

Tese de Doutorado

Jorge Costa de Moura

Assinatura geoquímica de columbita-tantalita e levantamento radiométrico de pegmatitos radioativos da região de Parelhas, Rio Grande do Norte, Brasil

**ASSINATURA GEOQUÍMICA DE COLUMBITA-TANTALITA
E LEVANTAMENTO RADIOMÉTRICO DE PEGMATITOS
RADIOATIVOS DA REGIÃO DE PARELHAS,
RIO GRANDE DO NORTE, BRASIL**

Jorge Costa de Moura

PPGL
IGEO
UFRJ

2013



UFRJ

**ASSINATURA GEOQUÍMICA DE COLUMBITA-TANTALITA
E LEVANTAMENTO RADIOMÉTRICO DE PEGMATITOS
RADIOATIVOS DA REGIÃO DE PARELHAS,
RIO GRANDE DO NORTE, BRASIL**

Jorge Costa de Moura

Tese de Doutorado submetida ao Programa de Pós-graduação em Geologia, Instituto de Geociências, da Universidade Federal do Rio de Janeiro – UFRJ, como requisito necessário à obtenção do grau de Doutor em Ciências (Geologia).

Orientadores:

Dr^a Isabel Pereira Ludka
Dr. Julio Cezar Mendes

**ASSINATURA GEOQUÍMICA DE COLUMBITA-TANTALITA
E LEVANTAMENTO RADIOMÉTRICO DE PEGMATITOS
RADIOATIVOS DA REGIÃO DE PARELHAS,
RIO GRANDE DO NORTE, BRASIL**

Jorge Costa de Moura

Orientadores: Dr^a Isabel Pereira Ludka
 Dr. Julio Cezar Mendes

Tese de Doutorado submetida ao Programa de Pós-graduação em Geologia, Instituto de Geociências, da Universidade Federal do Rio de Janeiro - UFRJ, como parte dos requisitos necessários à obtenção do título de Doutor em Ciências (Geologia).

Aprovada por:

Silvia Regina de Medeiros (DSc), IGEO/UFRJ

Presidente: NOME, INSTITUIÇÃO

Everton Marques Bongioio (DSc), IGEO/UFRJ

NOME, INSTITUIÇÃO

Reiner Neumann (DSc), CETEM

NOME, INSTITUIÇÃO

Valmir Pereira (DSc), CNEN

NOME, INSTITUIÇÃO

Helio Salim de Amorim (DSc), IF/UFRJ

NOME, INSTITUIÇÃO

Costa-de-Moura, Jorge

Assinatura geoquímica de columbita-tantalita e levantamento radiométrico de pegmatitos radioativos da região de Parelhas, Rio Grande do Norte, Brasil. Rio de Janeiro, 2013.

xv, 128 p. (Instituto de Geociências – UFRJ, D.Sc., Programa de Pós-Graduação em Geologia, 2013).

Tese – Universidade Federal do Rio de Janeiro, realizada no Instituto de Geociências.

1. Província Pegmatítica da Borborema, columbita-tantalita, *fingerprint* de coltan, pegmatitos radioativos, radiação gama ambiental.

I – IG/UFRJ

Aos meus entes mais queridos: Carin, Dora, Gilza, Dudé e José Antonio

AGRADECIMENTOS

Agradeço especialmente às seguintes pessoas e instituições:

Aos professores, doutores, geólogos, orientadores e amigos Isabel Pereira Ludka e Julio Cezar Mendes pelo inestimável suporte e por toda a orientação ao longo de todos esses anos.

Ao saudoso químico, amigo e orientador Doutor Moacir Cipriani.

À Divisão de Matérias Primas e Minerais da CNEN, e especialmente ao geólogo Paulo Roberto Cruz pela idealização do tema.

Ao chefe de DINOR, Eduardo Mendonça por todo o incentivo para a conclusão da tese.

Ao Laboratório de Traçadores da COPPE pelo empréstimo de equipamentos e suporte técnico.

Ao Instituto Militar do Exército pela ajuda na calibração e aferição de equipamentos utilizados em campo.

Ao 14º Distrito do DNPM, Natal, e especialmente ao companheiro Carlos Magno.

Ao LAPOC e ao CDTN pelas análises químicas das amostras de coltan e outros materiais radioativos.

Finalmente e não menos importante, os mais sinceros agradecimentos à Turma “da Roupas Sujas”, Alexandre Trajano (DNPM/DF) e Néelson Marcelino (DNPM/RN) e Getúlio Myiasaki da DIFOR/CNEN.

Agradeço imensamente a banca examinadora pelas valiosas observações e sugestões e pela chance de melhorar a apresentação final da tese.

Por último, meu enorme agradecimento à minha esposa Carin, que esteve sempre ao meu lado, me motivando e apoiando com muita paciência e carinho.

“Foi nesta altura que, em profusão e diversidade internacional, apareceram os geólogos. Entre Orbaiceta e Larrau já havia de tudo um pouco, se não muito, como antes se enumerou, agora chegavam em força os sábios da terra e das terras, os averiguadores de movimentos e acidentes, estratos e blocos erráticos, de martelinho na mão, batendo em tudo quanto fosse pedra ou pedra parecesse (...) A discussão dos sábios tornara-se quase impenetrável para entendimentos leigos, mas, ainda assim, podia-se ver que havia duas teses centrais em discussão, a dos monoglacialistas e a dos poliglacialistas, ambas irreduzíveis, e não tarda inimigas, como duas religiões antitéticas, monoteísta uma, politeísta a outra. Algumas declarações chegavam a parecer interessantes, como aquela de deformações, certas deformações, poderem ser devidas, quer a uma elevação tectônica quer a uma compensação isostática da erosão. Tanto mais, acrescentava-se, que o exame das formas actuais da cordilheira permite afirmar que ela não é antiga, geologicamente falando, é claro.”

A jangada de pedra. José Saramago

RESUMO

**ASSINATURA GEOQUÍMICA DE COLUMBITA-TANTALITA
E LEVANTAMENTO RADIOMÉTRICO DE PEGMATITOS
RADIOATIVOS DA REGIÃO DE PARELHAS,
RIO GRANDE DO NORTE, BRASIL**

Jorge Costa de Moura

Orientadores: Dr^a Isabel Pereira Ludka
Dr. Julio Cezar Mendes

Resumo da Tese de Doutorado submetida ao Programa de Pós-graduação em Geologia, Instituto de Geociências, da Universidade Federal do Rio de Janeiro – UFRJ, como parte dos requisitos necessários à obtenção do título de Doutor em Ciências (Geologia).

RESUMO: Esta tese resulta de investigações geoquímicas, estruturais e gamarradiométricas em pegmatitos radioativos da Província Pegmatítica da Borborema, Nordeste do Brasil. A área de estudo, localizada nos arredores da cidade de Parelhas, na região da Serra da Borborema, é bem conhecida por conter milhares de corpos pegmatíticos explotados de forma primitiva nos denominados garimpos. O objetivo principal foi encontrar um mecanismo de fiscalização eficiente, barato e rotineiro para identificar a origem do minério radioativo de columbita-tantalita (coltan) comercializado. A Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) fiscaliza o comércio de urânio e a atividade nuclear no Brasil. Sem um método eficaz para caracterizar estes minérios de diferentes localidades é impossível controlar o seu comércio. O novo método aqui apresentado foi desenvolvido correlacionando-se características estruturais destes pegmatitos com o comportamento geoquímico de suas amostras de coltan. Descobriu-se que a variação da razão U/Th versus Nb_2O_5/Ta_2O_5 fornece assinaturas geoquímicas (*analytical fingerprints*) para os locais de origem desse minério. Um teste do novo método com amostras de coltan de lotes comerciais oriundos do Amapá e de Rondônia também gerou assinaturas geoquímicas distintas. Para estudar o impacto ambiental da radiação foi feito um levantamento da radiação gama (CPS) nos garimpos e pegmatitos, que incluiu medições *in situ* das paredes dos pegmatitos, das encaixantes, do solo e de água acumulada, o que revelou que emissores gama dificilmente são solubilizados e a radiação gama ambiental, portanto, geralmente não é elevada a um nível perigoso.

Palavras-chave: Província Pegmatítica da Borborema, assinatura geoquímica de columbita-tantalita, pegmatitos radioativos, radiação gama ambiental

ABSTRACT**GEOCHEMICAL SIGNATURE OF COLUMBITE-TANTALITE AND
RADIOMETRIC SURVEY OF RADIOACTIVE PEGMATITES IN THE
REGION OF PARELHAS, RIO GRANDE DO NORTE, BRAZIL:**

Jorge Costa de Moura

Orientadores: Dr^a Isabel Pereira Ludka
Dr Julio Cezar Mendes

Abstract da Tese de Doutorado submetida ao Programa de Pós-graduação em Geologia, Instituto de Geociências, da Universidade Federal do Rio de Janeiro – UFRJ, como parte dos requisitos necessários à obtenção do título de Doutor em Ciências (Geologia).

ABSTRACT: *This thesis is the result of geochemical, structural and radiometric investigations on radioactive pegmatites of the Borborema Pegmatitic Province in Northeast Brazil. The studied area, located in the surroundings of the city of Parelhas in the region of the Serra da Borborema, is well known for its thousands of pegmatitic bodies exploited in primitive mines called garimpos. The main goal was to find an efficient, cheap and routine inspection procedure to identify the origin of commercialized radioactive columbite-tantalite (coltan) ore. The Brazilian Nuclear Energy Agency (CNEN) controls uranium commerce and nuclear activity in Brazil. Without an effective method to characterize coltan ores from different localities it is impossible to control the trade. The here presented new method was developed by correlating structural features of these pegmatites with the geochemical behavior of their coltan samples. It was found that the variation of the ratio U/Th versus Nb₂O₅/Ta₂O₅ provides geochemical signatures (analytical fingerprints) for the source location of such ore. A test of the new method with coltan samples of commercial batches from the Brazilian states Amapá and Rondônia also generated distinct geochemical signatures. A radiometric survey (CPS) was carried out in several mines and pegmatites to study the environmental impact of gamma radiation. It included in situ measurements of pegmatite walls, host rocks, soil, and accumulated water and revealed that gamma emitters are hardly solubilized and environmental gamma radiation therefore generally is not enhanced to a dangerous level.*

Key-Words: Borborema Pegmatitic Province, geochemical signature of columbite-tantalite, radioactive pegmatites, environmental gamma radiation

SUMÁRIO

AGRADECIMENTOS	iv
RESUMO	vi
ABSTRACT	vii
SUMÁRIO	viii
LISTA DE FIGURAS	x
LISTA DE TABELAS	xii
LISTA DE SÍMBOLOS E CONVENÇÕES	xiii
1 INTRODUÇÃO	1
1.1 OBJETIVOS	1
1.2 DESCRIÇÃO DO PROBLEMA E ÁREA DE TRABALHO	1
1.3 GEOLOGIA REGIONAL- PROVÍNCIA DA BORBOREMA	5
1.4 GEOLOGIA LOCAL – PROVÍNCIA PEGMATÍTICA DA BORBOREMA	15
1.4.1 Classificação estrutural dos pegmatitos da região	19
1.5 MINERALOGIA E GEOQUÍMICA DOS PEGMATITOS	21
1.5.1 Classificação dos pegmatitos	23
1.5.2 Minerais do grupo columbita	24
1.5.3 Minerais de urânio e tório	27
1.5.4 Outros minerais dos pegmatitos	30
1.6 MATERIAIS E MÉTODOS	31
1.6.1 Trabalhos de campo	32
1.6.2 Análise das amostras	33
1.6.3 Calibração dos medidores de radiação gama	34
1.6.4 Detalhes da medição da radiação gama	37
1.6.5 Modelagem dos dados geoquímicos	37
1.6.6 O único método conhecido de assinatura de coltan	38
2 RESULTADOS	40
2.1 RESULTADOS PRELIMINARES	40
2.1.1 Mineralogia, geoquímica e radiação gama ambiental	40
2.1.1.1 Pegmatito Alto do Trigueiro I	41
2.1.1.2 Pegmatito Alto do Trigueiro III	43
2.1.1.3 Pegmatito Alto Quintos do Meio	46
2.1.1.4 Vários pegmatitos	48
2.1.2 Segurança de trabalho	49
2.1.3 Geoquímica do minério de coltan dos lotes inspecionados	51
2.1.4 Discussão dos resultados preliminares	53
2.2 RESULTADOS FINAIS	55
2.2.1 Assinatura geoquímica de coltan dos pegmatitos de Parelhas	55
2.2.1.1 Pegmatitos Tipo I – concordantes com a foliação principal (S2) e deformados pelas dobras F3	57
2.2.1.2 Pegmatitos Tipo II – cortam a foliação principal (S2) e as dobras intrafoliais (F2) e são dobrados por F3	59
2.2.1.3 Pegmatitos Tipo III – cortam as dobras F3	60
2.2.1.4 Pegmatitos Tipo IV – cortam a foliação principal (S2) e as dobras F2 e ocorrem no plano axial das dobras F3	61

2.2.2	Levantamento da radiação gama ambiental	63
2.2.3	Discussão dos dados gamarradiométricos	68
2.2.4	Discussão das assinaturas geoquímicas de coltan e validação do novo método	71
2.2.4.1	Variação de U/Th em coltan da região de Parelhas	71
2.2.4.2	Variação de U/Th em coltan do Amapá e de Rondônia	73
3	CONCLUSÕES E RECOMENDAÇÕES	76
	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	78
	APÊNDICE – Tabelas de análise química	85
	A – Tabelas de análise química	85
A1	Amostras de lotes de minério de coltan de Parelhas/RN (%)	85
A2	Amostras de lotes de minério de coltan de Parelhas/RN (%M)	86
A3	Amostras de coltan dos pegmatitos Tipo I	87
A4	Amostras de coltan dos pegmatitos Tipo II	87
A5	Amostras de coltan dos pegmatitos Tipo III	87
A6	Amostras de coltan pegmatitos Tipo IV	88
A7	Amostras de lotes de minério de coltan do estado de Rondônia (%)	88
A8	Amostras de lotes de minério de coltan do estado de Amapá (%)	89
	B – Tabelas de medidas de taxa de contagem (CPS)	90
B1	Garimpo Alto doTrigueiro I, quatro perfis verticais.	90
B2	Garimpo Alto doTrigueiro III, cinco perfis verticais.	90
B3	Garimpo Alto Quintos do Meio, quatro perfis verticais.	91
B4	Garimpo Alto dos Mamões, três perfis verticais.	92
B5	Pegmatito Alto doTrigueiro I, Perfil horizontal.	93
B6	Pegmatito Alto doTrigueiro III, Perfil horizontal.	94
B7	Pegmatito Alto doTrigueiro IV, Perfil horizontal.	95
B8	Garimpo Alto doTrigueiro II, quatro perfis subaquáticos.	96
B9	Garimpo Alto Quintos do Meio, três perfis subaquáticos.	96
	C – Tabelas de calibração dos medidores de radiação gama	97
C1	Linearidade do cintilômetro SPP-3 em baixa dose com capa de atenuação.	97
C2	Linearidade do cintilômetro SPP-3 em alta dose com capa de atenuação.	97
	ANEXOS – Trabalhos publicados	98
	A – PRIMEIRO ARTIGO PUBLICADO	98
	B – SEGUNDO ARTIGO PUBLICADO	110

LISTA DE FIGURAS

- Figura 1** – Cristais de coltan em frente de um prisma de berilo (água-marinha) da região de Parelhas (esquerda) e ilustração com imagem de minério de coltan de um internet blogger alertando sobre a origem do minério usado na produção aparelhos eletrônicos (kombizz's moblog, 2013). 3
- Figura 2** – Variação de U/Th em amostras de coltan com quatro *trends* (lotes fiscalizados pela CNEN entre 2000 e 2004, **Tabela A1**, APÊNDICE). 3
- Figura 3** – Mapa de localização da área pegmatítica nos estados de Rio Grande do Norte e Paraíba (Modificado de DNPM/CPRM, 1997) e localização do mapa dentro da Província da Borborema no canto esquerdo superior (fonte: Mapa das províncias geológicas, CPRM, 2013). 4
- Figura 4** – Província da Borborema e os principais domínios e terrenos. Modificado de VAN SCHMUS *et al.*, 2008 6
- Figura 5** – Divisão da porção setentrional da Província Borborema (norte do Lineamento Patos) em terrenos tectono-estratigráficos, segundo Jardim de Sá *et al.* (1997) e Campelo (1999). Fonte: CPRM (2008). 7
- Figura 6** – Reconstrução esquemática do supercontinente paleoproterozoico "Atlântica" mostrando os contornos de África e América do Sul de hoje. N = Domínio norte da Província da Borborema, A = cráton Amazonas, WA = cráton África ocidental, SL = cráton São Luis, SF = cráton São Francisco, CK = cráton Congo/Kasai, RP = cráton Rio da Plata. Modificado de FETTER *et al.* (2000). 9
- Figura 7** – Parte da Gondwana Ocidental, há cerca de 500 Ma, mostrando províncias geológicas inferidas e correlações potenciais entre o Brasil e centro-oeste africano (fonte: VAN SCHMUS *et al.* (2008). 11
- Figura 8** – Reconstrução tectônica pré-mesozoica de partes da África e da América do Sul mostrando as principais províncias cratônicas e Brasileiro/Pan-Africanas. Arco Magmático Neoproterozoico Pré-Mesozoico (fonte: DOS SANTOS *et al.*, 2008). 12
- Figura 9** – Esboço geológico-geotectônico da Província da Borborema e da Faixa Seridó, indicando localização da Província Pegmatítica e a área do trabalho desta tese, incluindo parte da área de estudos dos autores do mapa. Modificado de SILVA & CRÓSTA (2011). 16
- Figura 10** – Estratigrafia do pré-cambriano do sul do Rio Grande do Norte e da parte central da Paraíba (fonte DANTAS & CAÚLA, 1982). 17
- Figura 11** – Localização dos garimpos inspecionados e mapa geológico de parte da Província Pegmatítica da Borborema (fonte SINTEC, 2007). 18
- Figura 12** – Mapa geológico com detalhes dos corpos pegmatíticos na região de Parelhas, com realce para as jazidas com presença de minerais radioativos (vermelho), núcleos populacionais (círculos mostarda), cidade de Parelhas (cinza) e corpos de água e drenagens (azul escuro). Fonte: PETTA *et al.* (2012). Largura da imagem aprox. 25 km. 22
- Figura 13** – Lepidolita com mineral amarelo radioativo (esquerda), Elbaíta de várias cores, nomes comerciais: indicolita, rubelita (direita). 30
- Figura 14** – Amostras ensacadas e identificadas para envio ao laboratório. 32
- Figura 15** – Cintilômetro SPP-3 com cabo de 20 metros e leitura em CPS (esquerda) e Medidor de taxa-de-exposição, Monitor Thyac, leituras em R/h (direita). 34
- Figura 16** – Linearidade do cintilômetro SPP-3 em baixa dose, sem capa de atenuação. $R^2 = 0,970$, Fonte utilizada: Ra-226 (**Tabela C1**, APÊNDICE). 36
- Figura 17** – Linearidade do cintilômetro SPP-3 em alta dose, com capa de atenuação. $R^2 = 0,970$, Fonte utilizada: Ra-226 (**Tabela C2**, APÊNDICE). 36

- Figura 18** – Fluxograma exemplo do método desenvolvido pela Agência Federal de Geociências e Recursos Naturais (BGR). *Fingerprint* de minério africano de coltan das Províncias Kibaran (República Democrática do Congo, DRC), Ruanda e da Província Namaqualand (Namíbia). Notar a grande diversidade de procedimentos analíticos e a necessidade de avaliação final combinada (MELCHER, 2013 e GRAUPNER & MELCHER, 2012). 39
- Figura 19** – Uraninita rica em rádio (^{226}Ra) com capa de alteração de gumita argilosa, Alto do Trigueiro III (A). Gumita argilosa, a partir de coltan, Alto do Trigueiro IV (B). Desagregação feita por garimpeiros. 42
- Figura 20** – Quatro perfis cintilométricos verticais (esquerda, **Tabela B1**, APÊNDICE) nas paredes da banquetta (direita) do garimpo Alto do Trigueiro I. 42
- Figura 21** – Garimpo Alto do Trigueiro III, escavação com nível radioativo e quartzito encaixante demarcados (A) e garimpo Alto dos Mamões (B), sistema de transporte (em caçambas). 44
- Figura 22** – Cinco perfis cintilométricos verticais (**Tabela B2**, APÊNDICE) nas paredes da banquetta do garimpo Alto do Trigueiro III. 44
- Figura 23** – Trigueiro III: Fragmentos minerais recobertos por crostas amarelas radioativas (A). Nível irregular de feldspato, muscovita, coltan, uraninita e “gumita” (B, escala 3 x 3 m). 45
- Figura 24** – Cristais de uraninita associadas a quartzo mórion, K-feldspato e muscovita (A, Alto Quintos do Meio). Inclusão de coltan (com coroa de alteração de gumita) em quartzo mórion associado a albita (B, Trigueiro IV). 47
- Figura 25** – Condições de trabalho inseguras: Garimpo Quintos do Meio (A), Garimpo Alto do Giz (B, E): Falta de EPI e iluminação à vela. C, F Malhada Vermelha, D Trigueiro I. 50
- Figura 26** – Partição de urânio (A) e tório (B) em minério de coltan de Parelhas. Amostras de lotes comerciais fiscalizados pela CNEN (**Tabela A2**, APÊNDICE). 51
- Figura 27** – Razão U/Th (A) e U/Th versus Nb/Ta (B) em minério de coltan de Parelhas. Quatro *trends* magmáticos (B). Amostras de lotes comerciais fiscalizados pela CNEN (**Tabela A2**, APÊNDICE). 52
- Figura 28** – Variação de U/Th dos lotes de minério de coltan estudados anteriormente (em cima) e de amostras de coltan coletadas nos pegmatitos (embaixo). 56
- Figura 29** – Mapa detalhado de pegmatitos Tipo I: Alto da Mata (A) e Alto de Antônio Porfírio (B). 58
- Figura 30** – Variação de U/Th em amostras de coltan de pegmatitos Tipo I (**Tab. A3**, APÊNDICE). 58
- Figura 31** – Mapa detalhado de pegmatitos Tipo II: Alto Malhada Vermelha (A) e Alto da Boa Vista (B). 59
- Figura 32** – Variação de U/Th em amostras de coltan de pegmatitos Tipo II (**Tab. A4**, APÊNDICE). 60
- Figura 33** – Mapa detalhado de pegmatitos Tipo III: Alto Pé da Serra (A) e Alto País da Lua (B). 60
- Figura 34** – Variação de U/Th em amostras de coltan de pegmatitos Tipo III (**Tab. A5**, APÊNDICE). 61
- Figura 35** – Mapa detalhado de pegmatitos Tipo IV: Alto Trigueiro I (A) e Alto Trigueiro III (B). A-B e C-D são linhas de perfil das **Figuras 40 e 41**. 62
- Figura 36** – Variação de U/Th em amostras de coltan de pegmatitos Tipo IV (**Tab. A6**, APÊNDICE). 62
- Figura 37** – Quatro perfis cintilométricos verticais ao longo das paredes da banquetta do garimpo Alto Quintos do Meio (**Tabela B3**, APÊNDICE). 63

