoque tridimensional e sistêmico. Foi modelada a partir de uma vertente sobre rocha granítica submetida a alteração supergênica, em ambiente tropical úmido, ressaltadas áreas de relevo jovem com declividades acentuadas e pouca cobertura pedogenética. É nas vertentes que as relações entre paisagens geoquímicas, tipos de solos residuais e geofomas podem ser melhor avaliadas. A escala espacial estabelecida é compatível com as dimensões das vertentes de uma pequena bacia de drenagem e, no tempo, a escala pedológica é a de maior

relevância. Nesse particular, Cruz (1985) ressalta que o estudo de vertentes e sua dinâmica atual deve levar em conta limites espaço-temporais curtos.

Tal modelagem se justifica por estarem as rochas graníticas entre as de maior *background* em U e Th e por exibirem ocorrências geográficas superficiais de grande expressão. Ao nominar os solos, seguiram-se as classificações estabelecidas pela Comissão de Solos (1960), utilizadas nos principais levantamentos efetuados no Brasil. A seguir são apresentadas as principais linhas teóricas e conceitos adotados para o desenvolvimento dos trabalhos.

SISTEMA PEDOLÓGICO DE TRANSFORMAÇÃO E CRONOLOGIA DAS PRINCIPAIS FASES PEDOGENÉTICAS

De modo geral, as coberturas pedológicas residuais refletem a contribuição das litologias subjacentes, a forma das vertentes e os elementos climáticos e florísticos de uma área. É durante a fase pedogenética do intemperismo químico que as paisagens de uma vertente atingem sua máxima evolução. Rochas silicatadas em condições favoráveis de alteração em contexto tropical úmido, em geral, desenvolvem coberturas residuais espessas e diferenciadas, representadas pela associação de Latossolo e Solo Podzólico, o que caracteriza uma fase pedogenética mais recente, transformando os Latossolos em Solos Podzólicos. Tal transformação ocorre principalmente na parte intermediária e progride no sentido do topo das vertentes, constituindo um *sistema pedológico de transformação* (Boulet et al. 1993). Com base em dados de Melfi & Pedro (1977) e Carvalho (1995), juntos, Latossolos e Solos Podzólicos constituem mais de 80% da ocorrência de todas as coberturas residuais brasileiras. Ainda, segundo Vidal-Torrado et al. (1999), a transição lateral de Latossolos para Podzólicos, de montante para jusante nas vertentes, é uma das mais freqüentes na paisagem tropical (figura 2). Então, para a compreensão da evolução de uma paisagem no ambiente climático aqui considerado, seguiu-se o que preceitua a *Análise estrutural da cobertura pedológica* (Bocquier 1973, Boulet 1978, apud Salomão 1994). Além da diferenciação vertical dos horizontes de solos (perfil de solos), também é considerada a diferenciação horizontal.

Do ponto de vista cronológico, com base em extrapolações e em evidências indiretas apresentadas por inúmeros autores, considera-se neste trabalho, para todos os efeitos, uma idade mínima de aproximadamente um milhão de anos (1 Ma) para os Latossolos, desde o

momento em que as principais propriedades pedológicas de um perfil bem desenvolvido tenham atingido o equilíbrio dinâmico. Similarmente, entre 100.000 e 500.000 anos para os Solos Podzólicos. Estas referências cronológicas são básicas para se avaliar o grau de desequilíbrio radioativo que pode existir entre os diferentes membros da cadeia de decaimento radioativo do ^{238}U , com importantes reflexos nas intensidades de emissão das radiações gama, em cada uma das paisagens analisadas, considerando-se as fases pedológicas de latolização e podzolização como as principais condicionantes da migração do U e do Th durante a evolução das paisagens (Rebello 2000). O equilíbrio radioativo secular entre os membros da cadeia do ^{238}U somente é atingido em um sistema que permanece fechado por um período de cerca de 10^6 anos (Ivanovich 1982).

AQUÍFERO FREÁTICO POR POROSIDADE SECUNDÁRIA

O aquífero freático por porosidade secundária, ausente no início da alteração supergênica, atinge sua máxima evolução durante a fase pedogenética do intemperismo químico. Sua configuração externa, organização e propriedades físicas internas são as mesmas dos elementos das paisagens onde ocorre. Sua zona de aeração é mais espessa na paisagem eluvial, tornando-se mais delgada, ou mesmo desaparecendo, na paisagem supraqual, onde o nível freático aflora ou está muito próximo da superfície.

A podzolização dos Latossolos, na parte intermediária das vertentes, leva ao desenvolvimento de um subsistema aquífero suspenso, com grande nível de independência do aquífero principal.