Figura 38 – Quatro perfis cintilométricos verticais ao longo das paredes da banquetta do garimpo Alto dos Mamões (Tabela B4 , APÊNDICE). Observe as diferentes escalas dos eixos X (CPS) das Figuras 37 e 38; A escala da Figura 37 é mais de 10 vezes maior do que a da Figura 38.	64
Figura 39 – Núcleo de quartzo remanescente no pegmatito Alto Cabeças (A). A zona de feldspato mineralizada foi removida completamente, quando explorada por gemas, pedras semipreciosas e minério metálico. Escavação inundada no garimpo Alto do Trigueiro II (B , veja o perfil cintilométrico subaquático da Figura 43).	65
Figura 40 – Perfil cintilométrico horizontal através o pegmatito Alto do Trigueiro I (Tabela B5 , APÊNDICE). Linha de perfil A-B veja Figura 35A).	65
Figura 41 – Perfil cintilométrico (taxa de contagem, CPS) horizontal através o pegmatito do garimpo Alto do Trigueiro III (Tabela B6 , APÊNDICE). Linha de perfil C-D veja Figura 35B).	66
Figure 42 – Perfil cintilométrico (taxa de contagem, CPS) horizontal através o pegmatito do garimpo Alto do Trigueiro IV (Tabela B7 , APÊNDICE).	66
Figure 43 – Quatro perfis cintilométricos verticais subaquáticos (taxa de contagem, CPS) no garimpo Alto do Trigueiro II (Tabela B8 , APÊNDICE).	67
Figura 44 – Três perfis cintilométricos verticais subaquáticos (taxa de contagem, CPS) no garimpo Alto Quintos do Meio II (Tabela B9 , APÊNDICE).	67
Figura 45 – Solubilidade do urânio modelada em função do pH da $f\text{CO}_2$. Valores de fugacidade na unidade bar, conversão para Pa multiplica-se por 10^5 (adaptada de YU <i>et al.</i> , 2007).	70
Figura 46 – Variação de U/Th versus $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ em todas as amostras de coltan da região de Parelhas: amostras de coltan de pegmatitos selecionados (●) juntos com o minério de coltan de lotes comerciais (▲) e quatro linhas de tendências. Cada tendência representa um tipo de pegmatito, veja Figuras 28, 30, 32, 34, 36 (e Figura 2 , seção 1.2).	72
Figura 47 – Variação de U/Th em minério de coltan de lotes comerciais com origem dos estados Amapá (■) e Rondônia (◆). Tabelas A7 e A8 , APÊNDICE.	73
Figura 48 – Variação de U/Th nas amostras de coltan dos pegmatitos da região de Parelhas e dos lotes de minério de Parelhas(RN), Amapá (AP) e Rondônia (RO).	74
Figure 49 – Variação de U/Th nas amostras de coltan dos pegmatitos da região de Parelhas e dos lotes de minério de Parelhas (●) e Amapá (■).	74

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 – Minerais importantes de nióbio e tântalo com fórmulas e nomes antigos e/ou brasileiros.	25
Tabela 2 – Minerais de tório e urânio com fórmulas, % Th e U e nomes antigos e/ou brasileiros.	28
Tabela 3 – Radioatividade de minerais encontrados nos garimpos da região de Parelhas.	29
Tabela 4 – Coordenadas geográficas dos garimpos investigados e situação atual, na época.	40
Tabela 5 – Resumo dos dados de campo (mineralogia e radiometria).	41
Tabela 6 – Taxas de exposição no interior da banquetta do garimpo Alto do Trigueiro III.	45
Tabela 7 – Análise de minerais de urânio por difratometria de raios-X.	46
Tabela 8 – Análise qualitativa por fluorescência de raios-X de mineral secundário de urânio.	46
Tabela 9 – Minerais de urânio encontrados nos garimpos em ordem alfabética, fórmulas e aparência.	47
Tabela 10 – Resultados de análise de amostras selecionadas, coletadas de vários garimpos investigados.	48
Tabela 11 – Análises químicas de amostras que ocorrem nas frentes de lavra dos garimpos.	48

LISTA DE SÍMBOLOS E CONVENÇÕES

AP – Estado de Amapá
BKG – *background*
Bq – Bequerel*
C – Coulomb
CDTN – Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear
Ci – Curie*
CNEN – Comissão Nacional de Energia Nuclear
COLAB/CNEN – Coordenação de Laboratórios de Poços de Caldas
CGM – Columbite-Group Minerals (minerais de grupo columbita)
Coltan – nome comercial dos minerais do grupo columbita-tantalita (CGM)
COPPE – Coordenação dos Programas de Pós-Graduação em Engenharia
CPRM – Companhia de Pesquisa e Recursos Minerais
CPS – counts per second
DIFOR/CNEN – Divisão de Fortaleza
DNPM - Departamento Nacional de Produção Mineral
E – Este ou Leste
EPI – Equipamento de proteção individual
ETR – Elementos terras raras
f – fugacidade
GPS – Sistema de Posicionamento global
Gy – Gray*
ICP – Espectrometria de Emissão Atômica por Plasma Acoplado Indutivamente (Inductively Coupled Plasma - Atomic Emission Spectrometry)
Kev – Quilo elétron-volt
LAPOC - Laboratórios de Poços de Caldas
N – Norte
Nb – Nióbio
ONU – Organização das Nações Unidas
P – pressão
Pa – Pascal, unidade da pressão
PB – Estado da Paraíba
Ra – Rádio
rad – Roentgen absorbed doses (dose absorvida)*
rem – Roentgen equivalent man (dose absorvida)*
R/h – Roentgen por hora = taxa de exposição*
RN – Estado do Rio Grande do Norte
RO – Estado de Rondônia
S - Sul
SI – Sistema internacional de unidades
Sv – Sievert*
T – temperatura
Ta – Tântalo
Th – Tório
U – Urânio
UFRJ – Universidade Federal do Rio de Janeiro
W – Oeste

* Veja tabelas “Equivalência e Fatores de Conversão” na página seguinte



(Símbolo internacional da radiação ionizante)

Equivalência e Fatores de Conversão		
1 Curie = $3,7 \times 10^{10}$ desintegrações por segundo		1 Becquerel = 1 desintegração por segundo
1 Millicurie (mCi)	=	37 Megabecquerel (MBq)
1 rad	=	0,01 Gray (Gy)
1 rem	=	0,01 Sievert (Sv)
1 Roentgen (R)	=	0,000258 Coulomb/kg (C/kg)
1 Megabecquerel (MBq)	=	0,027 Millicurie (mCi)
1 Gray (Gy)	=	100 rad
1 Sievert (Sv)	=	100 rem
1 Coulomb/kg (C/kg)	=	3,880 Roentgen

Obs.: 1 MBq = (27 Microcurie); 1 GBq = (27 Millicurie); 37 GBq = (1 Curie); 1 TBq = (27 Curie).

Fatores de Conversão		
Para converter de	para	multiplicar por
Curie (Ci)	Becquerel (Bq)	$3,7 \times 10^{10}$
Millicurie (mCi)	Megabecquerel (MBq)	37
Microcurie (μ Ci)	Megabecquerel (MBq)	0,037
Millirad (mrad)	Milligray (mGy)	0,01
Millirem (mrem)	Microsievert (μ Sv)	10
Milliroentgen (mR)	Microcoulomb/kg (μ C/kg)	0,258
Becquerel (Bq)	Curie (Ci)	$2,7 \times 10^{-11}$
Megabecquerel (MBq)	Millicurie (mCi)	0,027
Megabecquerel (MBq)	Microcurie (μ Ci)	27
Milligray (mGy)	Millirad (mrad)	100
Microsievert (μ Sv)	Millirem (mrem)	0,1
Microcoulomb/kg (μ C/kg)	Milliroentgen (mR)	3,88

Fonte: MEDNUCLEAR (2013).

O Curie (Ci) é uma unidade de radioatividade em desuso. Não pertencente ao SI definida como 1 Ci = $3,7 \cdot 10^{10}$ decaimentos por segundo. Portanto, 1 Ci = $3,7 \cdot 10^{10}$ Bq e 1 Bq = $2,7027 \cdot 10^{-11}$ Ci. 1 Curie é aproximadamente a atividade de um grama do isótopo de rádio ^{226}Ra .

O Roentgen (R) é uma unidade de exposição do antigo sistema dos EUA. Está diretamente relacionado a como vários pares de íons são gerados, quando a radiação gama ou raios-X atravessam o ar. O Roentgen somente se aplica a energias eletromagnéticas como a radiação gama. Não deve ser usado para doses de alfa, beta ou nêutrons. Na realidade, há um fator de conversão para gama do antigo Roentgen para rad. Uma vez que o raio gama é absorvido, essa unidade se converte em rad.

Dependendo da referência, $1 \text{ R} = 0,877 \text{ rad}$ ou $0,87 \text{ rad}$ no ar. O sistema internacional não tem equivalente para Roentgen.

Sievert (Sv) é relacionado a rem. Considerando 1 os fatores de qualidade da radiação e da absorção por seres humanos, para radiação gama, $1 \text{ rad} = 1 \text{ rem}$ e $1 \text{ Gray} = 1 \text{ Sv}$. Como $1 \text{ Roentgen (R)} = 0,877 \text{ rad}$, então, $1 \text{ R} = 0,877 \text{ rem}$ e $1 \text{ R} = 0,00877 \text{ Sv}$. Se considerarmos $10 \mu\text{Curie}$ de Cs-137 a uma distância de 50 cm, tem-se $12,88 \mu\text{R/h}$. Mudando-se a unidade da taxa-de-dose para dose, tem-se $11,30 \mu\text{rem/h}$, que é 87,7 % da taxa-de-exposição, ou seja, é menor do que o valor em $\mu\text{R/h}$. Mudando-se para $\mu\text{Sv/h}$ tem-se $0,113 \mu\text{Sv/h}$, relativo a um fator de 100 para $\mu\text{rem/h}$, diferente do valor em $\mu\text{R/h}$. Note que o fator para tecidos moles é maior, varia de 0,92 a 0,96, dependendo do tecido (USHP, 2013). Na prática, o fator de conversão utilizado é 1 para rem e 100 para o Sievert, o que significa que se comete um erro para mais, o que resulta em maior proteção para as pessoas.

Conforme será explicado na **seção 2.1.2** (Segurança do trabalho), os valores de dose legalmente regulados não se aplicam a atividades como a garimpeira. Mesmo assim, apenas a título de comparação, os limites de dose para trabalhadores da indústria nuclear e para indivíduos do público são apresentados a seguir para permitir uma comparação entre estes e os valores observados nessas lavras, conforme o disposto no item "5.4.2.1 da norma Diretrizes Básicas de Proteção Radiológica, CNEN-NN-3.01/2011, transcrito a seguir.

"5.4.2.1 **A exposição normal** dos indivíduos deve ser restringida de tal modo que nem a *dose efetiva* nem a *dose equivalente* nos órgãos ou tecidos de interesse, causadas pela possível combinação de *exposições* originadas por *práticas* autorizadas, excedam o limite de *dose* especificado na tabela a seguir, salvo em circunstâncias especiais, autorizadas pela CNEN. Esses limites de *dose* não se aplicam às *exposições médicas*.

Limites de Dose Anuais [a]			
Grandeza	Órgão	Indivíduo ocupacionalmente exposto	Indivíduo do público
Dose efetiva	Corpo inteiro	20 mSv [b]	1 mSv [c]
Dose equivalente	Cristalino	20 mSv [b] (Alterado pela Resolução CNEN 114/2011)	15 mSv
	Pele [d]	500 mSv	50 mSv
	Mãos e pés	500 mSv	---

[a] Para fins de controle administrativo efetuado pela CNEN, o termo *dose anual* deve ser considerado como dose no ano calendário, isto é, no período decorrente de janeiro a dezembro de cada ano.

[b] Média aritmética em 5 anos consecutivos, desde que não exceda 50 mSv em qualquer ano. (Alterado pela Resolução CNEN 114/2011)

[c] Em circunstâncias especiais, a CNEN poderá autorizar um valor de dose efetiva de até 5 mSv em um ano, desde que a dose efetiva média em um período de 5 anos consecutivos, não exceda a 1 mSv por ano.

[d] Valor médio em 1 cm^2 de área, na região mais irradiada."

Os valores de *dose efetiva* se aplicam à soma das *doses efetivas*, causadas por *exposições* externas, com as *doses efetivas comprometidas* (integradas em 50 anos para adultos e até a idade de 70 anos para crianças), causadas por incorporações ocorridas no mesmo ano.

1 INTRODUÇÃO

1.1 OBJETIVOS

O objetivo principal desta pesquisa foi encontrar uma assinatura geoquímica que permitisse identificar as rochas fonte do minério radioativo de columbita-tantalita (coltan) procedente da Província Pegmatítica da Borborema na região de Parelhas/RN. O método deveria ser eficiente, barato e com base em procedimentos analíticos regularmente utilizados pela Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN), que, nos lotes de coltan, somente analisa urânio (U), tório (Th), nióbio (Nb) e tântalo (Ta).

Outro objetivo foi averiguar o impacto ambiental da radiação gama dos minerais radioativos e os possíveis riscos para os trabalhadores nas minas/garimpos da região.

1.2 DESCRIÇÃO DO PROBLEMA E ÁREA DE TRABALHO

A CNEN fiscaliza a produção e o comércio de minérios de urânio e tório, e minérios, concentrados, produtos e subprodutos que contenham elementos de interesse para a energia nuclear: Li, Be, Nb e Zr. A inspeção de lotes de minério de coltan oriundos de Parelhas, exportados entre os anos de 2000 e 2004, detectou teores de U_3O_8 maiores do que 0,2 % em 15 lotes e, em cinco, maiores que 0,5 %, com um máximo de 2,64 % (26.400 ppm) (**Tabela A1, APÊNDICE**). Esses valores caracterizam uma ocorrência de pegmatitos-fonte radiometricamente anômalos, haja vista que o minério de urânio da única mina brasileira em atividade, a mina Cachoeira, no município de Caetité, na Bahia, tem teor médio de 2.000 ppm.

Coltan é o principal minério de Nb e Ta, que hoje em dia são importantes elementos químicos utilizados em dispositivos eletrônicos como telefones móveis e também têm amplo uso na indústria nuclear. Nesta tese, optamos por utilizar o nome coltan, usado no comércio de minério de tântalo e nióbio, principalmente de columbita-tantalita (**Figura 1**), uma vez que esta pesquisa trata, em parte, de minério comercializado e, eventualmente, de composição impura. Coltan é, quase sempre, radioativa devido ao conteúdo de urânio e tório.

O termo mineralógico é “minerais do grupo columbita” (*columbite-group minerals*, CGM, na literatura anglicana), fórmula geral $(\text{Fe,Mn})(\text{Nb,Ta})_2\text{O}_6$. A columbita é nomeada pelo seu conteúdo do elemento nióbio, antigamente chamado colúmbio (Cb), e a tantalita, por seu conteúdo do elemento tântalo (ANTHONY et al., 2013). Para maiores informações acerca da mineralogia, veja item 1.5.2.

Sem um método eficaz para caracterizar o minério de coltan de diferentes locais, é impossível controlar seu comércio. A lei brasileira não permite o transporte de material radioativo sem uma permissão especial da CNEN. O transporte onde a carga contenha materiais radioativos com atividade específica superior a 70 kBq/kg será considerado um transporte de material perigoso Categoria 7. Todo transporte de material perigoso é regulamentado por leis específicas do Ministério do Transporte e para os casos de Categoria 7 compete à CNEN regulamentar e fiscalizar tais transportes (CNEN, 1988).

Além disso, embora possa ser outro o lugar da fiscalização procedida pela CNEN, o minério comercializado deveria ser declarado ao Departamento Nacional de Produção Mineral (DNPM) no município onde é produzido, pois isto tem reflexos na política fiscal. Mas, dada a natureza da exploração, normalmente realizada em garimpos, isso nem sempre acontece, ocasionando perda de impostos ao município e ao estado produtor. Assim, a verdadeira origem da coltan pode permanecer desconhecida. O minério pode vir de outra região, de outro estado e mesmo de outros países (contrabando).

Na África, o comércio ilegal de coltan tornou-se um grande problema. Até mesmo o Conselho de Segurança das Nações Unidas recomendou o desenvolvimento de um sistema de rastreabilidade capaz de determinar a origem do minério das “coltan de sangue” (**Figura 1 direita**) (MELCHER et al., 2008, 2009). Estes e outros autores estudaram muitas amostras oriundas da África e do mundo e apresentaram assinaturas químicas (*analytical fingerprints*) para o minério de coltan, mas com esforços analíticos caros e demorados (GRAUPNER et al., 2010; GRAUPNER & MELCHER, 2012).



Figura 1 – Cristais de coltan em frente de um prisma de berilo (água-marinha) da região de Parelhas (esquerda) e ilustração com imagem de minério de coltan de um internet blogger alertando sobre a origem do minério usado na produção aparelhos eletrônicos (kombizz's moblog, 2013).

A modelagem de análises químicas de U, Th, Nb e Ta de lotes comerciais de coltan (COSTA-DE-MOURA, 2009) e de algumas amostras coletadas de pegmatitos da região de Parelhas (COSTA-DE-MOURA *et al.*, 2005) indicou quatro tendências geoquímicas ao se plotarem as relações desses elementos em um diagrama de variação (**Figura 2**), eventualmente correspondentes aos quatro tipos diferentes de pegmatitos-fonte conhecidos na região (ARGAWAL, 1992).

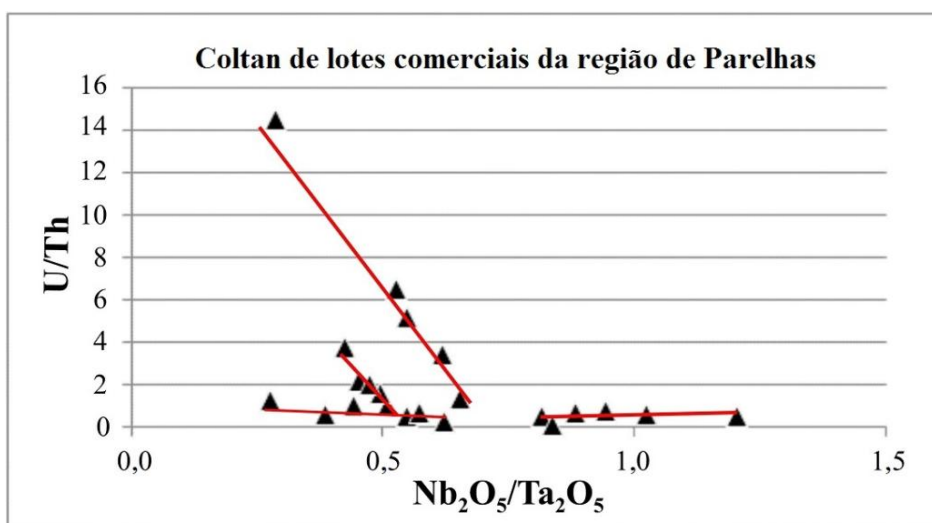


Figura 2 – Variação de U/Th em amostras de coltan com quatro trends (lotes fiscalizados pela CNEN entre 2000 e 2004, *Tabela A1*, APÊNDICE).

DNPM/CPRM (1997) e ARGAWAL (1986 e 1992) descrevem quatro tipos de pegmatitos estruturalmente diferentes na Província Pegmatítica da Borborema (veja item 1.4.1). Para verificar se as quatro tendências geoquímicas do minério de coltan estariam associadas a esses quatro tipos de pegmatitos, o estudo foi então estendido a pegmatitos da região selecionados pela estrutura e ao comportamento geoquímico de U, Th, Nb e Ta de suas amostras de coltan.

A radiação gama desses lotes de minério de coltan também foi medida e indicou um possível risco ambiental. Portanto, outro objetivo foi determinar o impacto ambiental dos minerais radioativos nas minas (garimpos) e na superfície dos pegmatitos.

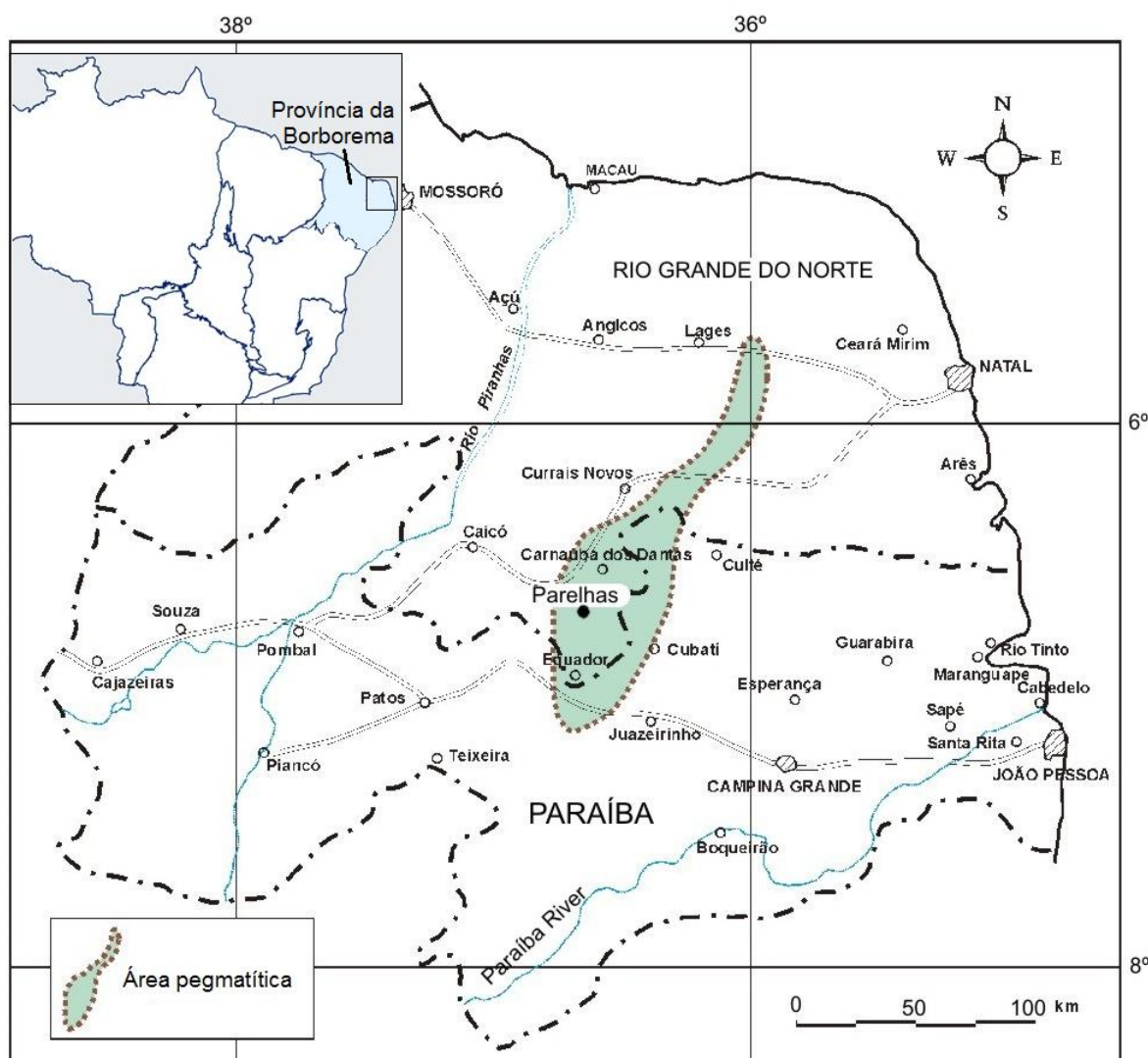


Figura 3 – Mapa de localização da área pegmatítica nos estados de Rio Grande do Norte e Paraíba (Modificado de DNPM/CPRM, 1997) e localização do mapa dentro da Província da Borborema no canto esquerdo superior (fonte: Mapa das províncias geológicas, CPRM, 2013).

A área de ocorrência de pegmatitos compreende a borda ocidental do planalto da Borborema e a região fisiográfica do Seridó. A área do trabalho abrange vários municípios na Paraíba (PB), enquanto no Rio Grande do Norte (RN), circunscreve os municípios de Equador, Santana, Jardim do Seridó, Acarí, Carnaúba dos Dantas e Parelhas. Outra área com uma densidade expressiva de pegmatitos fica a leste da cidade de Currais Novos – RN, com direção NNE-SSW (**Figura 3**).

Os pegmatitos estudados nesta tese se encontram delimitados por um polígono de lados definidos pelos pontos de coordenadas de Latitude 06° 27' 22,3" S e longitude 36° 27' 22,3" W, e Latitude 06° 54' 51,9" S e longitude 36° 43' 40,0" W, abrangendo os estados do Rio Grande do Norte e da Paraíba, no entorno do município de Parelhas/RN.

1.3 GEOLOGIA REGIONAL - PROVÍNCIA DA BORBOREMA

A área pegmatítica nos estados Rio Grande do Norte e Paraíba pertence geotectonicamente ao domínio norte da Província da Borborema (ALMEIDA *et al.*, 1981) a norte do cráton São Francisco (**Figura 4**).

A Província da Borborema é dividida em vários cinturões-dobrados (faixas), domínios, maciços ou terrenos. Característico é o mosaico de faixas dobradas e maciços granítico-gnássico-migmatíticos com estruturação geral em forma de leque de direção geral N-NE, resultante da colagem de terrenos neoproterozóicos durante o evento orogênico Brasileiro/Pan-africano (SILVA *et al.*, 2010). DOS SANTOS *et al.* (2008) chamam a área norte do Lineamento Patos de Domínio Rio Grande do Norte (DRGN), onde se encontra a Faixa Seridó, lugar da Província Pegmatítica da Borborema e da área do trabalho (**Figura 4**).

Segundo SILVA *et al.* (2010), a estruturação geral, realçada por extensas zonas de cisalhamento regionais, contribui para dividir a província em vários domínios e subdomínios geológicos em função das características litoestruturais e geocronológicas, destacando-se dentre eles a Faixa Seridó (FSe, Seridó Fold Belt, **Figura 4**).

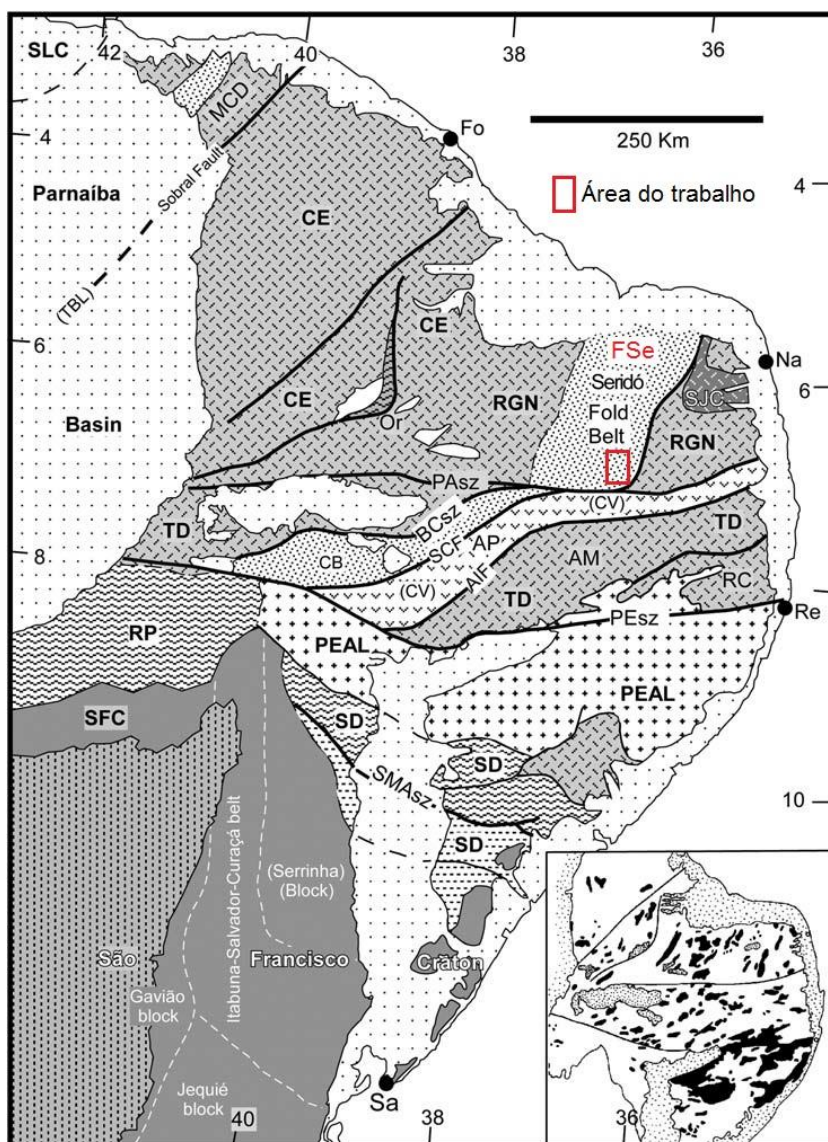


Figura 4 – Província da Borborema e os principais domínios e terrenos: CE, domínio Ceará MCD, domínio Médio Coreaú; PEAL, domínio Pernambuco Alagoas; RGN, domínio Rio Grande do Norte, (SJC, São José do Campestre núcleo archaeano); RP, domínio Riacho do Pontal; SD, domínio Sergipano; SFC, cráton São Francisco; SLC, cráton São Luís; TD, domínio Transverso (AP, terreno Alto Pajeu; AM, terreno Alto Moxoto; CB, faixa Cachoerinha; CV, Cariris Velhos faixa orogênica; RC, terreno Rio Capibaribe). Falhas e zonas de cisalhamento: AIF, falha de Afogados do Ingraçzeira; BCsz, zona de cisalhamento Boqueirão dos Conchos; PAsz, zona de cisalhamento Patos; PEsz, zona de cisalhamento Pernambuco; SCF, falha de Serra do Caboclo; SMAsz, zona de cisalhamento São Miguel do Aleixo; TBL, Lineamento Transbrasiliano. Municípios: Fo, Fortaleza; Na, Natal; Re, Recife. Inserção: distribuição geral de granitos Brasileiros; localização da área do trabalho na Faixa Seridó (FSe). Modificado de VAN SCHMUS *et al.*, 2008.

VAN SCHMUS *et al.* (2008) dividiram e agruparam a província em seis regiões principais sob a terminologia de Domínios (**Figura 4**) e nomeou-as: Domínio Sergipano; Domínio Pernambuco-Alagoas; Domínio Riacho do Pontal, no lado oeste do domínio Pernambuco-Alagoas; Domínio Transverso; Domínio Rio Grande do Norte, Domínio Ceará e Domínio Médio Coreaú. A área de estudo da presente tese se encontra no Domínio Rio Grande do Norte (DRGN) na Faixa Seridó (DOS SANTOS *et al.*, 2004; DOS SANTOS *et al.*, 2008, VAN SCHMUS *et al.*, 2008).

Essa área se encontra a norte do Lineamento Patos, no Terreno Seridó (TSD, **Figura 4 e 5**), na Faixa Seridó (FSe), numa região que corresponde à maior, mais diversificada e mais complexa arquitetura crustal nessa região (DOS SANTOS *et al.*, 2008).

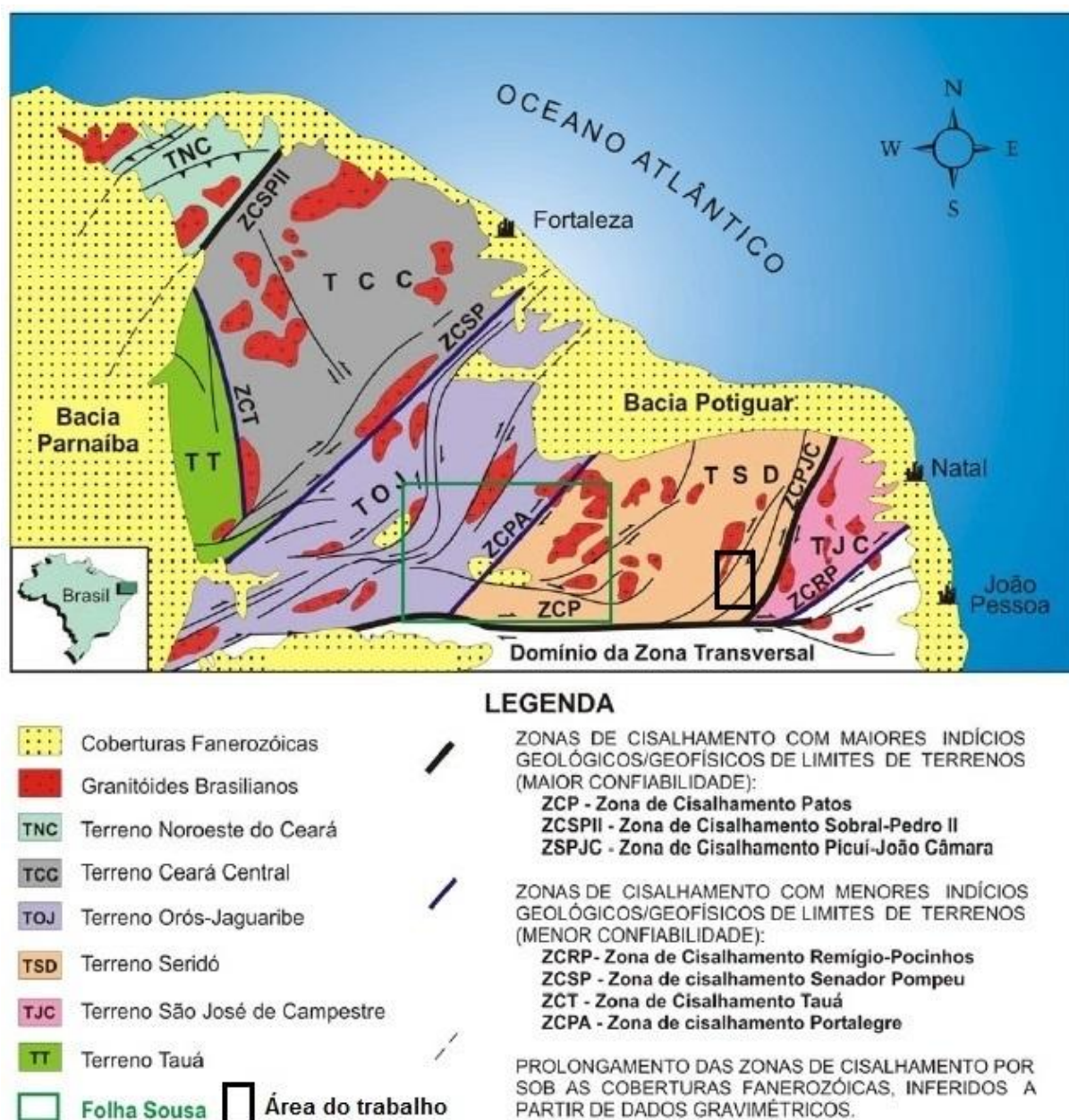


Figura 5 – Divisão da porção setentrional da Província Borborema (norte do Lineamento Patos) em terrenos tectono-estratigráficos, segundo Jardim de Sá et al. (1997) e Campelo (1999). Fonte: CPRM (2008).

Estudos isotópicos com Sm-Nd e geocronologia U-Pb das rochas do embasamento no Domínio Tectônico Norte permitiram identificar três blocos crustais diferentes: Rio Grande do Norte, Ceará central e Médio Coreau (ou cinturão Ceará NW), cujos limites são marcados pelos lineamentos Senador Pompeu e Transbrasiliiano, respectivamente. Utilizando o modelo de terrenos tectono-estratigráficos (alóctones) SANTOS (1996 e 2000) e SANTOS *et al.* (1999) compartimentaram a Província Borborema em domínios (ou super-terrenos) e terrenos (Figura 5).

A região é bastante mineralizada com destaque para a produção de gemas coradas e para a Província Pegmatítica e a Província Scheelitífera no estado do Rio Grande do Norte, e para o colofanito uranífero de Itataia, Santa Quitéria, no Ceará, hoje a maior jazida de urânio do Brasil.

Segundo ALMEIDA *et al.* (2009), a Província da Borborema é o resultado de acreção e colagem de terrenos em diversos eventos tectônicos. Durante o Ciclo Transamazônico (2,35 - 2,0 Ga) teria ocorrido colagem dos núcleos arqueanos pré-existentes e extensiva produção crustal. Para estes autores, há duas principais correntes de estudos acerca da Província da Borborema. A primeira linha de pensamento define que o Ciclo Cariris Velhos (1,1 - 0,93 Ga) foi marcado pela amalgamação de diversos blocos decorrentes da fragmentação do supercontinente gerado no Transamazônico. No Ciclo Brasileiro/Pan-Africano ocorreu a formação de extensos cinturões colisionais na Província da Borborema, parte centro-oeste da Gondwana Ocidental, resultado de convergência e colagem decorrentes de fragmentação ocorrida no final do Ciclo Cariris Velhos. Já a outra corrente aponta que a Província da Borborema já consistia em um único bloco no final do Transamazônico e atingiu características cratônicas após esse evento, e que associações supracrustais neoproterozoicas foram depositadas em ambientes plataformais e epicontinentais, o que sugere que a orogênese Brasileira se processou em um ambiente intracontinental.

Segundo BRITO NEVES *et al.* (1995a), o embasamento da Província da Borborema (PB) parece ter sido majoritariamente consolidado no paleoproterozoico, nos períodos riaciano e orosiriano, e suas faixas móveis aglutinam, circunscrevem e retrabalham os poucos núcleos arqueanos. A era paleoproterozoica é subdividida em quatro períodos: sideriano, riaciano, orosiriano e estateriano, da base para o topo. O período riaciano se estende de 2,3 a 2,05 Ga. No riaciano ocorreu uma série de colisões entre placas tectônicas que comprimiram as bacias sedimentares geradas no período sideriano, e promoveu orogênias. Essas orogênias ocorreram em praticamente todos os continentes, como por exemplo, as orogênias hudsoniana e penokeana, na América do Norte, a svecokarelina, no escudo báltico, a eburneana, na África, e a transamazônica, na América do Sul. No Brasil, o evento transamazônico durou de 2,2 a 1,8 Ga e afetou rochas de diversas regiões do país.

BRITO NEVES *et al.* (1995 b) e BRITO NEVES & SATO (1998) alertam que, por vezes, o termo transamazônico é empregado de maneira generalista, englobando unidades que

nem sempre estão relacionadas a ele. Faixas dessa idade são, por exemplo, o Maciço Granja, na região sul da PB, com idade de 2,3 Ga, e o Maciço Caldas Brandão, na região nordeste, com idade de 2,15 Ga. O Período orosiriano (do grego orosira = cadeia de montanhas) se estende de 2,05 a 1,8 Ga. Este período é caracterizado como um dos mais significativos períodos de formação de montanhas da história da Terra.

As orogenias iniciadas no riaciano terminam sua evolução e várias outras são iniciadas, continuando um grande ciclo de colagem de placas. No final do orosiriano, essas colagens resultaram em dois grandes continentes: Ártica, constituída por América do Norte, Groenlândia e Sibéria, e Atlântica, constituída por América do Sul e África ocidental (ROGERS, 1996 e FETTER *et al.* 2000).

A Pangea parece ter sido formada por três continentes existentes no pré-cambriano e que permaneceram intactos até o rifteamento mesozoico: Ur, 3 Ga, Ártica, 2,5 - 2 Ga, e Atlântica, 2 Ga. Ur amalgamou com Antártica Ocidental no meio do proterozoico e formou a Gondwana Ocidental; Ártica, Antártica e Báltica juntas formaram o continente de Nena a 1,5 Ga. A colisão de Nena, Ur e Atlântica (**Figura 6**), e outras placas menores, formou o supercontinente Rodínia a aproximadamente 1 Ga.

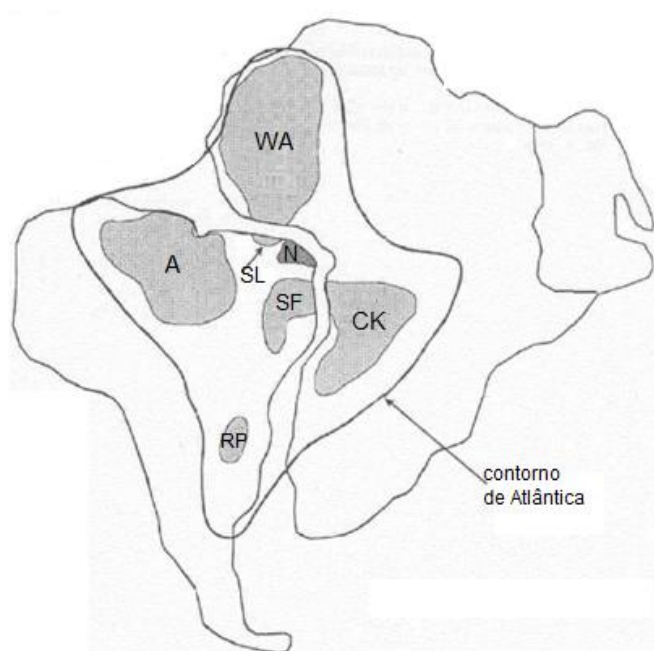


Fig. 6 - Reconstrução esquemática do supercontinente paleoproterozoico "Atlântica" mostrando os contornos de África e América do Sul de hoje. N = Domínio norte da Província da Borborema, A = Cráton Amazonas, WA = cráton África ocidental, SL = cráton São Luis, SF = cráton São Francisco, CK = cráton Congo/Kasai, RP = cráton Rio da Plata. Modificado de ROGERS (1996) e FETTER *et al.* (2000).

O rifteamento da Rodínia, entre 1 e 0,5 Ga, formou a Gondwana Ocidental, a Atlântica (**Figura 6**) (que depois vai ser o núcleo da Gondwana Oriental) e Laurásia (união de América do Norte, Groenlândia, Báltica e Sibéria). A Gondwana se formou a aproximadamente 0,5 Ga pela junção das partes ocidental e oriental. Várias placas acresceram à Laurásia durante o paleozoico, e a colisão da Gondwana com a Laurásia criou a Pangea a aproximadamente 0,3 Ga. O entendimento do crescimento e evolução desses blocos do embasamento é importante para a reconstrução da história pre-colisional da Província Borborema e da Gondwana Oriental (ROGERS, 1996).

A abertura do oceano atlântico no mesozoico levou ao desmembramento da Pangea (e da Gondwana Ocidental) com a consequente individualização da América do Sul e da África, continentes nos quais foi preservada parte do cinturão de dobramentos Brasileiro/Pan-Africano. Para ARTHAUD *et al.* (2008), a Província da Borborema foi construída durante a orogenia Brasileiro/Pan-Africano, como resultado de convergência e colisão final dos crátons São Luís-África Ocidental e São Francisco num contexto de amalgamação da Gondwana Ocidental. O atual arcabouço estrutural da província data do final da orogenia do Brasileiro/Pan-Africano e forma um mosaico de domínios independentes justapostos ao longo de extensas zonas de cisalhamento com colagens de escala continental.

Segundo DADA *et al.* (2008), as semelhanças estruturais entre os terrenos Pré-Cambrianos expostos, na Nigéria, e na Província da Borborema, no Nordeste do Brasil, foram reconhecidas desde muito tempo (TORQUATO & CORDANI, 1981). As características estruturais dominantes do embasamento da Nigéria-Borborema são nítidas em estudos nos cinturões-xistosos e, conclusivamente, mostram que tais estruturas foram desenvolvidas durante a sequência orogênica Pan-Africana/Brasileira. Estruturas pré-existentes foram sobrepostas ou obliteradas. Esses autores descrevem ainda que recentes dados isotópicos, dados gravimétricos e análise estrutural confirmaram a natureza alóctone dos terrenos supracrustais que foram soldados juntos e presumivelmente contíguos ao Maciço Hoggar na porção norte, e à Província da Borborema na porção sul. Suturas ao longo de duas zonas de falhas transcorrentes foram propostas, em particular no cinturão xistoso Ife-Ilesha, situado no sudoeste da Nigéria, o qual foi interpretado como uma bacia marginal de *back-arc*.

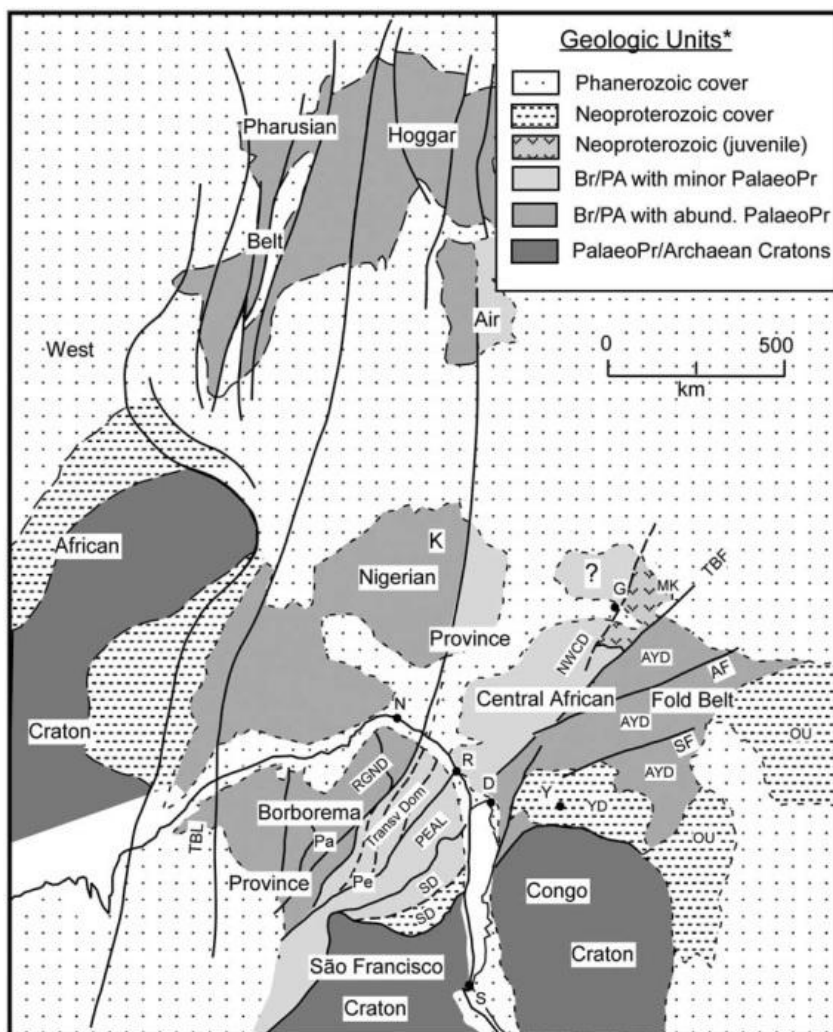


Figura 7 – Parte da Gondwana Ocidental, há cerca de 500 Ma, mostrando províncias geológicas inferidas e correlações potenciais entre o Brasil e centro-oeste africano. Legenda: Br/PA, domínios orogênicos Brasileiros/Pan-Africanos; PaleoPr, Crosta Paleoproterozoica. Principais domínios e regiões utilizados no artigo. AYD, domínio Adamawa-Yadé; MK, terreno Mayo Kebi; NWCD, domínio Camarões-Noroeste; OU, cinturão dobrado Oubanguide; PEAL, domínio Pernambuco-Alagoas; RGND, domínio Rio Grande do Norte; SD, domínio Sergipano; Transv. Dom., domínio Transverso; YD, domínio Yaoundé. Falhas e zonas de cisalhamento; AF, Falha Adamawa; Pa, zona da falha Patos; Pe, zona de falha de Pernambuco; SF, falha Sanaga; TBF, falha Tchollire – Banyo; TBL, Lineamento Transbrasiliano. Cidades: D, Douala; G, Garoua; K, Kaduna, área da Nigéria; R, Recife; N, Natal; S, Salvador; Y, Yaoundé (Fonte VAN SCHMUS *et al.*, 2008).