NATUREZA DAS CONCENTRAÇÕES DE U E DE Th E AMBIENTE GEOQUÍMICO SUPERFICIAL

A abundância de U e de Th numa rocha ígnea varia de acordo com o seu grau de diferenciação magmática, numa relação direta com os teores em sílica e alcalis, e inversa com os teores de FeO, MgO e CaO. A constituição de radioanomalias nos materiais de alteração depende, inicialmente, do tipo de rocha, teores e características das fases hospedeiras primárias do U e do Th. Em granitos, litologias enfocadas neste trabalho, teores normais são da ordem de 4 ppm de U e 12 a 16 ppm de Th, em geral distribuídos por diferentes fases minerais, sendo a razão Th/U próxima a 4 (tabela 1). A distribuição de U em granitos pode ser classificada (Tieh et al. 1980, Speer et al. 1981 apud Guthrie & Kleeman 1986) como

U *background*, U *resistato*, e U *intersticial*. O U *background* associa-se aos principais minerais formadores de rochas e sua proporção no total da rocha é mínima, ocorrendo o mesmo com o Th. A contribuição mais importante é do U *resistato*, contido em minerais

acessórios, juntamente com o Th. O U *intersticial* associa-se às fases intersticiais nos últimos estágios da alteração deutérica e também no início do intemperismo. Sua participação é variável, porém mais significativa que a do U *background*.

Tabela 1: Teores de U, Th e razões Th/U em minerais de rochas ígneas. *Contents of U and Th and the Th/U ratios in minerals of igneous rocks.*

Mineral	U (ppm)	Th (ppm)	Th/U
<i>Minerais Acessórios</i>			
Allanita	30-700	500-5000	5-10
Apatita	5-150	20-150	1
Epidoto	20-50	50-500	2-6
Ilmenita	1-50		
Magnetita (e outros)	1-30	0,3-20	
Monazita	500-3000	25000-200000	25-50
Esfeno	100-700	100-600	1-2
Xenotima	500-35000	baixo	baixo
Zircão	300-3000	100-2500	0,2-1
<i>Minerais Essenciais</i>			
Biotita	1-40	0,5-50	0,5-3
Hornblenda	1-30	5-50	2-4
Feldsp. Potássico	0,2-3	3-7	2-6
Muscovita	2-8		
Olivina	0,01	baixo	
Plagioclásio	0,2-5	0,5-3	1-5
Piroxênio	0,01-40	2-25	4-5
Quartzo	0,1-5	0,5-6	2-5

FONTE: Harmon & Rosholt, 1982.

Em ambiente superficial oxidante, em geral o Th^{+4} permanece inalterado e imóvel enquanto o U^{+4} oxida-se a U^{+6} , formando o íon uranila (UO_2^{2+}), o que lhe confere uma grande mobilidade geoquímica em tal ambiente. Em águas com pH acima de 8 predomina a formação de uranil-carbonatos, negativamente carregados. A forma (UO_2^{2+}) é uma das mais abundantes em solução de águas ácidas (Langmuir 1978), situação comum nos trópicos úmidos. Assim, muito embora o comportamento geoquímico dos elementos fundamentalmente dependa do seu potencial iônico, na escala das paisagens, além do Eh e pH do meio, depende da presença de elementos tipomórficos, como óxidos de Fe e de Al, o que pode significar mobilidades bastante diferenciadas. Conforme Perel'man (1967), apud Fortescue (1980), elementos tipomórficos são íons, elementos ou compostos, cuja abundância e migração caracterizam um dado processo epigenético.

Na análise do ambiente superficial, a noção de paisagens geoquímicas elementares em uma vertente é de fundamental importância. Com base nos conceitos

de Polynov (1951) e de Glazovskaya (1963), apud Fortescue (1980), desde o divisor de águas de uma unidade hidrográfica até o eixo do seu coletor principal, podem ser caracterizadas as paisagens *eluvial*, *transeluvial*, *supraqual* e *aqual*, esta não considerada no presente trabalho (figura 1). Independentemente dos seus atributos geoquímicos, a cada uma destas paisagens estão associados diferentes tipos de modelado, classes e espessuras de solos e suas permoporosidades, diferentes segmentos do aquífero freático por porosidade secundária, respectivas configurações e níveis de umidade. Assim, em clima tropical úmido, o tipo de rocha e a posição no relevo, quando se trabalha na escala das vertentes, são os principais fatores condicionantes da evolução do ambiente geoquímico superficial. Durante tal processo evolutivo ocorre a redistribuição dos radionuclídeos U e Th, analisada com base na natureza de seus hospedeiros primários e nos conceitos geoquímicos da abundância, migração, fluxos e barreiras, em cada uma das paisagens consideradas.

Mineral	U (ppm)	Th (ppm)	Th/U
<i>Minerais Acessórios</i>			
Allanita	30-700	500-5000	5-10
Apatita	5-150	20-150	1
Epidoto	20-50	50-500	2-6
Ilmenita	1-50		
Magnetita (e outros)	1-30	0,3-20	
Monazita	500-3000	25000-200000	25-50
Esfeno	100-700	100-600	1-2
Xenotima	500-35000	baixo	baixo
Zircão	300-3000	100-2500	0,2-1
<i>Minerais Essenciais</i>			
Biotita	1-40	0,5-50	0,5-3
Hornblenda	1-30	5-50	2-4
Feldsp. Potássico	0,2-3	3-7	2-6
Muscovita	2-8		
Olivina	0,01	baixo	
Plagioclásio	0,2-5	0,5-3	1-5
Piroxênio	0,01-40	2-25	4-5
Quartzo	0,1-5	0,5-6	2-5