Os crátons Congo e São Francisco estavam juntos por volta de 2,05 Ga. Em seguida, a parte norte do embasamento paleoproterozoico foi submetida a regime extensional, por volta de 1 Ga, formando bacias intracratônicas. Rochas metassedimentares neoproterozoicas nessas bacias forneceram zircões detríticos que foram datados em 630 Ma (VAN SCHMUS *et al.*, 2008).

A arquitetura crustal geral das províncias Brasileiro/Pan-Africanas é caracterizada por grandes ocorrências de gnaisses e migmatitos paleoproterozoicos que envolvem vários núcleos menores de crosta arqueana. Esse embasamento gnáissico é recoberto por remanescentes de rochas supracrustais paleoproterozoicas a neoproterozoicas, todas essas intrudidas por granitoides neoproterozoicos e cortadas por uma rede de zonas de cisalhamento anastomosadas. Algumas dessas zonas de cisalhamento representam ajustes estruturais locais de blocos crustais, enquanto outras são lineamentos tectônicos principais que margeiam

domínios crustais e se estendem através das províncias gondwânicas (**Figura 8**). Esses lineamentos são particularmente úteis na correlação de domínios geológicos da África e da América do Sul. Por exemplo, com base em reconstrução pré-rift da África e da América do Sul, os autores afirmam que os domínios nordestinos de Médio Coreaú e Ceará Central correspondem ao migmatito de Accra Plains e ao gnaiss Dzodze, no cinturão de Daomé na África. E, também, que o limite entre os domínios Médio Coreaú e Ceará Central é marcado pelo Lineamento Transbrasiliano, e este pode ser correlacionado com a falha Kandi na África (DOS SANTOS *et al.*, 2008).

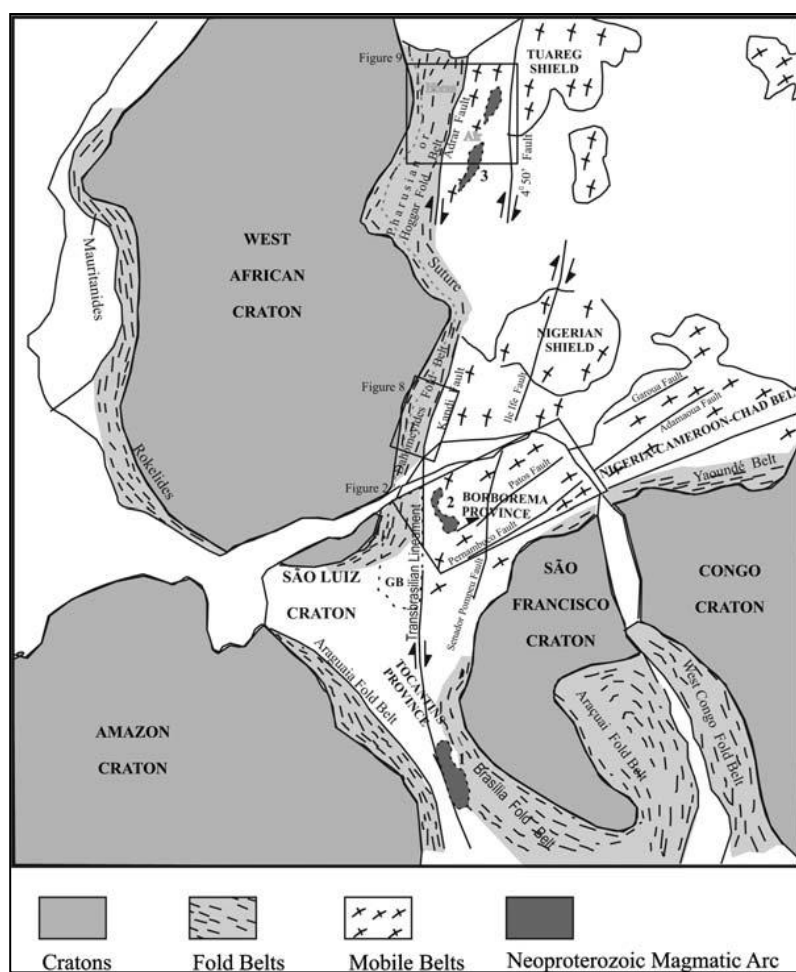


Figura 8 - Reconstrução tectônica pré-mesozoica de partes da África e da América do Sul mostrando as principais províncias cratônicas e Brasiliano/Pan-Africanas. Arco Magmático Neoproterozoico Pré-Mesozoico: 1, Goiás; 2, Santa Quitéria; 3, Arco de Batólitos do Terreno Pharusiano; GB, Bloco Granja (fonte DOS SANTOS *et al.*, 2008).

A principal unidade do embasamento do Domínio Médio Coreaú é o Complexo Granja, formado por fácies metamórficas de alto grau, granulito – alto anfibolito, principalmente constituídos de ortognaisses com afinidades tonalito-trondhjemitó-granodiorito, assim como com anfibolito gnaisses, anfibolitos, leucogranitos, granulitos máficos e enderbitos, kondalitos, kinzigitos e migmatitos (DOS SANTOS *et al.*, 2008).

Resultados obtidos por DOS SANTOS *et al.* (2008), a partir de datação U-Pb e Sm-Nd dessas rochas denotam que todos os principais gnaisses são do paleoproterozoico inicial, 2,36 – 2,29 Ga. Essa datação é reforçada por resultados de U-Pb em zircões (2.288 ± 2 Ma), obtidas em zircão e titanita de tonalito gnaiss do Complexo Granja. Análises de Nd de gnaisses do Complexo Granja denotam idades de residência crustal entre 2,61 e 2,38 Ga. As análises de Nd também representam um crescimento crustal juvenil e indicam gênese em um ambiente tipo-arco. Essa variação na idade é única, porque não pertence ao clássico evento Transamazônico-Eburniano (ca. de 1,9 Ga), e também, porque representa um período no qual muito pouco crescimento crustal tem sido amplamente relatado. (**Figura 8**).

A Faixa Seridó (**Figura 4**) compreende uma sequência metavulcanossedimentar, de idade neoproterozoica, o Grupo Seridó, repousando discordantemente sobre um embasamento gnáissico-granítico-migmatítico paleoproterozoico (Complexo Caicó) e migmatitos arqueanos. O Complexo Caicó reúne ortognaisses tonalíticos-granodioríticos, ortognaisses maciços e migmatitos, com intercalações de metamáficas e metaultramáficas, de formações ferríferas bandadas (BIFs) e mármore, interpretadas como suítes magmáticas de arco magmático transamazônico com idades entre 2,3 e 2,15 Ga (CPRM, 2008).

No âmbito das rochas graníticas, CPRM (2008) adotou quatro tipos principais de granitos, denominados de GR-1 a GR-4. O tipo GR-3 tem características geoquímicas de granitos do tipo S, peraluminosos, ocorrendo na forma de pequenos *stocks*, *sills* e diques, com texturas variando de granulação média a pegmatítica, as quais são utilizadas como critério na diferenciação das fácies GR-3a e GR-3b. A fácies GR-3a é representada por granitos e granodioritos de granulação média, e a fácies GR-3b é similar a granitos férteis com textura grossa a pegmatítica, com fenocristais de microclíneo perítico, intercrescimento gráfico, além de granada e turmalina entre os acessórios mais comuns.

Ainda segundo CPRM (2008), foram determinadas as idades de 570 Ma para os granitos G3, e de 528 ± 12 Ma para os granitos pegmatíticos do tipo GR3, o que indicaria um lapso de tempo excessivamente longo entre os processos de formação dessas rochas e dos pegmatitos mineralizados ($509 \pm 2,9$ Ma e $515 \pm 1,1$ Ma). Para esse autor, este fato inviabilizaria a interpretação de que estes granitos seriam a rocha fonte dos pegmatitos mineralizados.

CPRM (2008) assevera que não há registro de uma intrusão granítica única, volumetricamente suficiente para justificar sua interpretação como fonte dos pegmatitos mineralizados, e, que a ocorrência de numerosas intrusões de granito pegmatítico e sua alta frequência no terreno, fazem supor que a Província Pegmatítica da Borborema é constituída por pequenos campos de pegmatitos, cada qual com a sua própria fonte de material e distribuição zonal, e com sobreposição em muitos locais. Complementa que novas datações de granitos pegmatíticos (granito Picuí), com idades U-Th-Pb de 520 ± 10 Ma, ainda estariam de acordo com uma relação genética e cronológica destes granitos pegmatíticos (GR3) com os pegmatitos mineralizados.

Acerca da geologia estrutural e tectônica da região, CPRM (2008) descreve que as principais feições estruturais observadas na região da folha Sousa (**Figura 5**) são as zonas de cisalhamento transcorrentes dextrais de Malta, Portalegre, Jaguaribe e Orós, as quais seriam consensualmente atribuídas na literatura como associadas à deformação transcorrente Brasileira (D3). Relata ainda que efeitos de um evento pré-transcorrente (D2) são mais difíceis de serem caracterizados, em função do retrabalhamento D3, mas que, entretanto, em alguns locais a existência é evidenciada. Afirmar ainda que um evento mais antigo (D1), e de caracterização ainda mais precária, ocorre exclusivamente em litotipos do embasamento paleoproterozoico ou mais antigo. Finalmente, que, além destes, também são observadas estruturas frágeis, responsáveis pela formação das bacias mesozoicas da região. Afirmar ainda que essas deformações são resultantes de eventos pré-cambrianos associados a cisalhamentos dúcteis e que o evento D1 decorre de deformação paleoproterozoica, que o evento D2 configura pré-transcorrências Brasileiras, e que o evento D3 é resultante de transcorrências Brasileiras. Por derradeiro, descreve que eventos mesozoicos caracterizados por cisalhamentos rúpteis ocorridos a partir do jurássico e culminando no cretáceo superior, quando ocorreu o evento de abertura do Oceano Atlântico e consequente separação dos continentes Sul-Americano e Africano, ocasionaram vários cisalhamentos frágeis (principalmente extensionais) responsáveis por subsidência em locais que favoreceram a formação de bacias sedimentares nestas áreas. Alguns destes cisalhamentos aproveitaram descontinuidades existentes desde o pré-cambriano, como no caso de segmentos das zonas de cisalhamento de Malta, Portalegre e Jaguaribe, que foram reativadas em regime frágil no mesozoico, mas, essencialmente, no cretáceo superior.

Finalmente, SILVA & CRÓSTA (2011) afirmam que são reconhecidas quatro fases de deformação dúctil a dúctil-rúptil, sendo uma fase restrita ao embasamento gnássico-migmatítico e as demais às rochas supracrustais.

1.4 GEOLOGIA LOCAL – PROVÍNCIA PEGMATÍTICA DA BORBOREMA

A geologia da região de ocorrência dos pegmatitos estudados, Província Pegmatítica da Borborema (PPB, **Figura 9**), está relacionada aos eventos Brasileiro e Pan-Africano, decorrentes da supra descrita aglutinação da Gondwana Ocidental e do posterior desmembramento do supercontinente Pangea (DOS SANTOS *et al.*, 2008). Segundo estes autores, investigações geológicas, tanto na região brasileira como na costa ocidental da África, denotam que esta região, outrora unida, foi tectonizada durante esse evento termotectônico datado em cerca de 600 Ma, tendo gerado, no lado brasileiro, a Província da Borborema, que reputam ser um dos principais domínios para entendimento da evolução da Gondwana Ocidental. Ainda, segundo esses autores, essa província se desenvolveu como resultado da convergência do cráton Africano-Ocidental-São Luís e do Cráton São Francisco, durante a amalgamação da Gondwana Ocidental.

A localização da PPB coincide em grande parte com a Faixa Seridó (**Figura 9**). Ela tem como embasamento cristalino as rochas do Complexo Caicó, representadas por metassedimentos, migmatitos e ortognaisses granodioríticos, tonalíticos e graníticos, com idades arqueanas a paleoproterozoicas (BEURLIN *et al.*, 2002; CPRM, 2008; SILVA & CRÓSTA, 2011). As rochas supracrustais da FSe estão reunidas no Grupo Seridó (**Figura 10**), com idade de deposição entre 650 - 610 Ma e deformação no Ciclo Brasileiro (600 Ma). São rochas submetidas a metamorfismo variando da fácies xisto verde a anfibolito alto.

O **Grupo Seridó** reúne uma unidade litoestratigráfica basal com biotita-epidoto-anfibólio-paragnaisses denominada Formação Jucurutu (paragnaisses a biotita, epidoto e anfibólio, mármore e cálcio-silicáticas), uma unidade intermediária denominada Formação Equador (quartzitos puros, micáceos ou feldspáticos, com intercalação de metaconglomerados e metagrauvacas) e uma unidade superior predominantemente metapelítica denominada Formação Seridó (biotita xistos com intercalações de mármore, anfibolitos e cálcio-silicáticas), **Figuras 9 e 10**.

Geneticamente, trata-se de rochas de natureza plataformar marinha e turbidítica profunda, submetidas a metamorfismo na fácies xisto verde a anfibolito, num regime de pressões intermediárias e intrudidas por granitos sin a tãrdi-tectônicos (CPRM, 2008).

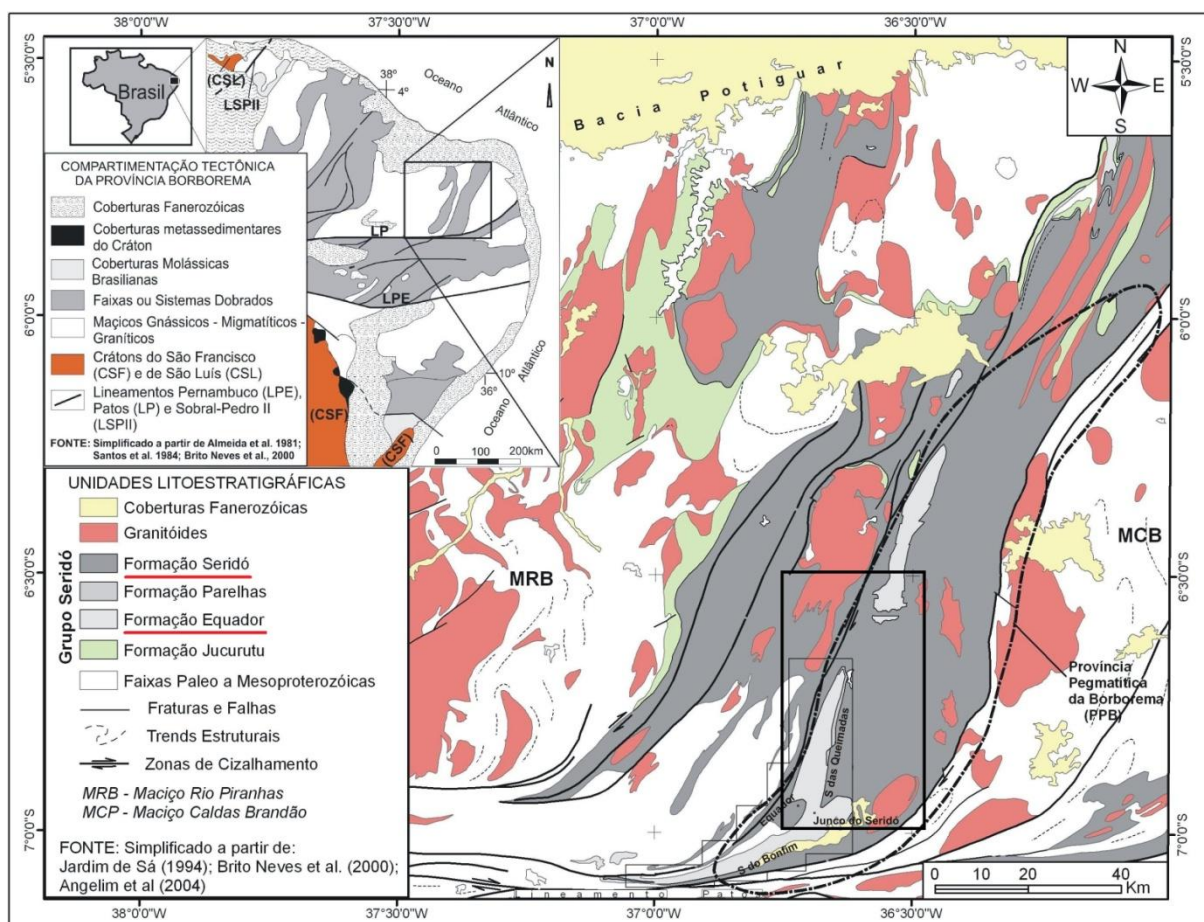


Figura 9 – Esboço geológico-geotectônico da Província da Borborema e da Faixa Seridó, indicando localização da Província Pegmatítica e a área do trabalho desta tese, incluindo parte da área de estudos dos autores do mapa. Modificado de SILVA & CRÓSTA (2011).

Segundo SILVA & CRÓSTA (2011) e SILVA *et al.* (2010), a FSe contém mais de 1.500 pegmatitos produtores de metais raros (Be, Ta-Nb, Li e Sn), de minerais gemas, como a “turmalina Paraíba”, e de minerais industriais, como feldspato cerâmico, caulim e quartzo. A área de ocorrência dos pegmatitos corresponde a cerca de 10.000 km² (Figura 9).

Os corpos de pegmatitos, cujo número, na literatura, varia entre 400 e 5000 encontram-se encaixados nos micaxistos, quartzitos e gnaisses do Grupo Seridó e, minoritariamente, nos gnaisses e migmatitos do Complexo Gnáissico-Migmatítico (BENVINDO DA LUZ, 2003).

Segundo CPRM (2008), a Formação Equador aflora na porção sul da Folha Sousa (**Figura 5**), formando serras com cristas de direção, aproximadamente, leste-oeste, na qual predominam quartzitos e muscovita-quartzitos de granulação média, apresentando coloração esbranquiçada a creme, onde se concluiu que tais litotipos representam uma sedimentação clástica em ambiente marinho raso.

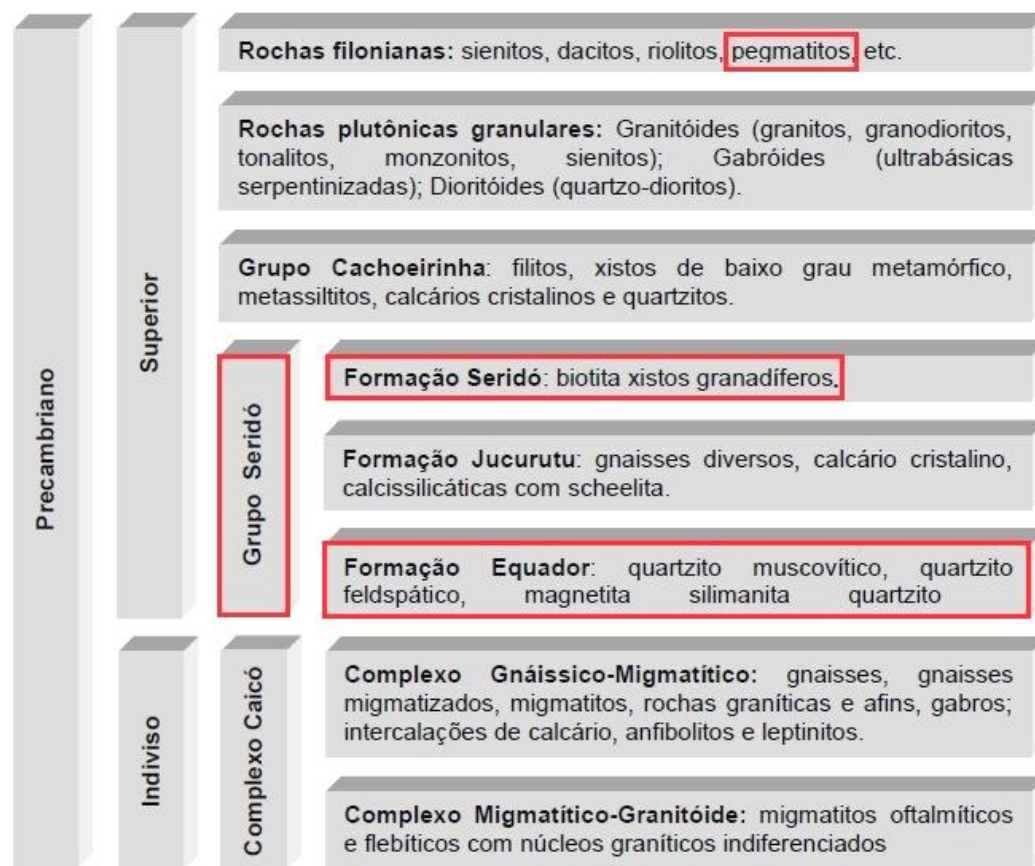


Figura 10 - Estratigrafia do pré-cambriano do sul do Rio Grande do Norte e da parte central da Paraíba (Modificado de DANTAS & CAÚLA, 1982).

Segundo CPRM (2008), estudos relativos à geologia do Grupo Seridó remontam a trabalhos pioneiros na região do Seridó, tais como EBERT (1969 e 1970), FERREIRA & ALBUQUERQUE (1969) e SANTOS (1973), dentre outros. JARDIM DE SÁ & SALIM (1980) e JARDIM DE SÁ (1984) dividiram o Grupo Seridó nas formações Jucurutu, Equador e Seridó, respectivamente da base para o topo, envolvendo-as num mesmo megaciclo sedimentar, com ausência de discordâncias regionais (**Figura 10**).

Outras propostas foram sugeridas na literatura, onde se considera a existência de uma discordância significativa entre os metaconglomerados da região de Parelhas (RN) e os

quartzitos da Formação Equador, tal como apresentado por ARCHANJO & SALIM (1986). Estes autores, demonstrando que ainda há indefinições relativas à divisão dos grupos e a eventos ocorridos na região, utilizaram a coluna estratigráfica sugerida por JARDIM DE SÁ & SALIM (1980), na qual foi acrescida uma unidade na base (Formação Serra dos Quintos), conforme utilizado por SANTOS *et al.* (2002).