Figura 1: Paisagens geoquímicas elementares em uma vertente; (I) paisagem eluvial; (II) paisagem transeluvial; (III) paisagem supraqual, e (IV) paisagem aqual (Fortescue 1980). *Elementary geochemical landscapes in a slope; (I) eluvial landscape; (II) transeluvial landscape; (III) supraqual landscape and (IV) aqual landscape (Fortescue 1980).*

Ainda, segundo Rose et al. (1979), padrões de anomalias podem ser reconhecidos pela presença no perfil de solos de minerais primários diagnósticos e pela relação entre metal solúvel, ou abundância parcial, e metal total contido (Ms/Mt), conceito similar ao de Us e Ut (Us/Ut), aqui utilizado. Sob condições controladas, as razões Th/U e Us/Ut podem servir como indicadores da natureza e intensidade dos processos pedogenéticos condicionadores da intensidade dos processos geoquímicos de intemperismo (Vinogradov 1959).

Com base nos conceitos acima, e em inúmeros outros das áreas de conhecimento envolvidas, a seguir são evidenciadas as principais características das concentrações de U e de Th, e suas relações com os principais elementos das paisagens elementares em uma vertente; tipos de solos residuais e geoformas, numa visão tridimensional e sistêmica. Ressalte-se que tais informações e detalhes apresentados só podem ser obtidos por meio de pesquisa multi e interdisciplinar, em escala espacial compatível com a dimensão das vertentes, e com enfoque na escala pedológica do tempo.

RESULTADOS E DISCUSSÃO

SOLOS RESIDUAIS, GEOFORMAS E ANOMALIAS DE U E DE TH

Com base em inúmeros levantamentos de solos efetuados no Brasil, verificou-se que em paisagens diferenciadas resultantes da evolução em ambiente tropical úmido, os Latossolos, em geral, ocorrem na paisagem eluvial, em superfícies mais estáveis e elevadas das vertentes, com declividades entre 0 e 8%. Os Solos Podzólicos dominam a paisagem transeluvial, com superfícies mais jovens e altitudes intermediárias, onde as declividades situam-se entre 8 e 45%. Nesta paisagem verifica-se um forte controle dos parâmetros locais do meio-físico sobre a configuração geométrica e distribuição espacial dos perfis de solos e suas propriedades físicas. Os Solos Hidromórficos são típicos da paisagem supraqual, zona menos elevada da vertente, com declividades baixas ou nulas (figura 2). A seguir são destacados os principais elementos de cada uma das paisagens consideradas.

PAISAGEM ELUVIAL (LATOSSOLOS)

Nesta paisagem em geral os fluxos aquosos são verticais descendentes. O ambiente geoquímico acima do nível freático é francamente oxidante e o pH é ácido. As principais anomalias de U e de Th que aí ocorrem são devidas a minerais resistatos contendo U e Th, compostos insolúveis de Th, e U e Th livres fixados por oxihidróxidos de Fe e Al e argilas. Caracterizam-se por baixa relação Us/Ut e alta Th/U e contagem gama intensa (tabela 2). Tais anomalias estão situadas no topo do horizonte B Latossólico e as de menor intensidade, mas com maior proporção relativa de U livre, fixado principalmente por adsorção, distribuem-se pelo corpo do referi-

do horizonte. A influência da zona de oscilação do nível freático condicionando ambientes menos oxidantes e menos ácidos proporcionam fases argilosas com maior quantidade de estruturas 2:1 (argilas tipo montmorillonita) em profundidade. As principais concentrações são de natureza relativa/residual, pela eliminação dos outros constituintes do perfil de alteração. Assim, a retenção de U e Th nos perfis de alteração de rochas profundamente alteradas em ambiente de latolização deve-se à estabilidade das fases acessórias, e ao U e ao Th adsorvidos aos produtos do intemperismo, óxidos e argilas, assim como a insolubilidade dos compostos de Th.

O Th e seus compostos são praticamente insolú-

Tabela 2: Alguns atributos das principais concentrações de U e de Th em solos residuais de paisagens tropicais úmidas, em uma vertente sobre granito. *Some attributes of the main concentrations of U and Th in residual soils of humid tropical landscapes in a slope over granite.*

	Rocha inalterada ¹	Paisagem eluvial	Paisagem transeluvial		Paisagem supraqual
	Ausência de solos	Latossolos ²	Solos	Solos jovens	Solos Hidromórficos ⁴
			Podzólicos ³		
Radiação gama ⁵	Moderada	Intensa	Muito intensa	Moderada	Moderada
Th/U	~4	Alta	Média	~4	Baixa
Us/Ut	Baixa	Baixa	Média	Baixa	Alta (~ 1)

FONTE: Rebelo. 2000.

NOTAS: ¹ Radionuclídeos disseminados pelas diferentes fases hospedeiras do granito.

² Principais concentrações devidas a resistatos com U e Th, e situadas no topo do horizonte B Latossólico.

³ Concentrações devidas a resistatos com U e Th, e U e Th adsorvidos, no topo do horizonte B textural. As razões Th/U e Us/Ut medidas no horizonte A arenoso, em geral, são, respectivamente, muito altas e muito baixas, devido à extrema lixiviação sofrida por esse horizonte.

⁴ Principais concentrações devidas a U fixado por argilas e matéria orgânica, situadas no horizonte A.

⁵ Em bases relativas.

veis no ambiente pedogenético e a sua concentração nos horizontes de solos é devida, principalmente, à acumulação de grãos minerais Vinogradov (1959). Em ambiente oxidante, o intervalo de pH entre 5 e 9 é o de predomínio dos processos pedogenéticos de latolização (Carvalho 1995), cujos produtos são caracterizados por perfis enriquecidos em argilas caoliníticas cimentadas por oxihidróxidos de Fe e Al. É nesse intervalo de pH que se situam os campos de estabilidade do Fe_2O_3 e do Al_2O_3 . Conforme dados de Demattê (1983), em sistemas de silicato-óxido, como o exemplo acima descrito, o ponto isoelétrico do complexo coloidal ocorre com pH 4. Abaixo desse valor a carga superficial é positiva, e acima negativa.

Então, o intervalo de pH de máxima sorção de $(\text{UO}_2)^{2+}$ em oxihidróxido férrico amorfo, entre 5 e 8, é

também o de solubilidade mínima dos minerais de uranila (Langmuir 1978). É a faixa de pH de domínio da latolização, ou zona de estabilidade do Fe_2O_3 e Al_2O_3 , faixa em que a carga elétrica superficial do complexo coloidal silicato-óxido é negativa. Tal conjunto de fatores favorece a adsorção de parcelas importantes do $(\text{UO}_2)^{2+}$, assim como do Th^{+4} , liberados durante o intemperismo químico e pedogênese.

Nessa linha, Adams & Richardson (1960), em seus estudos sobre diferentes tipos de bauxitas e respectivas rochas-mãe, mostraram que a razão Th/U aumenta com a bauxitização. Assumindo que o Th permanece fixo durante a "pedogênese laterítica", os autores citados estimaram que durante o processo de bauxitização cerca de 20% do U de rochas ígneas e folhelhos são lixiviados do nível bauxítico (tabela 3).

Dados obtidos por Weijden & Weijden (1995) sobre maciços graníticos em Portugal comprovam que em condições oxidantes o U é relativamente solúvel como espécie U^{+6} , entretanto, é fortemente adsorvido em óxidos de Fe^{+3} . De acordo com Langmuir, a adsorção de

espécies uranila (UO_2^{2+}), a partir de águas subterrâneas, em materiais coloidais inorgânicos e orgânicos, como oxihidróxidos de Fe, Mn, Ti e argilas, e matéria orgânica, tem o papel principal na concentração do U no ambiente superficial

Tabela 3: Valores médios para Th, U e Th/U em bauxitas e respectivas rochas-fonte. *Mean values for Th, U and Th/U in bauxites and respective parent rocks.*

TIPO DE ROCHA	Th (ppm)	U (ppm)	Th/U
Folhelhos	12,0	3,7	3,8
Fator de concentração	(3,7)	(2,8)	(1,3)
Bauxitas derivadas de folhelhos (4 amostras)	44,1	10,5	5,1
Urânio lixiviado		(23%)	
Ígneas básicas	3,9	0,96	4,0
Fator de concentração	(5,3)	(4,4)	(1,3)
Bauxitas de ígneas básicas (6 amostras)	20,7	4,2	5,2
Urânio lixiviado		(18%)	
Ígneas ácidas	13,0	3,0	5,0
Fator de Concentração	(6,9)	(5,3)	(1,6)
Bauxitas de ígneas ácidas (6 amostras)	89,1	15,8	7,8
Urânio lixiviado		(24%)	

FONTE: Ferraioli & Ferreira, 1987.

Tais estudos são corroborados por dados levantados por Dickson & Scott (1997) sobre granitos australianos em condições de caolinização. Estes evidenciam que intemperismo químico de rochas félsicas, além do K, condicionam perdas de U e de Th, cuja intensidade depende de muitos fatores, porém perdas típicas são da ordem de 20 a 30% para os 3 elementos. No caso do U e do Th, porém, é mantida uma retenção aparente de 60 a 80%. Na mesma época Wilford et al. (1997) constataram que altos valores de U e de Th em solos residuais sobre granitos em Ebagooola, Austrália, correspondem, principalmente, à concentração de resístatos, como zircão, e adsorção por óxidos de Fe. A propósito, estudos de Ragland et al. (1967), sobre radioatividade no *Enchanted Rock Batholith*, Texas, USA, já haviam mostrado que allanita, esfeno e zircão são os minerais acessórios mais radioativos, superando os minerais essenciais por fatores da ordem de 10^3 a 10^4 .