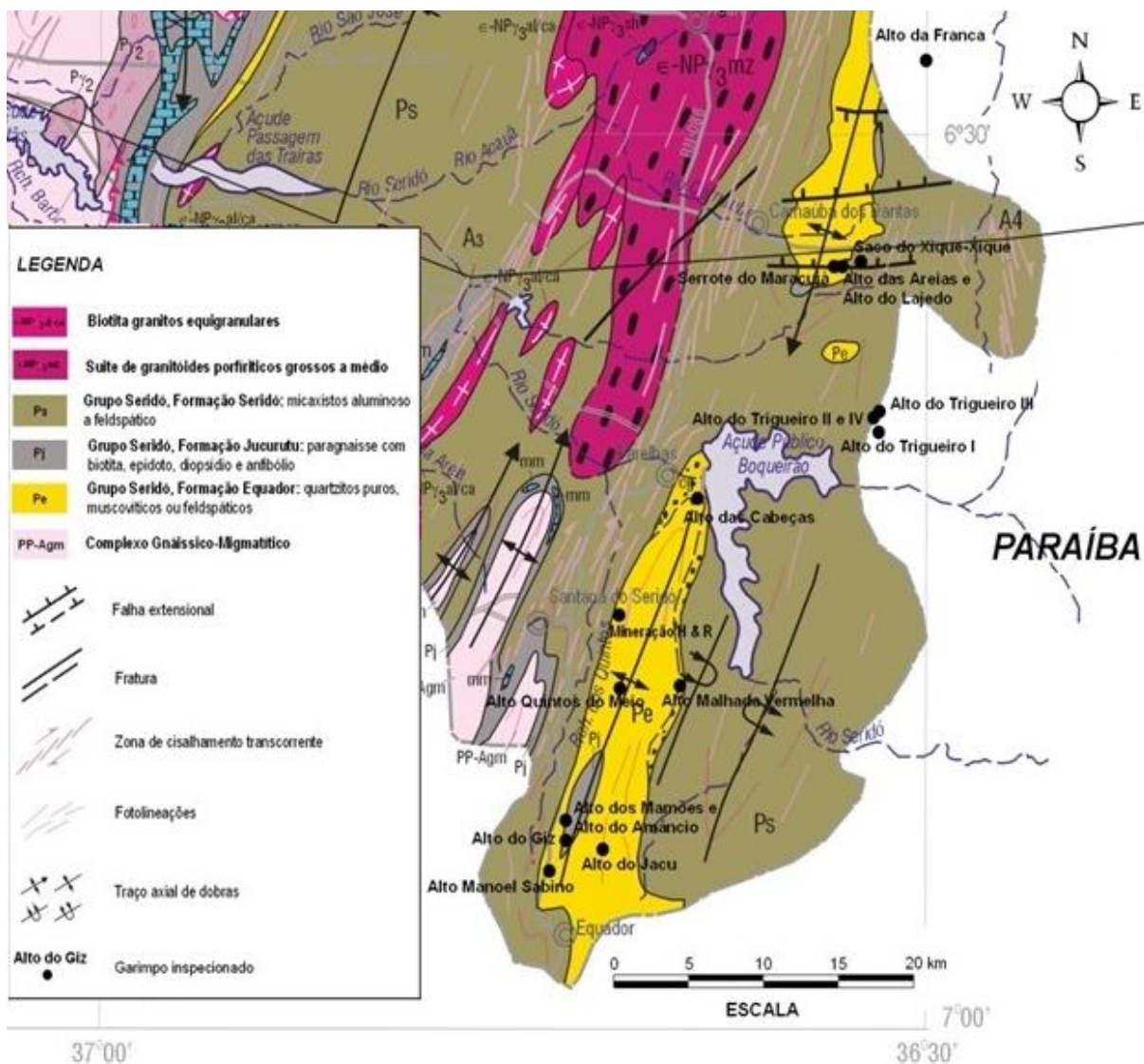


Figura 11 - Mapa geológico de parte da Província Pegmatítica da Borborema no estado do Rio Grande do Norte e localização dos garimpos inspecionados e (adaptado de SINTEC, 2007).

Cumpre mencionar aqui que a pesquisa do presente trabalho foi desenvolvida na região de Parelhas onde somente ocorrem as formações Equador e Seridó. **Figura 9** mostra a localização da área do trabalho dentro da PPB e **Figura 11** a localização dos garimpos

investigados, num mapa geológico do estado Rio Grande do Norte, a formação Equador em amarelo e a formação Seridó marrom-verde.

Neste local os micaxistos granatíferos característicos da unidade são restritos, sendo comum a presença de termos bastante migmatizados e/ou milonitizados. Neste contexto sua caracterização foi definida principalmente através da identificação de protólitos. Idades U-Pb SHRIMP em vários cristais de zircões desta unidade, obtidas em meta-arenitos e xistos das regiões de Pedra Preta (RN) e Barra de Santa Rosa (PB) (ambas as regiões a leste-nordeste da Folha Sousa), foram determinadas por VAN SCHMUS *et al.* (2003), o que permitiu atribuir uma idade neoproterozoica (ediacarana) para a formação. Nas regiões típicas, os litotipos desta unidade (região do Seridó, no estado do Rio Grande do Norte) são caracterizados como metaturbiditos flyschoides (JARDIM DE SÁ, 1994).

Estudos realizados por SILVA (1993) caracterizaram geoquimicamente os principais pegmatitos da faixa Seridó e ressaltam a existência de anomalias de Ta-Nb, Be e Li nestas rochas. Para CPRM (2008), os pegmatitos correspondem aos últimos estágios do magmatismo Brasileiro, formando corpos alongados que truncam as unidades pré-cambrianas da região. Podem ser encontrados tanto pegmatitos do tipo homogêneo como do tipo heterogêneo (veja **seção 1.5.1**). A maioria dos garimpos/mineralizações está inserida neste último tipo. Duas datações U-Pb obtidas em monazita neste litotipo por BAUMGARTNER *et al.* (2006) indicam idades de $514,9 \pm 1,1$ Ma e $509,5 \pm 2,3$ Ma. que aponta um magmatismo do cambriano inferior a médio.

1.4.1 Classificação estrutural dos pegmatitos da região

Segundo DNPM/CPRM (1997), os pegmatitos do Grupo Seridó são classificados em dois tipos relacionados a idades relativas e a eventos tectônicos. O primeiro grupo de pegmatitos, mais antigos (pré F3), mostra um alto grau de deformação. O segundo grupo é de idade relativamente mais nova, tardi-tectônico ou pós fase F3. Este grupo de pegmatitos de idade neobrasiliana é, provavelmente, geneticamente relacionado aos granitos de mesma idade.

Os pegmatitos da Província Pegmatítica da Borborema, estruturalmente, também são classificados em dois principais tipos, denominados de homogêneos e heterogêneos (CPRM, 2008). Os homogêneos não exibem zoneamento interno e sua mineralogia é simples. Os heterogêneos são normalmente mineralizados, exibem zoneamento interno e sua mineralogia é por vezes bastante diversificada.

Em capítulo discorrendo sobre granitos e pegmatitos associados, CPRM (2008) descreve que os granitos pegmatíticos observados em campo constituem conjuntos de rochas leucocráticas porfiríticas compostas essencialmente por quartzo, plagioclásios, microclíneo, muscovita, por vezes com biotitas, além de granadas e turmalina negra. Localmente apresentam bandamento magmático com leitos de granulometria mais fina, ricos em cristais de granadas e/ou turmalina negra, alternados com bandas mais espessas quartzo-feldspáticas.

AGRAWAL (1986 e 1992) estudou os pegmatitos do Seridó e concluiu terem ocorrido dois eventos de *emplacement* desses corpos. O primeiro, mais recente, teria formado pegmatitos que não apresentam evidências de tectonismo no *fabric*. Segundo esse autor, teriam idade brasileira, entre 510 e 450 Ma, obtida a partir de datação K-Ar e Rb-Sr em muscovita e U-Pb em uraninita. Este grupo seria sin a pós dobras F3. Já o grupo mais antigo, que o autor define como pegmatitos concordantes, teria uma idade entre 2,0 e 1,9 Ga, inferida a partir da idade da deformação F2, interpretada a partir de datação de rocha total por Rb-Sr em augen-gnaisses graníticos, que são aceitos como tendo uma idade transamazônica, considerando-se, pois, que os pegmatitos seriam intrusões sintectônicas. Contudo, admite que não é possível estabelecer uma idade precisa para este *emplacement* mais antigo, nem determinar o intervalo de tempo que o separa do evento mais recente.

AGRAWAL (1992) define, com base nas relações de elementos estruturais que regionalmente representam importantes fases de dobramentos (F2 e F3), que os pegmatitos dos dois eventos de *emplacement* podem ser arranjados em quatro grupos: 1) pegmatitos que são concordantes com a foliação principal (S2) e são deformados pelas dobras F3; 2) pegmatitos que cortam a foliação principal (S2) e as dobras intrafoliais F2, e que são dobrados pelas dobras F3; 3) pegmatitos que cortam a foliação principal (S2) e as dobras F2 que parecem seguir o plano axial das dobras F3; e 4) pegmatitos que cortam as dobras F3. Para o autor, a partir dessas idades relativas às dobras F2 e F3, fica claro que os pegmatitos do Grupo Seridó ocupam mais de uma posição na escala estrutural de tempo. Também conclui que eles

diferem marcadamente na intensidade de deformação, sendo os pegmatitos do grupo 1 e 2 muito mais deformados do que aqueles dos grupos 3 e 4.

AGRAWAL (1992) conclui que pegmatitos do grupo 1, que são concordantes com S2, localmente se apresentam boudinados e podem apresentar desenvolvimento de um *fabric* planar paralelo a S2 e são dobrados por F3 e por dobras posteriores. Já os pegmatitos do grupo 2, que cortam as dobras F2, mas que são dobrados por F3, localmente mostram o desenvolvimento de uma foliação forte (S3), definida por uma orientação preferencial de quartzo, feldspato e mica. Contrastantemente, os pegmatitos dos grupos 3 e 4 geralmente ocorrem em corpos tabulares sem apresentar nenhum *fabric* tectônico. Finalmente, o autor afirma que o paralelismo dos pegmatitos do grupo 1 com a foliação S2 (isto é, o plano axial de F2), juntamente com seu *fabric* planar disposto no mesmo plano, mostra que seu *emplacement* ocorreu durante o evento tectonometamórfico F2 e que, por outro lado, a relação de corte dos pegmatitos do grupo 2 com as estruturas F2, e a evidência de deformação e recristalização durante o evento tectonometamórfico F3, sugerem que seu *emplacement* teve início após o evento F2 e antes do evento F3

Estes quatro tipos de pegmatitos estruturalmente controlados descritos por AGRAWAL (1992) foram identificados e, a partir disso, foram inspecionados para amostragem de minerais de coltan. Foram nomeados, não seguindo a ordem da sequência supra, como Tipo I, Tipo II, Tipo III e Tipo IV, possibilitando, assim, sua caracterização geoquímica combinada com seu controle estrutural.

1.5 MINERALOGIA E GEOQUÍMICA DOS PEGMATITOS

Existem inúmeros trabalhos sobre a geologia, mineralogia e geoquímica dos pegmatitos da região (BEURLIN *et al.*, 2002) e todos os autores se baseiam na classificação estrutural de JOHNSTON JR. (1945) em dois tipos, que são os pegmatitos homogêneos e os heterogêneos. A maioria das mineralizações está inserida neste último tipo.

Os pegmatitos homogêneos exibem composição típica de um granito com quartzo, feldspato e muscovita, e rara biotita. A forma encontrada desse tipo de pegmatito nessa área é

tabular, com dimensões variando de um a seis metros de largura. A extensão em superfície é muito variável, podendo ultrapassar três km. Os pegmatitos heterogêneos têm zoneamento interno e são mineralizados em minerais de Be, Ta-Nb, Sn e Li. A forma comumente encontrada é a lenticular, alguns com cerca de 500 metros de extensão e largura da ordem de 40 metros (SILVA *et al.* 2010).

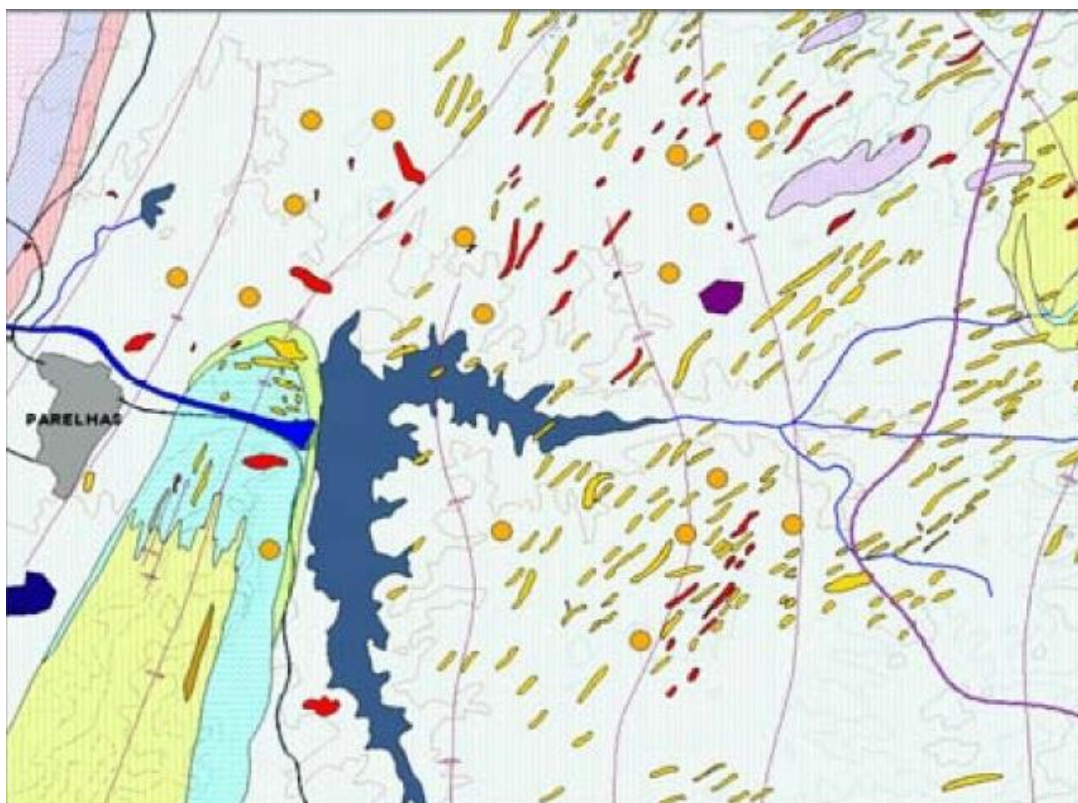


Figura 12 – Mapa geológico com detalhes dos corpos pegmatíticos na região de Parelhas, com realce para as jazidas com presença de minerais radioativos (vermelho), núcleos populacionais (círculos mostarda), cidade de Parelhas (cinza) e corpos de água e drenagens (azul escuro). Fonte: PETTA *et al.* (2012). Largura da imagem aprox. 25 km.

Figura 12 mostra a variação de tamanho e a distribuição dos corpos pegmatíticos na região com indicação de jazidas com minerais radioativos em vermelho. A leste da cidade de Parelhas, os pegmatitos aparecem como enxames em biotita xistos da Formação Seridó (cinza claro).

BEURLIN *et al.* (2002) relatam a determinação de um conjunto pressão/temperatura inicial de cristalização dos pegmatitos Boqueirão (Parelhas) e Alto dos Mamões (Equador) de 3 kbar/500 °C e 4,2 kbar/600 °C, respectivamente, obtidos a partir de análise de inclusões fluidas em ametistas de drusas oriundas desses pegmatitos.

1.5.1 Classificação dos pegmatitos

A classificação moderna dos pegmatitos graníticos, principalmente, tem dois conceitos (CERNY & ERCIT, 2005). O primeiro trata da localização geológica, das relações paragenéticas e geoquímicas, das condições P-T etc., dividindo os pegmatitos graníticos em cinco classes (abissal, muscovita, muscovita–elemento-raro, elemento-raro e miarolítica), a maioria dos quais é subdividida em subclasses, e as demais subdivisões da maioria das subclasses, em tipos e subtipos que seguem as mais sutis diferenças nas assinaturas geoquímicas ou condições P–T de solidificação, expressas em assembleias variáveis de minerais acessórios.

O segundo conceito é petrogenético, desenvolvido por pegmatitos derivados pela diferenciação ígnea de magmas parentais. Distinguem-se três famílias:

- Uma família NYF com acumulação progressiva de Nb, Y e F (além de Be, ETR, Sc, Ti, Zr, Th e U), fracionada de granitos subaluminosos a metaluminosos de tipo A e I, que podem ser gerados por uma variedade de processos que envolvem a crosta empobrecida ou contribuições do manto;
- uma família LCT peraluminosa marcada pelo acúmulo proeminente de Li, Cs e Ta (Rb, além de Be, Sn, B, P e F), derivado principalmente de granitos tipo S, menos comumente de granitos tipo I e
- uma família mista de NYF + LCT de origens diversas, tais como contaminação dos plútons NYF por digestão de rochas supracrustais não depletadas.

Com base na mineralogia e geoquímica, BAUMGARTNER *et al.* (2006) classificam os pegmatitos da PPB como pegmatitos de elementos raros do tipo LCT. Mas parece que eles só estudaram o tipo heterogêneo e a geração mais nova dos pegmatitos com idades brasileiras, não deformadas. Os pegmatitos heterogêneos são caracterizado por elementos como Li, Rb, Cs, Be, Sn, Ga e Ta e subsidiariamente B, P e F e Ta > Nb. Os mesmos autores confirmam uma composição mineralógica granítica, com K-feldspato, albita, quartzo, muscovita e esporádica biotita em ambos os corpos homogêneos e heterogêneos. É relatada também uma grande variedade de minerais acessórios, superior a uma centena de espécies diferentes, de ocorrência nos pegmatitos os heterogêneos.

Os pegmatitos fontes do minério de coltan estudados, possivelmente, se incluem na família mista de NYF e LCT de origens diversas, o que combina com as origens de pegmatitos de duas épocas de *emplacement* bem distantes, com idades ao redor de 2 Ga e 0,5 Ga AGRAWAL (1992). As assinaturas geoquímicas dos pegmatitos com quatro tipos de coltan também apontam para origens diferentes.

Neste trabalho, focado em encontrar assinaturas geoquímicas somente investigando o comportamento de U, Th, Nb e Ta em coltan, não foi possível estudar as relações genéticas dos pegmatitos em detalhe. Mas sabe-se que tipo de minerais são produzidos na região e nos garimpos estudados. Disso se pode deduzir o conteúdo elemental.

Por exemplo, a ocorrência de columbita (Nb) com altos teores de U e Th, de berilo (Be), especialmente de uraninita (Th e U), aponta para a família NYF. A ocorrência de lepidolita (Li), tantalita (Ta), berilo (Be), cassiterita (Sn), schorlita e elbaíta (B) aponta para a família LCT.

1.5.2 Minerais do grupo columbita

Os minerais do grupo columbita, aqui chamado “coltan” têm a fórmula geral AB_2O_6 , em que a posição A é dominada por Fe^{2+} e Mn^{2+} . A posição B é dominada por Nb^{5+} e Ta^{5+} , mas também pode ser ocupada por Ti^{4+} e Sn^{4+} . Os mecanismos de incorporação de elementos raros na estrutura (por exemplo, Ti, Sc, U, W, ETR) e a percentagem das substituições em relação aos cátions totais são descritos em um grande número de artigos (por exemplo, ČERNÝ & ERCIT, 1989; ČERNÝ *et al.*, 1992 e 2004; ERCIT, 1994; MULJA *et al.*, 1996; ROMER *et al.*, 1996; SÁBIO *et al.*, 1998; LEHMANN *et al.* 2008).

Columbita é definida por uma relação atômica Nb/Ta > 1 e tantalita por Nb/Ta < 1, respectivamente. Na natureza, tantalita e columbita puras são desconhecidas. São membros finais teóricos de uma série de solução sólida, os minerais do grupo columbita. Portanto, na literatura científica anglicana o termo técnico dos seus membros é *Columbite-Group Minerals*, símbolo CGM (POHL, 2013).

A nomenclatura dos CGM mudou nos meados de 2000. A preponderância de Fe ou Mn agora é notada por um sufixo, por exemplo, *ferrocolumbite* agora é *columbite-(Fe)* e

manganotantalite é tantalite-(Mn). Os nomes antigos e os aprovados pela CNMMN (2013) constam na **Tabela 1**. No texto são usados os nomes em português. Os minerais do grupo formam as seguintes séries:

Columbite-(Fe) forma duas séries, com tantalita-(Fe) e com columbite-(Mn).

Columbite-(Mn) forma duas séries com columbite-(Fe) e tantalita-(Mn).

Tantalita-(Fe) forma duas séries, com tantalita-(Mn) e com columbite-(Fe).

Tantalita-(Mn) forma duas séries com columbite-(Mn) e tantalita-(Fe).

Tabela 1 – Minerais importantes de nióbio e tântalo com fórmulas e nomes antigos e/ou brasileiros.

Nome IMA	Fórmula aprovada pela CNMNC/IMA	Nome antigo (brasileiro)
Columbite-(Fe)	$(\text{Fe}^{2+}, \text{Mn}^{2+})(\text{Nb}, \text{Ta})_2\text{O}_6$	Ferrocolumbite
Columbite-(Mn)	$(\text{Mn}^{2+}, \text{Fe}^{2+})(\text{Nb}, \text{Ta})_2\text{O}_6$	Manganocolumbite
Tantalite-(Fe)	$(\text{Fe}^{2+}, \text{Mn}^{2+})(\text{Ta}, \text{Nb})_2\text{O}_6$	Ferrotantalita
Tantalite-(Mn)	$(\text{Mn}^{2+}, \text{Fe}^{2+})(\text{Ta}, \text{Nb})_2\text{O}_6$	Manganotantalita
Tapiolite-(Fe)	$\text{Fe}^{2+}\text{Ta}_2\text{O}_6$	Ferrotapiolita
Tapiolite-(Mn)	$\text{Mn}^{2+}\text{Ta}_2\text{O}_6$	Manganotapiolita
Stibiocolumbite	SbNbO_4	Stibiocolumbite
Stibiotantalite	$\text{Sb}^{3+}\text{TaO}_4$	Stibiotantalita
Bismutotantalite	BiTaO_4	Bismutotantalita
Microlite*	$(\text{Ca}, \text{Na})_2\text{Ta}_2\text{O}_6(\text{O}, \text{OH}, \text{F})$	Microlita
Pyrochlore*	$(\text{Ca}, \text{Na})_2\text{Nb}_2\text{O}_6(\text{OH}, \text{F})$	Pirocloro
Fluornatromicrolite	$(\text{Na}_{1.5}\text{Bi}_{0.5})\text{Ta}_2\text{O}_6\text{F}$	Microlita
Uranomicrolite**	$(\text{U}, \text{Ca})_2(\text{Ta}, \text{Nb})_2\text{O}_6(\text{OH})$	Djalmaita
Parabariomicrolite	$\text{BaTa}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	Microlita
Fluorcalciomicrolite	$(\text{Ca}, \text{Na})_2\text{Ta}_2(\text{O}, \text{OH})_6\text{F}$	Microlita
Fluornatromicrolite	$(\text{Na}_{1.5}\text{Bi}_{0.5})\text{Ta}_2\text{O}_6\text{F}$	Microlita
Oxystibiomicrolite	$(\text{Sb}^{3+}, \text{Ca})_2\text{Ta}_2\text{O}_6\text{O}$	Microlita
Aeschynite-(Y)	$(\text{Y}, \text{Ln}, \text{Ca}, \text{Th})(\text{Ti}, \text{Nb})_2(\text{O}, \text{OH})_6$	Y-Aeschynita
Euxenite-(Y)	$(\text{Y}, \text{Ca}, \text{Ce}, \text{U}, \text{Th})(\text{Nb}, \text{Ta}, \text{Ti})_2\text{O}_6$	Euxenita
Ixiolite	$(\text{Ta}, \text{Mn}, \text{Nb})\text{O}_2$	Ixiolita
Fergusonite-(Ce)-β	CeNbO_4	Fergusonita
Fergusonite-(Y)	YNbO_4	Fergusonita
Samarskite-(Y)	$(\text{Y}, \text{Ce}, \text{U}, \text{Fe}, \text{Nb})(\text{Nb}, \text{Ta}, \text{Ti})\text{O}_4$	Samarskita

*grupo pirocloro, **também na Tabela 2, porque é mineral de urânio

Existe também a columbite-(Mg) com a fórmula MgNb_2O_6 , mas não faz parte da coltan e não existe em pegmatitos (ERCIT, 1994). Quem pode fazer parte das séries é a tapiolita-(Fe, Mn), de fórmula idêntica a da tantalita-(Fe, Mn), mas com estrutura diferente (tetragonal).