PAISAGEM TRANSELUVIAL (SOLOS PODZÓLICOS)

Na paisagem transeluvial, os fluxos aquosos subterrâneos são predominantemente laterais, sendo os mais superficiais fortemente canalizados através dos horizontes A e E dos Solos Podzólicos. O ambiente geoquímico

é oxidante nos horizontes A e E, gradando para redutor do topo do Bt para as partes mais profundas, onde são maiores os níveis de pH. As principais anomalias de U e de Th, por serem o retrabalhamento das associadas aos Latossolos, pela podzolização, e fixadas em ambiente geoquímico mais favorável, apesar de qualitativamente exibirem as mesmas fases hospedeiras, acrescidas de matéria orgânica, apresentam teores mais elevados e maior proporção de U livre em relação ao total. Neste caso, a presença de material orgânico traduz-se num diferencial importante. Queluviação de Fe e Al e eluviação-iluviação de material argiloso e carbonoso conduzem à mobilização tanto do U derivado da destruição dos oxihidróxidos de Fe e Al, das argilas, bem como os minerais resístatos contendo U e Th e compostos de Th. De tais processos resultam horizontes A e E arenosos depletados nesses radionuclídeos, ou com fracas concentrações se os processos forem parciais, e um horizonte B enriquecido. As concentrações anômalas caracterizam-se pela razões U_s/U_t superior e Th/U inferior às mesmas razões nos Latossolos e por manifestações gama muito intensas (tabela 2). O seu posicionamento principal é no topo do horizonte B textural (Bt), podendo, secundariamente, distribuir-se ao longo deste horizonte. Em condições de podzolização, o enriquecimento em U e Th das anomalias é progressivamente maior no sentido

da paisagem supraqual. As concentrações são em parte relativas e em parte absolutas, pela migração de porções dos radionuclídeos mencionados, seja em solução verdadeira ou por meio dos processos de hidromorfia e de eluviação-iluviação.

Como visto, em “ambiente laterítico” o Th e seus compostos têm mobilidade geoquímica baixa, exceto em condições ácidas (Langmuir & Herman 1980, apud Viers et al. 1997), e a sua concentração nos horizontes de solo é devida, principalmente, à acumulação de grãos minerais (Vinogradov 1959), pois, além dos óxidos de Th, os principais portadores de Th e U, monazita e zircão, são estáveis durante o intemperismo, devendo

acumular-se como depósitos residuais. O Th livre pode ser retido sobretudo em oxihidróxidos de Fe. No entanto, assim como o U, o Th também pode ser transportado em solução coloidal adsorvido em argilas e óxidos de Fe (Dickson & Scott 1997) e colóides orgânicos (Viers et al. 1997), o que pode ocorrer em condições de podzolização na presença de ácidos húmicos. Segundo Langmuir (1978), se a redução de íons uranila a +4 não ocorrer após sua adsorção, estes poderão ser posteriormente “desorvidos” em condições de maior acidez, o que pode ser depreendido dos dados obtidos por Greeman & Rose (1996), sintetizados na tabela 4.

Tabela 4: Teor de argila, carbono orgânico, Fe, U e Th em diferentes horizontes de um Ultissolo¹ residual sobre um granito da Carolina do Norte, USA. *Clay, organic carbon, Fe, U and Th contents on different horizons of a residual Ultisoll¹ on a granite of North Carolina, USA.*

Amostra	Horiz.	Profund. (cm)	Argila (wt %)	Carbono Org. (wt%)	Óxido de Ferro (wt%)	U (ppm)	Th (ppm)
NC-1-2	A	0-3	7,7	1,00	0,58	3,8	4,1
NC-1-3	E	3-10	9,2	0,41	0,76	4,6	5,2
NC-1-4	EB	10-18	8,8	0,46	0,72	4,7	5,9
NC-1-5	Bt1	18-43	45,0	0,19	3,4	7,1	23,0
NC-1-6	Bt2	43-69	38,0	0,13	3,0	7,0	25,0
NC-1-8	BC1	89-130	20,0	0,01	1,8	7,4	21,0
NC1-11	C2	297-361	3,2	0,12	0,53	7,6	16,0
Média	-	-	28,0	-	-	7,1	20,0

FONTES: Greeman & Rose, 1996.

NOTA: ¹ Ultissolo equivale a Podzólico Vermelho Amarelo.

Assim, durante o retrabalhamento pela podzolização das anomalias associadas aos Latossolos, a redistribuição de resistatos contendo Th e U, bem como a maior parte dos minerais e fases coloidais contendo U e Th, podem ser afetadas pelos processos pedogenéticos de eluviação-iluviação (Tieh et al. 1980, Dickson & Scott 1997, Wilford et al. 1997), muito embora seu transporte seja limitado.

Este fato já tinha sido constatado por Vinogradov (1959), quando concluiu que em perfis de alteração, o U, além de ser removido pelas águas de circulação como $(\text{UO}_2)^{2+}$, ou compostos orgânicos, também é transportado em suspensão, devido aos processos de eluviação-iluviação entre os horizontes A e B dos solos. Um dos principais fatores nesta mobilização é o pH. Segundo dados experimentais obtidos por Borovec et al. (1979), a quantidade de metais adsorvidos diminui com o abaixamento do pH do meio e com a competição com outros metais.

PAISAGEM SUPRAQUAL (SOLOS HIDROMÓRFICOS)

Nesta paisagem, a zona de aeração do aquífero é pouco espessa ou ausente, e o nível freático aflora ou está a pequena profundidade. Os fluxos são predominantemente laterais na época das chuvas e verticais ascendentes, pela conjugação dos processos de capilaridade e evaporação, durante a época de estiagem. O ambiente geoquímico é francamente redutor pela saturação freqüente dos solos e presença de matéria orgânica (MO), e o pH é, em geral, neutro a alcalino podendo, no entanto, ser ácido, influenciado pela presença de ácidos húmicos. Além da MO, ocorrem fases argilosas e compostos de Fe com alta capacidade de troca catiônica, conjunto de fatores favoráveis à fixação do U, que chega em solução oriundo das outras paisagens, durante as fases de latolização e podzolização. Tanto a paisagem eluvial como a transeluvial, durante sua história

evolutiva contribuem, por meio de fluxos laterais, para o enriquecimento em U da paisagem supraqual. As concentrações são de natureza predominantemente absoluta, tendo em vista o aporte de U de outras paisagens. As anomalias são essencialmente uraníferas, associadas aos horizontes A₀ e A₁ dos solos. A maior parte do U é fixada por adsorção, resultando numa alta razão U_s/U_t, tendendo à unidade, e baixa de Th/U. As manifestações de radiações gama são de intensidade moderada (tabela 2).

Nessa paisagem, desequilíbrio radioativo, com reflexos negativos na intensidade das emissões gama na cadeia do ²³⁸U, pode ocorrer em situações específicas, geograficamente localizadas nas imediações da atual rede de drenagem. Isto deve-se à pouca idade de deposição do ²³⁸U nestes locais, ocorrida principalmente durante a podzolização dos Latossolos, entre 100.000 e 500.000 anos, tempo insuficiente para o restabelecimento do equilíbrio radioativo secular na série do ²³⁸U. O

gradiente hidráulico elevado do subsistema aquífero freático suspenso, condicionado por um horizonte B textural inclinado e pouco permeável, condiciona fluxos laterais fortemente canalizados através dos horizontes A e E dos Solos Podzólicos, essencialmente arenosos e com boa permeabilidade, conduzindo-os para o sistema de canais da paisagem supraqual.

Assim, diferentemente dos metais contidos em resíduos dos solos residuais das paisagens eluvial e transeluvial, uma proporção substancial do metal das anomalias em ambiente hidromórfico é fracamente ligada às fases hospedeiras, portanto, facilmente extraível. Na Zâmbia, uma situação similar, com Cu, bastante didática a esse propósito, foi estudada por Webb & Toons (1959), apud Rose et al. (1979). Neste exemplo, a proporção de todo o Cu facilmente extraível varia de 20% a 80% em anomalias hidromórficas, comparada com menos de 10% em anomalias residuais de solos livremente drenados.