Como a **Tabela 1** mostra, a composição mineralógica e química de minérios de Ta-Nb é extremamente complexa, por causa da grande variedade de minerais da série de solução sólida

columbita-tantalita e da capacidade deste grupo para incorporar um grande número de elementos adicionais. MELCHER (2010) e GRAUPNER *et al.* (2010) informam que, além disso, os minérios de coltan também podem conter outras fases de minerais de Ta como tapiolita, ixiolita, bismutotantalita $[\text{Bi}(\text{Nb,Ta})\text{O}_4]^*$, stibiotantalita $[\text{Sb}(\text{Nb,Ta})\text{O}_4]^*$, minerais do grupo do pirocloro* e minerais dos grupos complexos de minerais de fergusonita*, aeschynita* e euxenita.

* Veja as fórmulas aprovadas pela IMA (2013) na **Tabela 1**. A fergusonita e aeschynita, hoje, são espécies válidas apenas com prefixos como $-(\text{Y})$, $-(\text{Ce})$ ou $-(\text{Nd})$.

Essas grandes variações de tais minerais e minérios criam as oportunidades para desenvolver métodos de *fingerprinting*, porque todas as fontes têm suas próprias associações químicas e paragêneses específicas.

O comportamento geoquímico de Nb e Ta em processos petrogenéticos é quase idêntico. O nome tântalo vem do rei Lídio Tântalos, pai de Niobe, por causa de sua resistência aos mais elaborados métodos de digestão química. Ta e Nb são elementos incompatíveis litófilos (*LIL* – *Light Ion Lithophile*) e HFS (*HFS* - *High Field Strength*) o que reduz fortemente seu potencial para substituição por elementos mais comuns em minerais formadores de rocha. Isto é ainda mais inibido pela alta atividade de compostos voláteis de complexantes como B, C, Cl, F e P, que fazem os elementos HFS se acumularem em fases fluidas tardias (POHL, 2013).

Com uma abundância crustal de 12 a 20 ppm, o Nb é mais comum que o Ta (1 - 2 ppm). Os dois elementos são enriquecidos em granitos altamente diferenciados, sienitos e granitos alcalinos, em carbonatitos e em pegmatitos e granitos e pegmatitos de metais raros. O Nb supera o Ta em carbonatitos e sienitos. Em granitos e pegmatitos o Ta atinge maior concentração, especialmente nos "granitos de estanho" e pegmatitos relacionados.

Segundo ERCIT (1994), os CGM não são de origem hidrotermal, ao contrário da uraninita, e resistem bem mais à alteração. Nesse artigo, o autor define as razões Nb vs. Ta e Fe vs. Mn como "indicadores de fracionamento" e afirma que esses elementos comportam-se sistematicamente durante a evolução do pegmatito estudado.

Para o presente trabalho, estes indicadores de fracionamento faltam. Como o objetivo deste estudo foi encontrar uma assinatura geoquímica para o minério de coltan somente com

base em análise rotineira da CNEN, que não inclui Mn e Fe, não foi determinado de que tipo da serie columbita-tantalita se trata.

Não existem dados para a relação de U e Th nos minerais de coltan, porque variações dentro do grupo são estudadas no "quadrilátero de columbita" (*columbite quadrilateral*) usando outros elementos do que aqueles usados nesta tese, como Fe, Mn, em primeiro lugar, mas também Ti, Sn e W. O quadrilátero de columbita ilustra graficamente as relações entre columbita-(Fe), tantalita-(Fe), tantalita-(Mn), columbita-(Mn) e tapiolita (CERNÝ *et al.*, 1992; ERCIT 1985, 1989, 1994).

Se há dados para a partição de U, eles faltam para Th. ERCIT (1994) achou que o máximo de U como elemento substituto em CGM seria 9000 ppm. E realmente parece que valores muito elevados são devidos a inclusões de minerais de urânio. Por exemplo, BAUMGARTNER *et al.* (2006) acharam 4 % de UO_2 numa columbita oriunda do pegmatito Alto de Trigueiro I e atribuíram isto a inclusões de uraninita.

Os minerais do grupo pirocloro (microlita), também ricos em Ta, representam fases comuns de alteração que substituem minerais primários de Ta, mas também podem ser fases primárias (**Tabela 1**).

1.5.3 Minerais de urânio e tório

HEINRICH (1966) descreveu que muitas formas de classificação de minerais radioativos têm sido sugeridas desde longas datas, iniciando com um agrupamento sistemático dos minerais radioativos através de uma lista de minerais que contêm U, Th e ETR, e evoluindo até a uma classificação de base genética, que divide os minerais radioativos nos grupos: **1)** pegmatíticos; **2)** hidrotermais; e **3)** secundários. Entretanto, a classificação que parece ser a mais útil reconhece três categorias principais: **1)** minerais de U e Th; **2)** minerais com pequenas quantidades de U e Th; e **3)** minerais que contêm U e Th como impurezas ou inclusões. Estas três divisões se subdividem em, por exemplo, para o primeiro grupo, minerais de U e Th, em óxidos, óxidos complexos (múltiplos), óxidos hidratados e hidróxidos, carbonatos, sulfatos, fosfatos não hidratados, fosfatos hidratados, arseniados, vanadatos,

molibdatos, silicatos não hidratados e silicatos hidratados. Para o segundo e terceiro grupos se utiliza subdivisões parecidas.

Na época, se reconhecia 85 espécies de minerais de U e Th (HEINRICH, 1966). Hoje são mais do que 240 minerais com urânio na fórmula, não contando os minerais que contêm U como impureza como a coltan. Muitos nomes de minerais não foram considerados espécies válidos pela CNMNC, como microlita e pirocloro, que hoje só são válidos com "prenomes". Mesmo assim, na literatura brasileira, até às vezes, na internacional, continuam sendo usados.

Em campo, até hoje se usam nomes que não constam mais na lista da IMA (IMA, 2013), como pechblenda e gumita. O primeiro nome se refere a massas colomorfos de uraninita, o último se aplica a misturas de minerais radioativos de cores brilhantes e tons de amarelo a verde, de granulação fina, formadas pela alteração de minerais de U, não especificados. Por não ser uma definição mineralógica, nesta tese o nome é usado em aspas para os produtos da alteração de uraninita e coltan.

Tabela 2 – Minerais de tório e urânio com fórmulas, % de Th e U e nomes antigos e/ou brasileiros.

Nome IMA	Fórmula aprovada pela CNMNC/IMA (2013)	Th, U (%)	Pseudônimo, nome antigo/brasileiro
Thorianite	ThO ₂	Th 87,88	Torianita
Thorogummite	(Th,U)[(SiO ₄) ₄ (OH) ₄]	Th máx. 77,33	Gumita
Uraninite	UO ₂	U 88,15	Pechblenda,
Uranophane	Ca(UO ₂) ₂ (SiO ₃ OH) ₂ ·5H ₂ O	U 40,59-60,70	"gumita"
Uranylhydroxide	UO ₂ (OH) ₂	U 78,29	"gumita"
Autunite	Ca(UO ₂) ₂ (PO ₄) ₂ ·10-12H ₂ O	U 48,27	"Uranmica" em inglês
Torbernite	Cu(UO ₂) ₂ (PO ₄) ₂ ·12H ₂ O	U 48,00	"Uranmica" em inglês
Meta-Torbernite	Cu(UO ₂) ₂ (PO ₄) ₂ ·8H ₂ O	U 50,77	"Uranmica" em inglês
Curite	Pb ³⁺ x[(UO ₂) ₄ O ₄ +x(OH) ₃ -x] ₂ ·2H ₂ O	U 63,34	"gumita"
Kasolite	Pb(UO ₂)(SiO ₄)·H ₂ O	U 40,53	"gumita"
Paraschoepite	UO ₃ ·(2-x)H ₂ O	U 73,91	"gumita"
Schoepite	(UO ₂) ₈ O ₂ (OH) ₁₂ ·12H ₂ O	U 72,89	Schoepita
Metaschoepite	(UO ₂) ₈ O ₂ (OH) ₁₂ ·10H ₂ O	U 76,04	Metaschoepita
Uranomicrolite, vj.Tab.1	(U,Ca) ₂ (Ta,Nb) ₂ O ₆ (OH)	U 27,37	Djalmaíta

Fontes: IMA (2013), ANTHONY et al. (2013), WEBMINERAL (2013).

Na **Tabela 2**, a uraninita, e os outros minerais estudados pelo autor estão em **negrito** e descritos em mais detalhes na seção **2.1**. Os outros minerais dessa tabela devem apenas servir

como exemplo da diversidade dos minerais de urânio e eventualmente acompanham a uraninita e a coltan nos pegmatitos. Para mais informação sobre os minerais encontrados na área do trabalho, veja o capítulo 2.2, Resultados, **Tabela 9**.

Minerais de U e Th como uraninita e torianita são comuns em pegmatitos graníticos e sieníticos (ANTHONY *et al.* 2008). Mas os de Th são bem mais raros. O estudo se concentrou no comportamento químico de coltan, sem examinar as amostras petrograficamente, mas outros autores relatam inclusões de fases de minerais uraníferos em coltan (BAUMGARTNER *et al.*, 2006). Os teores elevados de U e Th acima do normal podem ser causados por inclusões de minerais de U e Th (**Tabela 2**).

Th e U são motivo de preocupação para fins de mineração e manipulação em níveis acima de 1 Bq/g, esta atividade corresponde, por exemplo a 0,013 % ThO₂ mais 0,0048 % U₃O₈. Para o transporte, os níveis de preocupação são uma ordem de magnitude maior, ou seja, 10 Bq/g ou 0,13 % ThO₂ mais 0,048 % U₃O₈ (POHL, 2013).

Foram escolhidos três exemplos de minerais de urânio encontrados nos pegmatitos estudados, para mostrar o efeito da radioatividade destes minerais em termos e manuseio (**Tabela 3**).

Tabela 3 – Radioatividade de minerais encontrados nos garimpos da região de Parelhas.

Radioatividade de uraninita, fórmula UO ₂ – muito forte				
Tamanho da amostra peso/volume (esfera)*	Atividade calculada Bequerel (Bq)	Atividade calculada Curie (Ci)	Atividade estimada Gray (Gy)	Exposição estimada (mRem)/h se segurado na mão
1.000 g / 5,58 cm ³	157.788,157	4,26E-03	6.010.360,79	1.976,01
100 g / 2,59 cm ³	15.778,816	4,26E-04	601.036,08	197,60
10 g / 1,20 cm ³	1.577,882	4,26E-05	60.103,61	19,76
* Peso de uraninita pura em gramas (g) e diâmetro calculado de uma esfera com uma densidade de 10,97 g/cm ³				

Radioatividade de curita, fórmula $\text{Pb}_3(\text{UO}_2)_8\text{O}_8(\text{OH})6 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ – muito forte				
Tamanho da amostra peso/volume (esfera)*	Atividade calculada Bequerel (Bq)	Atividade calculada Curie (Ci)	Atividade estimada Gray (api)	Exposição estimada (mrem)/h se segurado na mão
1.000 g / 6,41 cm ³	113.373.906	3.06E-03	4.367.146,75	1.435,77
100 g / 2,98 cm ³	11.337.391	3.06E-04	436.714,68	143,58
10 g / 1,38 cm ³	1.133.739	3.06E-05	43.671,47	14,36
* Peso de curita pura em gramas (g) e diâmetro calculado de uma esfera com uma densidade de 7,25 g/cm ³				

Radioatividade de uranofano, fórmula $\text{Ca}(\text{UO}_2)_2\text{SiO}_3(\text{OH})_2 \cdot 5(\text{H}_2\text{O})$ – muito forte				
Tamanho da amostra peso/volume (esfera)*	Atividade calculada Bequerel (Bq)	Atividade calculada Curie (Ci)	Atividade estimada Gray (Gy)	Exposição estimada (mrem)/h se segurado na mão
1.000 g / 7,88 cm ³	72.663.329	1,96E-03	3.210.165,80	1.055,40
100 g / 3,66 cm ³	7.266.333	1,96E-04	321.016,58	105,54
10 g / 1,70 cm ³	726.633	1,96E-05	32.101,66	10,55
* Peso de uranofano puro em gramas (g) e diâmetro calculado de uma esfera com uma densidade de 3,90 g/cm ³				

Fontes: Tabelas de WEBMINERAL (2013) e fórmulas químicas de ANTHONY *et al.* (2013).
Vj. símbolos e convenções nas páginas xiii-xv.

1.5.4 Outros minerais dos pegmatitos

Minerais indicadores e de interesse econômico dos pegmatitos, mas não estudados pelo autor, seguem em ordem alfabética com fórmula aprovada pela IMA (2013):



Figura 13 – Lepidolita com mineral amarelo radioativo (esquerda), Elbaíta de vários cores, nomes comerciais: indicolita, rubiolita (direita).

Berilo	$\text{Be}_3\text{Al}_2\text{Si}_6\text{O}_{18}$ (Figura 1 esquerda, seção 1.2)
Caulim	$\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$
Elbaíta	$\text{Na}(\text{Al}_{1,5}\text{Li}_{1,5})\text{Al}_6(\text{Si}_6\text{O}_{18})(\text{BO}_3)_3(\text{OH})_3(\text{OH})$ (Figura 13 direita)
Espodumênio	$\text{LiAlSi}_2\text{O}_6$
Gahnita	ZnAl_2O_4
Lepidolita	$\text{K}(\text{Li},\text{Al})_3(\text{Si},\text{Al})_4\text{O}_{10}(\text{F},\text{OH})_2$, ANTHONY <i>et al.</i> (2013), pertence ao grupo mica (Figura 13 esquerda).
Petalita	$\text{LiAlSi}_4\text{O}_{10}$
Schorlita:	$\text{NaFe}^{2+}_3\text{Al}_6(\text{Si}_6\text{O}_{18})(\text{BO}_3)_3(\text{OH})_3(\text{OH})$

No Brasil, a schorlita é chamada afrisita e a elbaíta colorida em azul de origem da PPB é a famosa indicolita “Turmalina Paraíba” ou “Azul da Paraíba” (SILVA & CRÓSTA, 2011, DNPM/CPRM, 1997). Ambas pertencem ao grupo da turmalina.

1.6 MATERIAIS E MÉTODOS

A sequência de trabalhos executados pode ser resumida conforme a descrição a seguir.

- Investigação de 50 pegmatitos. Mapeamento geológico detalhado, escala 1:1000, de 21 pegmatitos.
- Amostragem de minerais radioativos em 14 pegmatitos.
- Levantamento gamarradiométrico dentro e fora dos pegmatitos/garimpos.
- Análise química para U, Th, Nb e Ta e análise mineralógica de amostras.
- Modelagem dos resultados geoquímicos por meio de diagramas bivariantes.
- Documentação e apresentação com texto, tabelas e figuras elaboradas com os programas de computador Microsoft Office 2007[®] (Word, Excel e Paint) e Corel DRAW12[®] Graphics Suite, versão 12.0, Corel Corporation (2003).

1.6.1 Trabalhos de campo

Nos mapeamentos em detalhe (trena e bússola, papel milimetrado) dos pegmatitos, também foram realizadas medidas estruturais nas encaixantes e o mapa em detalhe de cada pegmatito com um ponto de amarração foi determinado por meio de GPS.

Simultaneamente à amostragem nos garimpos, foi realizado o mapeamento detalhado do pegmatito e de sua rocha encaixante. O mapa geológico, acompanhado de medição estrutural, permitiu caracterizar o tipo estrutural do pegmatito. Isso possibilitou identificar e comparar esses corpos com os quatro tipos estruturais de pegmatitos descritos por AGRAWAL (1992). Assim, uma vez detectada a presença de coltan, esta foi amostrada e o pegmatito foi mapeado em detalhe. Parte dos procedimentos e metodologias de campo utilizados foram descritos em CNEN/CPRM (1974), CNEN/CPRM (1975), DNPM/CPRM (1997), MIYASAKI & COSTA-DE-MOURA (2004), COSTA-DE-MOURA et al. (2005).

Coltan e outros minerais radioativos foram amostrados em 14 pegmatitos selecionados a partir da ocorrência de coltan. Os cristais de coltan amostrados nos pegmatitos foram coletados no local indicado pelo perfil de taxa-de-contagem. Onde a perfilagem não foi possível, a amostra foi coletada após investigação visual diretamente nas paredes dos pegmatitos. Os cristais amostrados foram ensacados no mesmo local e foi inserida uma etiqueta indicativa do pegmatito e da descrição de campo (**Figura 14**).



Figura 14 – Amostras ensacadas e identificadas para envio ao laboratório.

Tanto as amostras dos lotes comerciais de minério, como as amostras de minerais coletadas *in situ* foram enviadas aos laboratórios da CNEN.

Foi feito levantamento cintilométrico (gamarradiometria *in situ*) nas banquetas dos pegmatitos, gerando perfis verticais nas paredes das banquetas e, simultaneamente, detectando-se pontos de elevada taxa-de-contagem, localizando-se, dessa maneira, os minerais de coltan a serem amostrados para posterior análise química.

1.6.2 Análise das amostras

A amostragem de lotes comerciais de minério é sempre precedida de homogeneização e quarteamento sucessivo. Essas amostras são etiquetadas com indicação do lote comercial e descrição do minério, seguindo o procedimento de fiscalização adotado pela DIMAP/CNEN.

As amostras foram analisadas nos laboratórios da CNEN pelo próprio *staff* dos laboratórios, não tendo nenhuma participação do doutorando no acompanhamento da preparação das amostras nem das análises. Os minerais foram determinados por difratometria (veja o detalhamento do procedimento a seguir).

Os laboratórios da CNEN utilizaram o método do Arsenazo III (SAVVIN, 1963) para analisar U e Th nas amostras de lotes comerciais. Esse método consiste em determinação por espectrofotometria e tem limites mínimos de detecção entre 0,1 - 0,01 µg/mL, contudo o limite de detecção de Th chega a 0,0001 %, enquanto para o U o limite é de 0,002 µg/mL. Segundo SAVVIN (1963), o método apresenta erro de ± 4 %. Já o Nb e o Ta de coltan dos lotes foram analisados como as amostras de coltan dos pegmatitos.

Nas amostras de coltan coletadas nos pegmatitos, os quatro elementos foram analisados no Centro de Desenvolvimento e Tecnologia Nuclear (CDTN/CNEN) em Espectrômetro de Fluorescência de Raios-X Sequencial, por dispersão de comprimento de onda, marca Rigaku, modelo ZSX Primus II, com gerador de raios-X de alta frequência de 4KW e capaz de detectar elementos na faixa do boro ao urânio. Possui gerador de raios-X de alta frequência de 4KW e tubo de raios-X de Rh de 4KW – AFX87L, com janela de 30 µm.

Na determinação química também foi utilizado o método de Espectrometria de fluorescência de raios-X por dispersão de energia (EDXRF). Este método utiliza um espectrômetro sistema KEVEX, com fonte de Am-241 e analisador multicanal.

A determinação mineral direta foi realizada por Difração de Raios-X através do Difratorômetro de Raios-X, marca Rigaku, modelo e sistema D\MAX ULTIMA automático, com goniômetro θ - θ , varredura $2\theta/\theta$ e tubo de raios-X com anodo de cobre e foco normal, software aplicativo da Materials Data Inc. Jade 9, para análise qualitativa, quantitativa e medidas cristalográficas de fases cristalinas. Uso integrado com o arquivo PDF-2 (Database) em CD-ROM da ICDD.

1.6.3 Calibração dos medidores de radiação gama

As medidas de radiação em CPS foram realizadas através de cintilômetros SPP-2 e SPP-3, da empresa francesa Saphimo. São aparelhos de campo com erro de medida máximo de 2,5 % e utilizam detectores de NaI. Suas escalas são idênticas e permitem medir-se até 15.000 CPS (Figura 15 esquerda).



Figura 15 – Cintilômetro Saphimo SPP-3 com cabo de 20 metros e leitura em CPS (esquerda) e Medidor de taxa-de-exposição, Monitor Thyac, leituras em R/h (direita).

O SPP-2 é uma versão mais simples do SPP-3 (**Fig. 15** esquerda) que não dispõe de seletor de energias. Mede todas as energias acima de 50 Kev. Por sua vez, o SPP-3 é um contador multicanal que permite selecionar e medir energias por faixas acima de 50, 100, 150,

200, 250, 300, 400, 600, 800, 1000, 1500 ou de 2000 Kev. Medidas de taxa-de-exposição, em R/h, foram determinadas com um Monitor Thyac (**Fig. 15** direita), que utiliza detector de câmara de ionização (Geiger). Enquanto os cintilômetros apresentam erro de medição de $\pm 2,5$ %, o Thyac chega a apresentar erro de leitura de ± 5 %. Os cintilômetros geram medidas em CPS, enquanto o aparelho Thyac, faz medições em R/h.

Vale mencionar que medidas em CPS não representam valor absoluto. Para transformar os valores em CPS em taxa de dose-de-exposição ou taxa de dose-de-absorção, é necessário ter-se um medidor de taxa-de-dose previamente calibrado. Tendo isso, são realizadas medidas conjuntas conforme apresentado na **Figura 16** e **17**. Outra observação é que não há equivalência do Roentgen no Sistema Internacional de Unidades (SI).

As medidas cintilométricas apresentam erro de medição de ± 5 % para cada uma das escalas (Máx = 150; = 500; = 1.500; = 5.000; =15.000). Em baixas e altas doses (de Ra-226), a uma distância fixa, o SPP-3 responde de modo absolutamente linear (**Figura 16** e **17**).

Com as **Figuras 16** e **17** compara-se a leitura de vários equipamentos, cada qual em sua escala e unidade próprias. Portanto, o eixo Y “LEITURA” pode ser CPS, mR/h e mSv/h. Deste modo, partindo-se de um equipamento previamente calibrado, não somente se verifica a linearidade dos outros equipamentos, como também é possível proceder sua calibração indireta, ou seja, obter-se uma equação que permita saber-se a dose absorvida em mSv a partir de medidas de taxas-de-contagem (CPS).

Quando se combina alta e baixa dose (sem a capa de atenuação), que é o modo como se trabalhou em campo, a resposta do cintilômetro, eficiência de detecção, é exponencial. Contudo, em altas taxas de contagem, a resposta é mais eficiente, tendente à linearidade, fato que permite seu uso, uma vez que as baixas taxas não são o fator preocupante quando se fala em exposição à radioatividade.