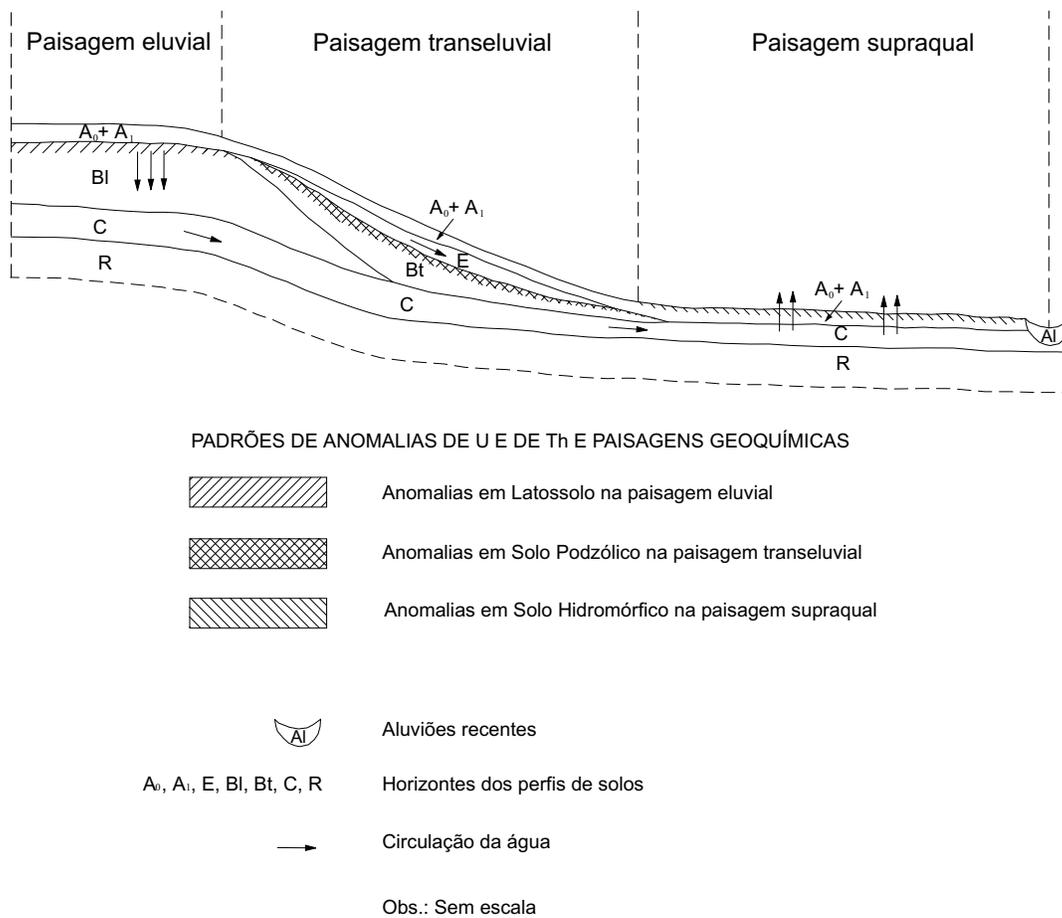


Figura 2: Relações entre sistema de transformação Latossolo-Solo Podzólico, geoformas e padrões de anomalias de U e de Th, em paisagens tropicais úmidas sobre granito (Rebello 2000). *Relationships among the Latosol-Podzolic transformation system, geomorphs, and the patterns for U and Th anomalies, in humid tropical landscapes over granite (Rebello 2000).*

CONCLUSÕES

Em ambiente climático tropical úmido, a transformação de rochas com teores normais e bem distribuídos nos radionuclídeos U e Th – pela atuação dos processos supergênicos, sobretudo processos pedogeoquímicos – pode resultar em materiais de alteração com diferente distribuição e concentrações desses elementos, consideravelmente mais elevadas que as existentes nas rochas inalteradas. Isto decorre do fato de que durante as transformações pedogeoquímicas, a concentração e hospedagem inicial do U e do Th, no caso de granitos, principalmente em minerais acessórios, em grande parte resistatos, são profundamente modificadas. Estas modificações resultam em novas fases hospedeiras e concentrações anômalas de diferentes características, associadas com os diferentes solos residuais nas paisagens elementares de uma vertente (figura 2).

Mesmo materiais intensamente lixiviados, como os da associação de Latossolo e Solo Podzólico, mostram elevação relativa nos valores de U e Th, pela acumulação de resistatos e pela associação com as fases óxido, argilosa e carbonosa, principalmente no topo do horizonte B, A0 e A1 dos perfis destes solos. Os diferentes tipos de distribuição de U e Th nas fases hospedeiras secundárias nos perfis abordados e a intensidade de suas concentrações nas diferentes paisagens, refletem os tipos de ligação desses metais com suas fases originais e suas mobilidades nas diferentes paisagens geoquímicas, estabelecidas pela atuação dos processos supergênicos ao longo das vertentes.

Assim, numa vertente modelada em clima tropical úmido sobre rocha granítica contendo os radionuclídeos U e Th, e revestida de solos residuais diferenciados, as paisagens com maior probabilidade de anomalias intensas são, pela ordem, as paisagens transeleuvial, no topo

do horizonte B textural dos Solos Podzólicos, e eluvial, no topo do horizonte B dos Latossolos. Na paisagem supraqual, em geral, as anomalias são essencialmente uraníferas, associadas aos horizontes A0 e A1 dos Solos Hidromórficos, sendo de menor intensidade que as anteriores.

Fica claro então que, no ambiente climático considerado, a atuação dos processos geoquímicos responsáveis pela redistribuição do U e do Th ocorreu concorrentemente com a dos processos pedogenéticos, morfogenéticos e hidrogeológicos, durante a evolução das paisagens. Os principais tipos de anomalias destes radionuclídeos, tipos e horizontes de solos residuais, paisagens geoquímicas e geoformas estão cronológica e espacialmente relacionados (figura 2). Por outro lado, além dos modelos pedogeoquímicos de dispersão, de caráter interdisciplinar, para o entendimento da redistribuição superficial dos metais-traço oriundos das rochas subjacentes, é necessário e fundamental a utilização integrada de modelos morfogenéticos que bem traduzam as variações espaciais das paisagens.

AGRADECIMENTOS

Ao Dr. Ayrton José Caubit da Silva, Diretor de Radioproteção e Segurança Nuclear, e ao Dr. Paulo Roberto Cruz, Coordenador de Matérias-Primas e Mineraias, da Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN, pela liberação e apoio para frequentar o Curso de Pós-Graduação do Departamento de Geologia do Setor de Ciências da Terra da Universidade Federal do Paraná – UFPR. Também, à professora Areta Ulhana Galat pela tradução e ao estudante de geologia Tiago Bittencourt Rossi pela revisão do “Extended Abstract”.