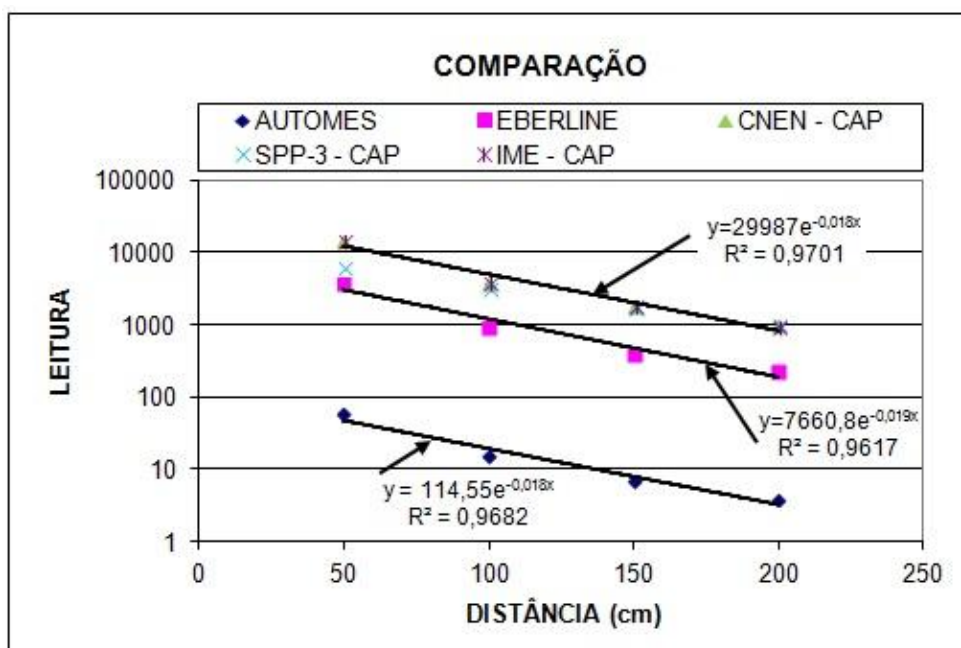


Fig. 16 – Linearidade do cintilômetro SPP-3 em baixa dose, com capa de atenuação. $R^2 = 0,970$, Fonte utilizada: Ra-226 (Tabela C1, APÊNDICE).

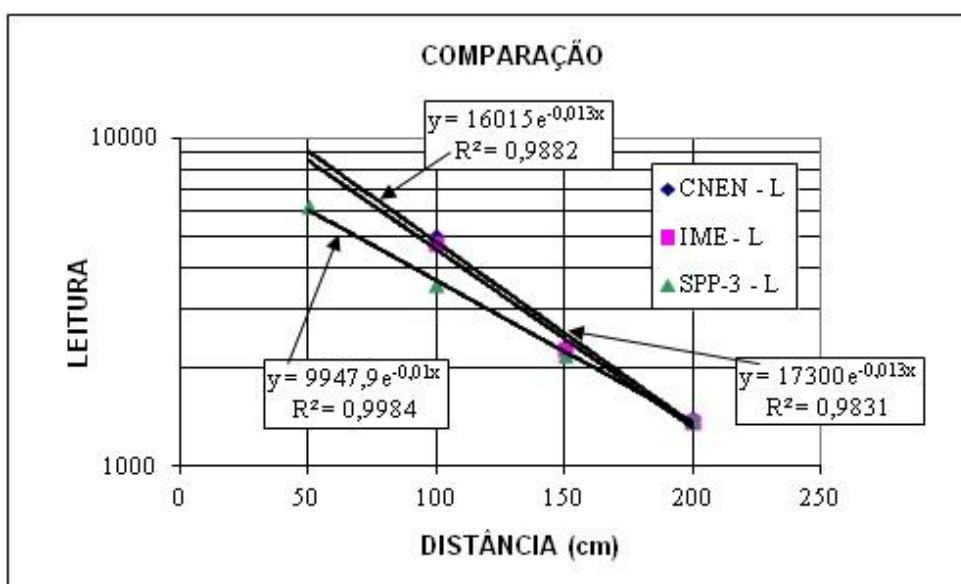


Figura 17 – Linearidade do cintilômetro SPP-3 em alta dose, com capa de atenuação. $R^2 = 0,970$, Fonte utilizada: Ra-226 (Tabela C2, APÊNDICE).

Além das medidas em CPS, foi medida a taxa-de-exposição à radiação em alguns garimpos. As leituras de exposição foram mantidas em R/h (Roentgen por hora) para ser fiel à medição. Contudo, a nova unidade do Sistema Internacional de Unidades é expressa em C/kg·h (Coulomb por quilograma por hora), e $1 \text{ R} = 2,58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}\cdot\text{h}$.

1.6.4 Detalhes da medição da radiação gama

O levantamento cintilométrico incluiu medidas na superfície dos pegmatitos, nas paredes de escavação dos garimpos, no solo, nas encaixantes, e debaixo da água, onde a água da chuva acumulou nas escavações.

A medição da taxa-de-contagem nas banquetas dos pegmatitos minerados foi feita com o cintilômetro SPP-3, gentilmente cedido pelo Laboratório de Traçadores da COPPE. A unidade de medida, o CPS (contagens por segundo, em inglês “counts per second”), não tem valor absoluto. Para superar este problema, foi feita uma calibração conjunta do cintilômetro com monitores previamente aferidos no Instituto de Militar do Exército (IME). Nessa calibração, foi utilizada uma fonte de rádio-226. O cintilômetro SPP-3 é equipado com cabo de 20 metros de comprimento. Esse cabo de 20 metros permitiu perfilar-se certas paredes profundas das banquetas.

As medições in situ foram realizadas no contato direto com o ponto medido, e não a um metro de distância como é, normalmente, o padrão. Esse procedimento foi adotado, porque os garimpeiros não somente manuseiam os minerais radioativos, como também têm o costume de armazená-los em local frequentado, inclusive em seus dormitórios.

Os dados adquiridos dos perfis de radiação gama (CPS) verticais são apresentados em gráficos de barras agrupadas, a medição através de pegmatitos como diagramas de dispersão com linhas.

1.6.5 Modelagem dos dados geoquímicos

Para a modelagem geoquímica da coltan, inicialmente, procedeu-se a transformação estequiométrica dos valores dos óxidos obtidos para suas quantidades de porcentagem molar (%M). U_3O_8 foi convertido em U_2O_4 primeiro, porque U_3O_8 não é uma substância natural. A modelagem foi realizada inicialmente com percentagens molares (%M) dos quatro elementos U, Th, Nb e Ta, (**Figuras 26 e 27**), tendo sido utilizados os seguintes valores para o mol dos elementos: U = 238; Th = 232; Nb = 93; Ta = 181; O = 16, U_3O_8 = 842; U_2O_4 = 540; ThO_2 =

264; $\text{Nb}_2\text{O}_5 = 266$; $\text{Ta}_2\text{O}_5 = 442$ (Unidades de Massa Atômica), conforme equações balanceadas a seguir:

Equação 1)

$$\begin{aligned} 2 \text{ U}_3\text{O}_8 (\% \text{ p/p}) &= 3 \text{ U}_2\text{O}_4 (\% \text{ M}) = 6 \text{ U } (\% \text{ M}) \\ 3 \text{ U}_2\text{O}_4 (\% \text{ M}) &= (3 \cdot 540)/(2 \cdot 842) \cdot \text{U}_3\text{O}_8 (\% \text{ p/p})/842 \\ 6 \text{ U } (\% \text{ M}) &= (6 \cdot 238)/(2 \cdot 842) \cdot \text{U}_3\text{O}_8 (\% \text{ p/p})/842 \end{aligned}$$

Equação 2)

$$\begin{aligned} \text{ThO}_2 (\% \text{ p/p}) &= \text{ThO}_2 (\% \text{ M}) = \text{Th } (\% \text{ M}) \\ \text{ThO}_2 (\% \text{ M}) &= \text{ThO}_2 (\% \text{ p/p})/(264) \\ \text{Th } (\% \text{ M}) &= (232/264) \cdot \text{ThO}_2 (\% \text{ p/p})/(264) \end{aligned}$$

Com os dados químicos adquiridos, foi feita a modelagem através de diagramas de variação de relações de U, Th, Nb e Ta de minério de coltan de lotes fiscalizados pela CNEN oriundos de Parelhas, das amostras coletadas nos pegmatitos da região de Parelhas, e, por fim, comparados com as amostras de minério de lotes comerciais dos estados de Amapá e Rondônia.

1.6.6 O único método conhecido de assinatura de coltan

Cumprе mencionar aqui que o único método conhecido para obter uma assinatura geoquímica (*analytical fingerprint*) do minério de coltan é mais complexo, caro e demorado. Foi desenvolvido recentemente, pela Agência Federal de Geociências e Recursos Naturais (BGR, Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe) da Alemanha, um procedimento para certificar minérios de coltan oriundos da África (MELCHER et al., 2008 e 2009). Os autores asseveram que esta é “a primeira técnica deste tipo no mundo.” Concentrados de coltan são estudados e analisados em um modo “step-by-step” (GRAUPNER & MELCHER, 2012), contudo, o fingerprint é obtido a partir da análise de 21 elementos químicos do minério de coltan, e utiliza uma vasta quantidade de técnicas combinadas (**Figura 18**):

- Estudo dos grãos preparados (seções polidas) por microscopia petrográfica de luz refletida e microscopia eletrônica de varredura (MEV).
- Elementos maiores e traços (21 elementos químicos) por análise de fluorescência de raios-X, ICP-MS, ICP-OES e microsonda eletrônica.

- Determinação de elementos traços em baixos níveis por ablação a laser (LA ICP-MS).
- Composição mineralógica por difratometria de raios-X.
- Determinação mineralógica quantitativa por MEV e software específico.
- Datação urânio-chumbo por espectrometria de massa por ionização térmica convencional (TIMS).

Example of a Flow Chart for Tantalum Ore Concentrates from Africa

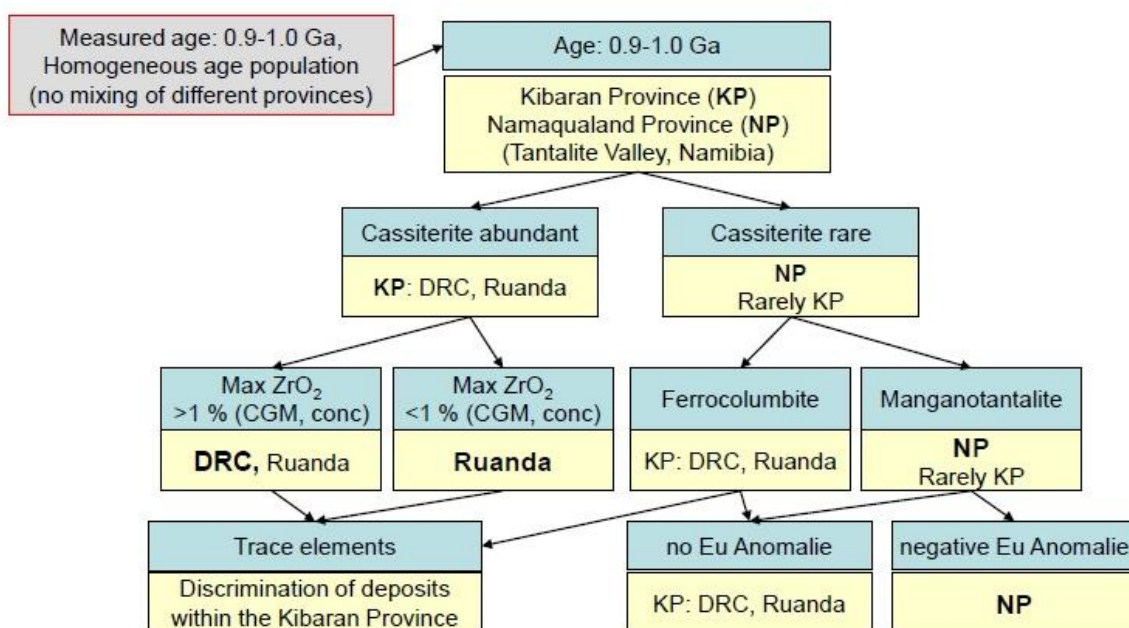


Figura 18 – Fluxograma exemplo do método desenvolvido pela Agência Federal de Geociências e Recursos Naturais (BGR). Fingerprint de minério africano de coltan das Províncias Kibaran (República Democrática do Congo, DRC), Ruanda e da Província Namaqualand (Namíbia). Notar a grande diversidade de procedimentos analíticos e a necessidade de avaliação final combinada (MELCHER, 2013 e GRAUPNER & MELCHER, 2012).

O estudo geoquímico apresentado nesta tese se baseia somente em análises químicas de quatro elementos U, Th, Nb e Ta e determinação mineral com difratometria, regularmente feitos pela CNEN em lotes comerciais de coltan.

2 RESULTADOS

2.1 RESULTADOS PRELIMINARES

2.1.1 Mineralogia, geoquímica e radiação gama ambiental

Foram inspecionados 50 garimpos na região de Parelhas, no início da pesquisa. Desses, 16 garimpos foram alvo de detalhamento, nove encontraram-se abandonados e sete estavam em atividade. Mais cinco foram estudados por último e constam no capítulo 2.2. A localização dos garimpos por coordenadas geográficas e a situação atual, na época, constam da **Tabela 4**.

Tabela 4 – Coordenadas geográficas dos garimpos investigados e situação atual, na época.

	GARIMPO	MUNICÍPIO	Coordenadas geográficas		SITUAÇÃO ATUAL
			LATITUDE S	LONGITUDE W	
01	Saco do Xique-Xique	Carnaúba dos Dantas (RN)	06° 34' 15,5"	36° 32' 17,8"	Inativo
02	Serrote do Maracujá	Carnaúba dos Dantas (RN)	06° 34' 23,7"	36° 33' 13,6"	Inativo
03	Alto da Franca	Frei Martinho (PB)	06° 27' 22,3"	36° 29' 58,1"	Ativo
04	Alto das Areias	Carnaúba dos Dantas (RN)	06° 34' 23,4"	36° 33' 00,8"	Inativo
05	Alto do Lajedo	Carnaúba dos Dantas (RN)	06° 34' 23,7"	36° 33' 01,1"	Inativo
06	Alto dos Mamões	Equador (RN)	06° 53' 00,1"	36° 43' 02,0"	Ativo
07	Alto do Giz	Equador (RN)	06° 53' 41,0"	36° 42' 58,0"	Inativo
08	Alto Quintos do Meio	Parelhas (RN)	06° 48' 36,5"	36° 41' 06,7"	Ativo
09	Malhada Vermelha	Parelhas (RN)	06° 48' 26,9"	36° 38' 53,1"	Ativo
10	Alto Manoel Sabino	Equador (RN)	06° 54' 51,9"	36° 43' 40,0"	Ativo
11	Alto do Trigueiro I	Nova Palmeira (PB)	06° 39' 56,5"	36° 31' 42,4"	Ativo
12	Alto do Trigueiro II	Nova Palmeira (PB)	06° 39' 24,4"	36° 31' 56,5"	Inativo
13	Alto do Trigueiro III	Nova Palmeira (PB)	06° 39' 15,4"	36° 31' 48,6"	Ativo
14	Alto do Trigueiro IV	Nova Palmeira (PB)	06° 39' 36,4"	36° 31' 46,5"	Inativo
15	Alto do Jacu	Equador (RN)	06° 53' 55,4"	36° 41' 44,7"	Inativo
16	Alto das Cabeças	Parelhas (RN)	06° 41' 58,7"	36° 38' 05,1"	Inativo
17	Alto da Mata	Parelhas (RN)	06° 48' 11,64"	36° 41' 02,30"	Ativo
18	Alto de Antônio Porfírio	Parelhas (RN)	06° 45' 59,64"	36° 38' 30,30"	Ativo
19	Alto da Boa Vista	Parelhas (RN)	06° 37' 27,65"	36° 38' 36,30"	Ativo
20	Alto Pé da Serra	Parelhas (RN)	06° 40' 00,64"	36° 37' 49,30"	Ativo
21	Alto País da Lua	Parelhas (RN)	06° 39' 39,65"	36° 37' 25,30"	Ativo

A inspeção nos pegmatitos da Província Pegmatítica da Borborema revelou a presença de minerais de coltan radioativos com alteração para minerais secundários chamados de “gumita”. Esta expressão foi usada nesta tese por simplicidade. Também foram encontrados cristais de uraninita frescos, e pseudomorfoses de “gumita” fortemente radioativas na forma cúbica octaédrica da uraninita, e cujos teores de urânio atingiram valores acima de 40 % de U_3O_8 .

Foram detectados pontos com radiação muito elevada em quatro garimpos. Três deles foram selecionados para detalhamento radiométrico. O valor mais alto medido foi de 30 mR/h (medida pontual no contato com o mineral). Todos os garimpos em atividade tinham como produção primária outros tipos de minérios, como feldspato e quartzo; e, secundariamente, a coltan. A **Tabela 5** apresenta a descrição mineralógica e radiométrica dos pegmatitos.

Tabela 5 – Resumo dos dados de campo (mineralogia e radiometria).

Garimpo	Radiação BKG (CPS)	Radiação Máx (CPS)	Mineralogia
Alto do Trigueiro I	60	4000	Qtz, Kfs, Ms, mica verde, Py, uraninita, coltan, Bt, “gumita”
Alto do Trigueiro II	60	>15000	Qtz, Ms, mica verde, Py, “gumita”, uraninita, coltan.
Alto do Trigueiro III	40-50	>15000	Qtz, Kfs, Ms, mica verde, py, mineral azul amorfo, uraninita, “gumita”, coltan.
Alto do Trigueiro IV	60	10000	Qtz, Qtz mórion, Kfs cinza, Py, “gumita”, mineral azul amorfo.
Alto Quintos do Meio	40-50	4000	Qtz, Grt, mica verde, Kfs cinza e branco, Kln, Py, “gumita”, uraninita, coltan.
Alto dos Mamões	50	180	Qtz rosa, Kfs branco, Ab, Kln, Ms, coltan
Alto Malhada Vermelha	40	500	Qtz, Kfs branco e rosa, mica verde, Ms, mineral amorfo azul, “gumita”, coltan.
Alto do Giz	50	160	Qtz, Kfs branco, Ab, Ms, coltan.
Alto da Franca	50	1000	Qtz, Kfs, mica verde, Ms, Grt, Py, Brl, coltan
Alto das Cabeças	60	190	Núcleo de quartzo de 100 por 10 metros com box de Brl, magnetita, mica, coltan.
Alto Manoel Sabino	40-50	100	Qtz branco e rosa, Kfs branco, Ab, Ms, Py, coltan.
Saco do Xique-Xique	40-50	400	Qtz, Kfs rosa e Ab, Ms, Schrl, mineral verde argiloso
Serrote do Maracujá	40-50	60	N.A. (alagado)
Alto das Areias	30-40	100	Qtz, Kfs branco com textura gráfica, Ab, mica verde, Ms, Spd, óxido de manganês, coltan.
Alto do Lajedo	50	500	Qtz, Ms, Kfs branco e rosa, Lpd, Brl, Srl, Spd, coltan.
Alto do Jacu	60	3000	Qtz branco e rosa, Kfs branco e rosa, Ms, “gumita”.

Ab – Albita, Brl – berilo, Bt – biotita, Grt – granada, Kfs – K-feldspato, Kln – Kaolinita, Lpd = lepidolita, Ms – muscovita, Py – pirita, Qtz – quartzo, Srl – Schorlita Spd = espodumênio (Símbolos referente "list of symbols for rock and ore forming minerals", IMA, 2013).

2.1.1.1 Pegmatito Alto do Trigueiro I

No garimpo Alto do Trigueiro I, é explotado, principalmente, o feldspato branco para abastecimento da indústria de cerâmica e o quartzo industrial e ornamental. A exploração, além de insegura, é feita de forma arcaica e artesanal. Constitui-se de uma banqueta alinhada ao longo da direção 45° - 225°, com paredes irregulares e profundidade de 15 a 20 metros e largura média de 10 metros.

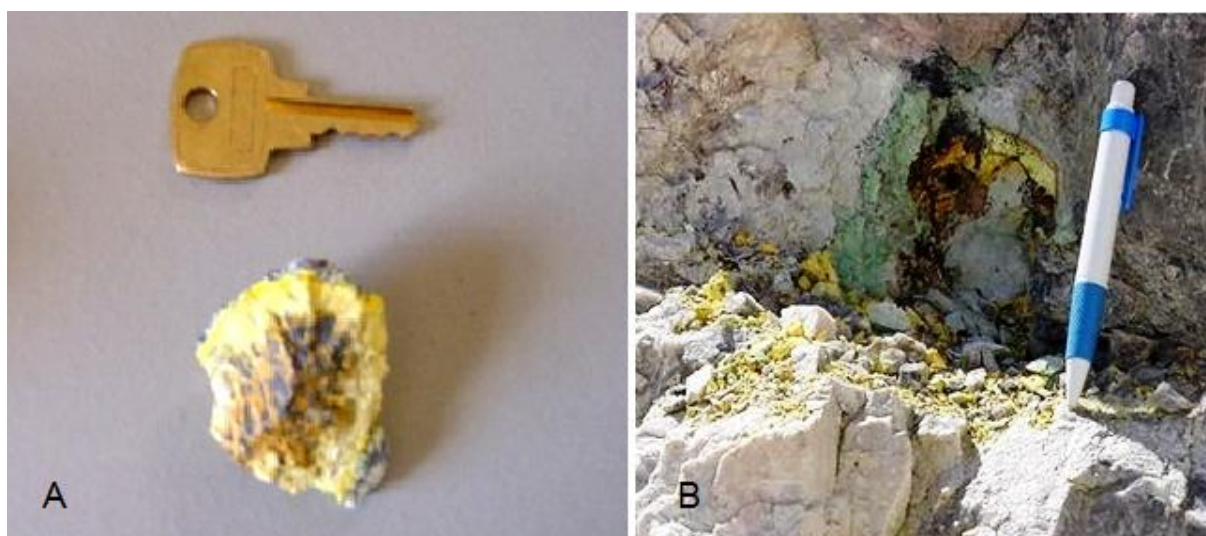


Figura 19 – Uraninita rica em rádio (^{226}Ra) com capa de alteração de “gumita” (A). “Gumita” argilosa, a partir de coltan (B). Desagregação feita por garimpeiros.

Foi identificada uraninita com alteração para minerais secundários amarelados (**Figura 19**). Forma núcleos que se distribuem irregularmente nas paredes da banqueta, ao longo de um nível localizado de dois a três metros acima da superfície, dispersos, ora em fraturas, ora em níveis de aglomeração de quartzo e muscovita, ora associados a feldspato e quartzo. Não foi observada em associação com minerais de coltan.