REFERÊNCIAS

- Adams J.A.S., Richardson K. A. 1960. Thorium, uranium and zirconium concentrations in bauxite. *Economic Geology*, **55**: 1653-1675.
- Borovec Z., Kribek B., Tolar V. 1979. Sorption of uranyl by humic acids. *Chemical Geology*, **27**: 39-46.
- Boulet R., Lucas Y., Fritsch E., Paquet H. 1993. Géochimie des paysages: le rôle des couvertures pédologiques. In: COLL. SEDIMENTOLOGIE ET GÉOCHIMIE DE LA SURFACE, LA MÉMOIRE DE GEORGES MILLOT, 1993. *Anais...*, p. 55-76.
- Carvalho I.G. 1995. *Fundamentos da geoquímica dos processos exógenos*. Salvador: Bureau, 213 p.
- Comissão de Solos 1960. *Levantamento de reconhecimento dos solos do estado de São Paulo*. Rio de Janeiro, CNEPA, Ministério da Agricultura, **12**: 350 p.
- Cruz O. 1985. A escala temporal-espacial nos estudos dos processos geomorfológicos erosivos atuais. Uma questão de método. *Geomorfologia*, São Paulo, Instituto de Geografia, Universidade de São Paulo, **33**: 1-6.
- Demattê J.L.I. 1983. *Curso de gênese e classificação de solos*. Piracicaba, Universidade de São Paulo, Departamento Editorial do Centro Acadêmico “Luiz de Queiroz”. Apostila, partes 1 e 2.
- Dickson B.L., Scott K.M. 1997. Interpretation of aerial gamma-ray surveys adding the geochemical factors. *AGSO Journal of Australian Geology & Geophysics*, **17** (2): 187-200.

- Ferraioli R.N.M., Ferreira Z.C.A. 1987. *Comportamento geoquímico de U_3O_8 , Mo, Y, Ga, V e Zr na seqüência laterito-bauxítica de Croantá-Paragominas (PA)*. Belém, Nuclebrás –EBEL.
- Fortescue J.A.C. 1980. *Environmental geochemistry*. New York, Springer-Verlag, 347 p.
- Granier C.L. 1973. *Introduction a la prospection géochimique des gîtes métallifères*. Paris, Masson et Cie., 143 p.
- Greeman D.J., Rose A.W. 1996. Factors controlling the emanation of radon and thoron in soils of the eastern U.S.A. *Chemical Geology*, **129**: 1-14.
- Guthrie V.A., Kleeman J.D. 1986. Changing uranium distributions during weathering of granite. *Chemical Geology*, **54**: 113- 26.
- Harmon R.S., Rosholt J.N. 1982. Igneous rocks. In: Ivanovich M., Harmon R.S. (ed.) *Uranium series disequilibrium: Applications to environmental problems*. Oxford, Clarendon Press, 571 p.
- Ivanovich M. 1982. Spectroscopic methods. In: Ivanovich M., Harmon R.S. (ed.) *Uranium series disequilibrium: Applications to environmental problems*. Oxford, Clarendon Press, 571 p.
- Langmuir D. 1978. Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **42**: 547-569.
- Melfi A.J., Pedro G. 1977. Estudo geoquímico dos solos e formações superficiais do Brasil. Parte 1 – caracterização e repartição dos principais tipos de evolução pedogeoquímica. *Revista Brasileira de Geociências*, **7**: 271-286.
- Ragland P.C., Billings G.K., Adams J.A.S. 1967. Chemical fractionation and its relationship to the distribution of thorium and uranium in a zoned granite batholith. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **31 (1)**: 17-33.
- Rose A.W., Hawkes H.E., Webb J.S. 1979. *Geochemistry in mineral exploration*. 2. ed. London, Academic Press, 657 p.
- Rebello A.M.A. 2000. *Processos supergênicos na distribuição de radônio em paisagens tropicais úmidas*. Curitiba, 2000. 210 p. (Tese de Doutorado em Geologia Ambiental, Departamento de Geologia, Setor de Ciências da Terra da Universidade Federal do Paraná).
- Salomão F.X.T. 1994. *Processos erosivos lineares em Bauru (SP): regionalização cartográfica aplicada ao controle preventivo urbano e rural*. São Paulo, 1994. 200 p. (Tese de Doutorado em Geografia Física, Departamento de Geografia, FFLCH – Universidade de São Paulo).
- Tieh T.T., Ledger E.B., Rowe M.W. 1980. Release of uranium from granitic rocks during in situ weathering and initial erosion (central Texas). *Chemical Geology*, **29**: 227-248.
- Vidal-Torrado P., Lepsch I.F., Castro S.S., Cooper M. 1999. Pedogênese de uma seqüência Latossolo-Podzólico na borda de um platô na depressão periférica paulista. *Revista Brasileira de ciência do Solo*, Viçosa, Minas Gerais, **23**: 909-921.
- Viers J., Dupré B., Polvé M., Schott J., Dandurand J.L., Braun J.L. 1997. Chemical weathering in the drainage basin of a tropical watershed (Nsimi-Zoetele site, Cameroon): comparison between organic-poor and organic-rich waters. *Chemical Geology*, **140**: 181-206.
- Vinogradov A.P. 1959. *The geochemistry of rare and dispersed chemical elements in soils*. New York, Consultants Bureau, 187 p.
- Weijden C.H., Weijden R.D. 1995. Mobility of major, minor and some redox-sensitive trace elements and rare-earth elements during weathering of four granitoids in central Portugal. *Chemical Geology*, **125**: 149-167.
- Wilford J.R., Bierwirth P.N., Craig M.A. 1997. Application of airborne gamma-ray spectrometry in soil/regolith mapping and applied geomorphology. *AGSO Journal of Australian Geology & Geophysics*, **17 (2)**: 201-216.

Recebido em 1 out. 2001
Aceito em 14 mar. 2002