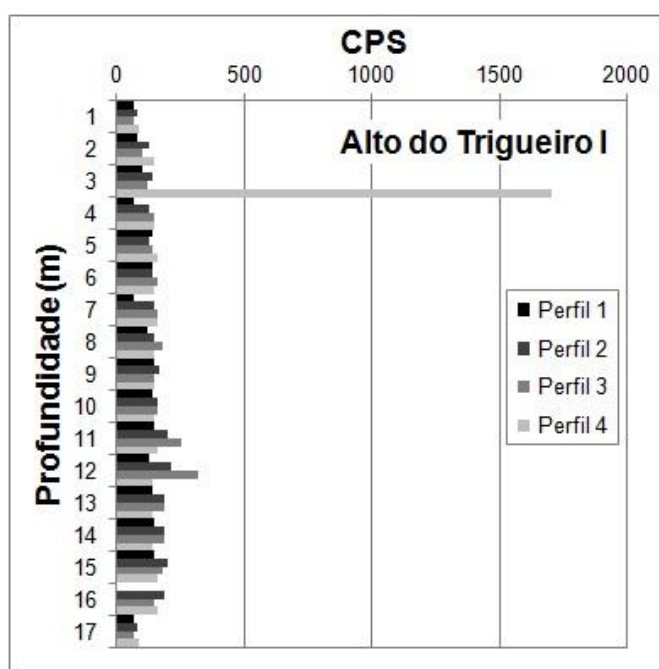


Figura 20 – Quatro perfis cintilométricos verticais (esquerda, **Tabela B1**, APÊNDICE) nas paredes da banqueta (direita) do garimpo Alto do Trigueiro I.

No garimpo Alto do Trigueiro I foram realizados quatro perfis gamarradiométricos com cintilômetro SPP3 com cabo de 20 metros de comprimento, todos ao longo da parede de um mesmo lado da banqueta, espaçadas de cinco metros entre si (**Figura 20**). O *background* (BKG) medido fora da banqueta foi de 40 - 50 CPS e 0,03 mR/h. A taxa de exposição média, na altura de um metro da superfície da banqueta e a um metro das paredes foi de 0,05 mR/h, com máximo de 11 mR/h a cerca de um cm de um núcleo de “gumita”.

2.1.1.2 Pegmatito Alto do Trigueiro III

A exploração principal do garimpo Alto do Trigueiro III é K-feldspato branco usado na indústria de cerâmica e quartzo ornamental. Trata-se de uma banqueta de aproximadamente 120 metros, com profundidade máxima de 50 metros e largura variável média de 20 metros. As condições de trabalho são também péssimas.

No interior da banqueta, em contato com o quartzito encaixante (**Figura 21A**), observa-se um nível de aproximadamente quatro metros de espessura, a oito metros da superfície externa, e entre seis a oito metros do fundo local da banqueta, que é uma zona rica em muscovita e quartzo fumê, onde se concentram também cristais de uraninita e coltan com crosta de alteração amarelada a esverdeada (**Figura 19**) e muito radioativa (CPS >15.000).

Foram executados cinco perfis ao longo das paredes da banqueta do garimpo Alto do Trigueiro III (**Figura 22**). Taxas de contagens foram medidas com o cintilômetro SPP-3. As altas taxas-de-contagem ocorrem, porque durante a descida, o detector passou sobre ou muito próximo de cristais de uraninita, de coltan radioativa ou de “gumita”.

No bota-fora do garimpo Alto do Trigueiro III, observam-se fragmentos de “gumita” de cor amarelada (**Figura 23A**). Em direção à frente de lavra, ocorre outro nível irregular de feldspato, muscovita, coltan, uraninita e minerais secundários de urânio nas duas paredes (**Figura 23B**). Esse nível se localiza a quatro metros acima da frente de lavra atual. O resultado do levantamento da taxa de exposição (mR/h) no interior da banqueta é apresentado na **Tabela 6**. O BKG medido fora da banqueta foi de 0,03 mR/h.

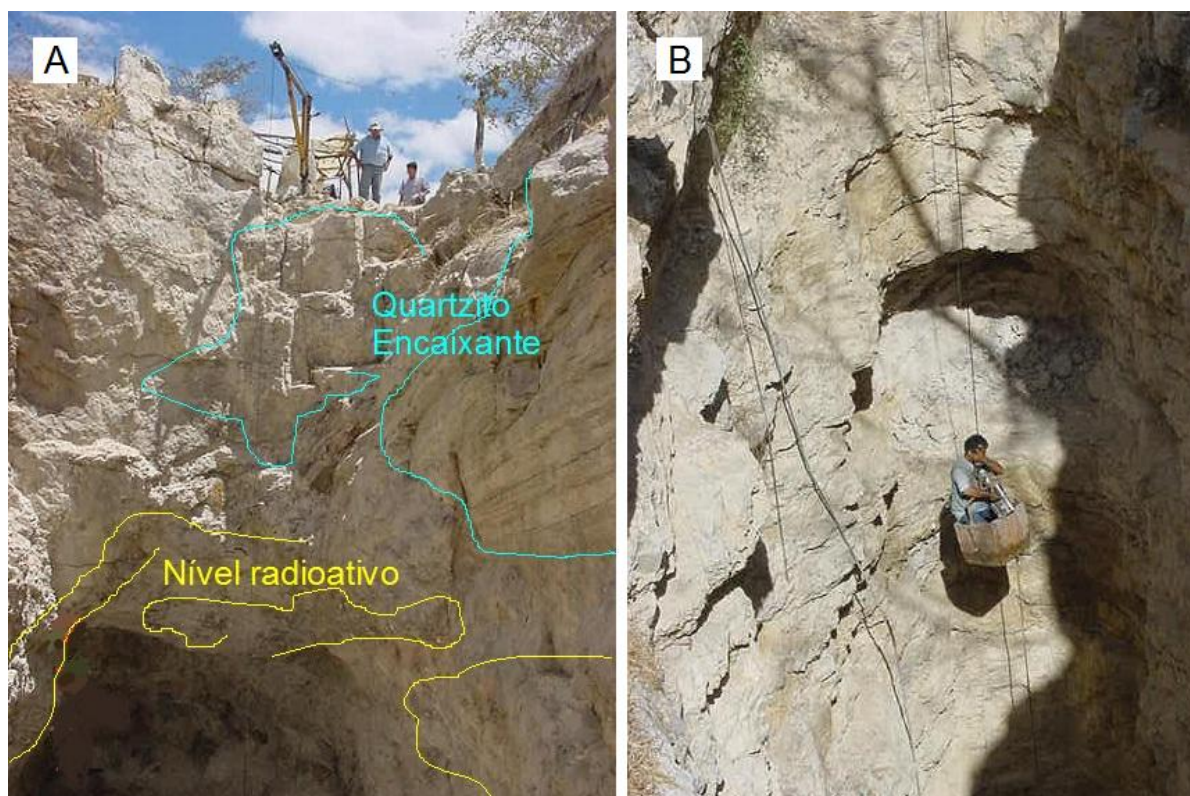


Figura 21 – Garimpo Alto do Trigueiro III, escavação com nível radioativo e quartzito encaixante demarcados (A) e garimpo Alto dos Mamões (B), sistema de transporte (em caçambas).

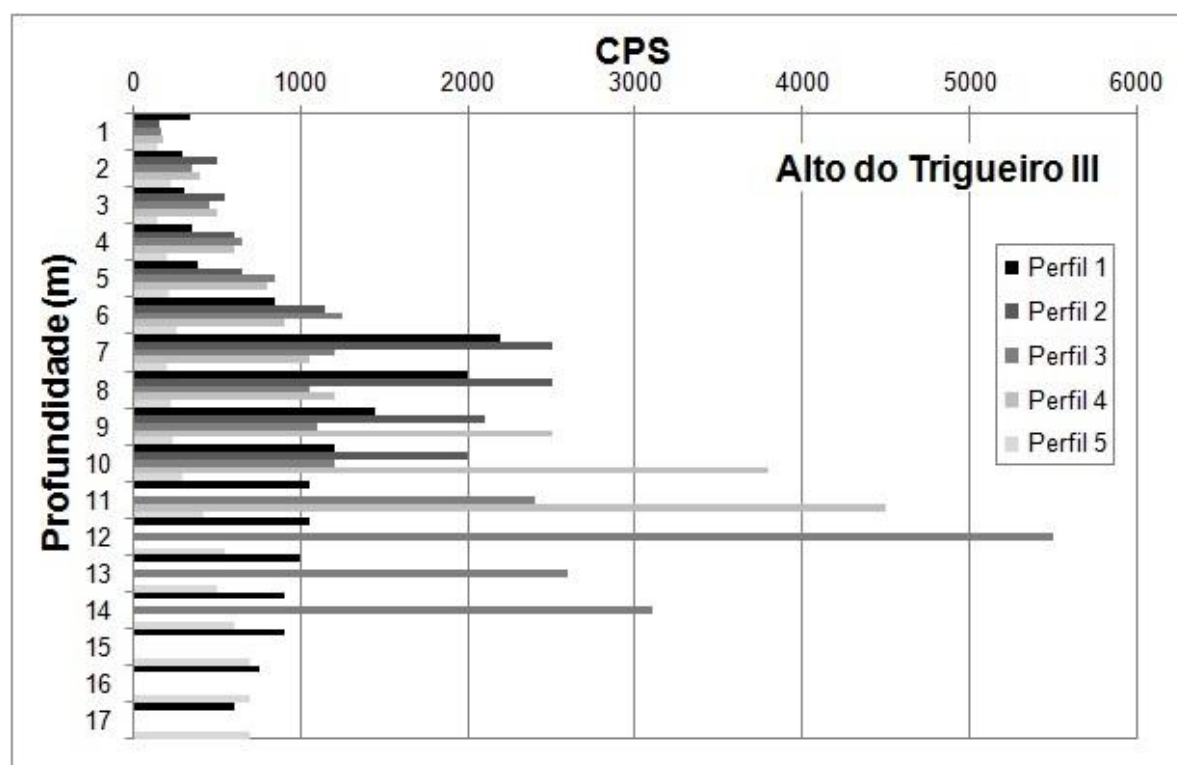


Figura 22 – Cinco perfis cintilométricos verticais (Tabela B2, APÊNDICE) nas paredes da banquetta do garimpo Alto do Trigueiro III.

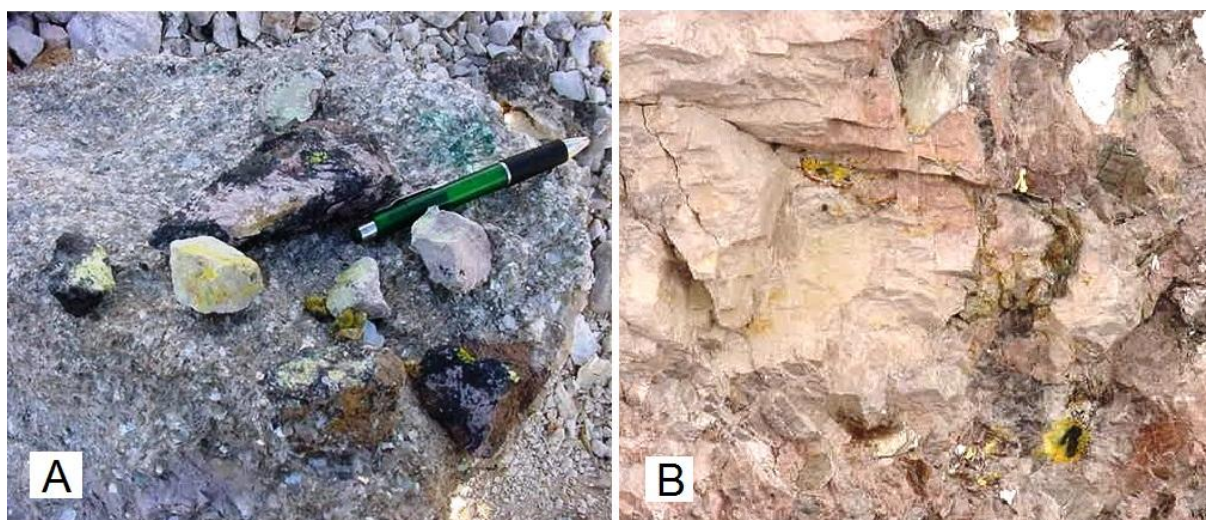


Figura 23 – Trigueiro III: Fragmentos minerais recobertos por crostas amarelas radioativas (A). Nível irregular de feldspato, muscovita, coltan, uraninita e “gumita” (B, escala 3 x 3 m).

Tabela 6 – Taxas de exposição no interior da banqueta do garimpo Alto do Trigueiro III.

Local	Taxa de Exposição (mR/h)
Parte central da banqueta, a um metro do fundo	0,3; 0,25; 0,1
A um metro das paredes	0,5; 0,15; 0,08; 0,16
Pontos selecionados em contato com a parede	2,0; 1,5; 3,5; 7,0; 8,5; 4,0; 1,4; 1,0; 20,0 (núcleo de “gumita”)
Frente de lavra, a um metro da parede	0,15
Fragmentos de “gumita” na superfície (contato a um metro)	0,8 – 0,25

Foram coletadas quatro amostras radioativas. Em três amostras confirmou-se minerais de urânio e um de coltan (**Tabela 7 e 8**).

Todas as amostras, cedidas pelos garimpeiros, estavam armazenadas junto a outros tipos de minerais, mas, para os garimpeiros, tratava-se de um pequeno lote de minério de coltan. A maioria dos cristais apresentou crosta de “gumita” (10000 CPS em contato com o recipiente). Uma amostra de coltan não apresentava essa crosta de alteração. A difratometria de raios-X, realizada pelo CDTN/CNEN, em duas dessas amostras (mineral primário e secundário de urânio), identificou os minerais reportados na **Tabela 7**. A análise por fluorescência de raios-X da amostra de mineral secundário de urânio é descrita na **Tabela 8**.

Tabela 7 – Análise de minerais de urânio por difratometria de raios-X.

Amostra	Mineral Identificado		
	Predominante (> 80%)	Menor (< 5%)	Minoritário (< 3%)
Mineral primário	Uraninita	Curita Paraschoepita Uranofano	-
Mineral secundário	Uranofano	Kasolita	Curita Meta-Torbenita Uraninita

Análise realizada pelo CDTN/CNEN

Tabela 8 – Análise qualitativa por fluorescência de raios-X de mineral secundário de urânio.

Amostra	Elemento detectado*			
	Principal > 10%	< 10%	> 5%	< 0,1%
Mineral secundário	U	Al, Si	Cu, Fe, Mn, Pb	P

*Estimativa dos teores dos elementos químicos detectados. Análise realizada por CDTN/CNEN

Fórmulas químicas e aparência dos minerais identificados constam na **Tabela 9**. Os minerais secundários têm predominantemente as cores típicas da chamada “gumita”.

2.1.1.3 Pegmatito Alto Quintos do Meio

O garimpo Alto Quintos do Meio explora feldspato cinza. Ocorre “gumita” associada à uraninita. No bota-fora foi encontrada uma amostra de coltan de hábito planar, com aproximadamente 10 x 5 cm, cuja taxa de contagem cintilométrica, a 1 cm do mineral chegou a 4000 CPS, sendo 100 vezes mais alto do que o BKG de 40 a 50 CPS.

Distante da frente de lavra atual, observou-se a maior intensidade na taxa de contagem, tendo atingido um máximo de 30 mR/h, no contato com um núcleo de cristais de uraninita (**Figura 24A**). A análise química consta na **Tab. 8**.

Cristais de uraninita ocorrem neste pegmatito, assim como no Trigueiro II e III. Já no Trigueiro IV, somente observou-se “gumita” a partir de coltan. Nos garimpos Alto Quintos do Meio e Alto Trigueiro II e III, uraninita e minerais de coltan foram observados em meio a um

aglomerado de muscovita, feldspatos e quartzo. No Trigueiro IV, minerais de coltan são vistos como inclusão em quartzo mórion (**Figura 24B**) e em feldspato.

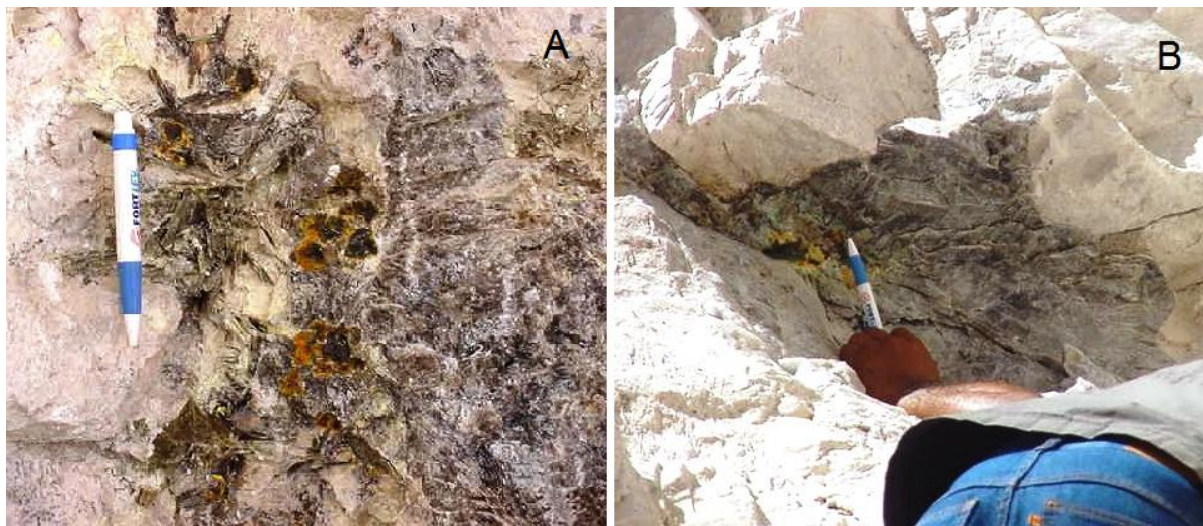


Figura 24 – Cristais de uraninita associadas a quartzo mórion, K-feldspato e muscovita (A, Alto Quintos do Meio). Inclusão de coltan (com coroa de alteração) em quartzo mórion associado a albite (B, Trigueiro IV).

Os minerais de urânio identificados constam na **Tabela 9** com suas fórmulas químicas e uma visão geral da sua aparência.

Tabela 9 – Minerais de urânio encontrados nos garimpos em ordem alfabética, fórmulas e aparência.

Nome (IMA)/Brasil	Fórmula*	U (%)**	Aparência***
Curite/Curita	$Pb^{3+x}[(UO_2)_4O^{4-x}(OH)^{3-x}] \cdot 2 \cdot 2H_2O$	63,34	Cristais prism.-aciculares estriados, agregados de agulhas finas, maciço; vermelho-laranja, escarlate.
Kasolite/Kasolita	$Pb(UO_2)(SiO_4) \cdot H_2O$	40,53	Agregados radiais, crostas, fibroso, colomorfo, ocre-amarelo, marrom-âmbar; raramente amarelo-limão, verde ou avermelhada laranja
Metatorbernite/ Meta-Torbenita	$Cu(UO_2)_2(PO_4)_2 \cdot 8H_2O$	50,77	Pseudomorfo depois da torbernita, tabular, folhetas, rosetas, verde claro – verde escuro.
Paraschoepite/ Paraschoepita	$UO_3 \cdot (2-x) H_2O$	73,91	Cristais peq., prismáticos-tabular, amarelo - ligeiramente esverdeado.
Uraninite/ Uraninita	UO_2	88,15	Cristais cúbicos raros, maciço, colomorfo de cor aço-preto - preto de veludo, marrom, cinza.
Uranophane- α Uranofano- α	$Ca(UO_2)_2(SiO_3OH)_2 \cdot 5H_2O$	40,59	Agregados estrelados; crostas fibrosas ou feltradas, maciço, tons de amarelo, marrom-mel; também esverdeada, amarelo-laranja.
Uranophane- α Uranofano- β	$Ca(UO_2)_2(SiO_3OH)_2 \cdot 5H_2O$	60,70	Agregados radiais ou revestimentos aveludados. Verde amarelado ao amarelo-limão.

Referências: *IMA (2013); **WEBMINERAL (2013); ***ANTHONY *et al.* (2013).

2.1.1.4 Vários pegmatitos

A **Tabela 10** mostra as análises das amostras radioativas coletadas nos garimpos da região. Para a seleção dos garimpos, considerou-se as taxas-de-contagem, características mineralógicas (amostras escuras, densas, alteração amarelada, etc.).

Tabela 10 – Resultados de análise de amostras selecionadas, coletadas de vários garimpos investigados.

Amostra	SPP-2 (CPS)	SPP-3 (CPS)	Massa (g)	Análise química (%)			
				U ₃ O ₈	ThO ₂	Nb ₂ O ₅	Ta ₂ O ₅
Alto do Trigueiro I	2500	2500	247,2	49,8	0,32	5,66	3,4
Alto do Trigueiro II - Feldspato	1000	750	47,5	0,11	< 0,001	0,09	< 0,005
Alto do Trigueiro III	160	125	99,8	1,75	0,01	44,6	31,4
Alto do Trigueiro III	>15000	>15000	182,3	57,5	0,31	2,24	< 0,005
Alto do Trigueiro (Nezinho)	>15000	>15000	68,9	68,3	0,22	2,56	2
Alto do Trigueiro (Nezinho)	>15000	>15000	54,3	58,5	0,17	2,42	1,8
Alto Quintos do Meio	5000	7500	10,1	43,6	N.A.	1,7	0,9
Alto do Giz	350	300	304,8	0,19	0,1	5,51	4,7
Alto das Areias	390	310	108,0	0,35	< 0,003	52,4	25,1
Malhada Vermelha	1300	1300	6,9	0,92	0,01	56,9	11,8
Malhada Vermelha/2	600	490	132,7	0,52	< 0,003	64	13,4
Alto Manoel Sabino	1250	1000	272,1	0,78	0,79	9,68	54,5

N.A.: Não analisado. SPP-2 (CNEN), SPP-3 (UFRJ), Massa (CNEN), Análise Química (LAPOC/CNEN)
BKG: SPP-2 e SPP-3 150 CPS.

A **Tabela 11** resume os resultados de análise de amostras dos tipos minerais que ocorrem nos garimpos inspecionados.

Tabela 11 – Análises químicas de amostras que ocorrem nas frentes-de-lavra dos garimpos.

Garimpo	Amostra	Teor de U ₃ O ₈ (%)	Teor de ThO ₂ (%)
Mineradora local	Feldspato branco	< 0,003	< 0,003
Mineradora local	Acessórios máficos	2,1	0,1
Mineradora local	Quartzo e acessórios félsicos	0,01	< 0,003
Trigueiro I	Feldspato branco	0,04	< 0,003
Trigueiro I	Acessórios máficos	0,11	< 0,003
Trigueiro I	Quartzo e acessórios félsicos	2,1	< 0,003
Trigueiro III	Feldspato branco	< 0,003	< 0,003
Trigueiro III	Acessórios máficos	0,03	< 0,003
Trigueiro III	Quartzo e acessórios félsicos	< 0,003	< 0,003
Trigueiro III	Feldspato vermelho	< 0,003	< 0,003
Quintos do Meio	Feldspato Branco	< 0,003	< 0,003

Garimpo	Amostra	Teor de U_3O_8 (%)	Teor de ThO_2 (%)
Quintos do Meio	Acessórios máficos	0,07	0,02
Quintos do Meio	Quartzo e acessórios félsicos	0,01	< 0,003
Cabeças	Feldspato branco	< 0,003	< 0,003
Cabeças	Acessórios máficos	< 0,003	< 0,003
Cabeças	Quartzo e acessórios félsicos	< 0,003	< 0,003

2.1.2 Segurança do trabalho

Os garimpos da região são explotados de forma arcaica, artesanal, predatória e bastante insegura. Os procedimentos sem controle e sem equipamento adequado são de alto risco para os trabalhadores como mostram as fotografias da **Figura 25** e também da **Figura 19B**.

O levantamento radiométrico revelou que, de fato, os valores de radiação no contato com minerais de urânio são altíssimos e ultrapassam a as taxas máximas de dose anual média para indivíduos do público (veja caixa infra), mas são esparsos nas paredes, e situados na interface superior externa do pegmatito. De modo geral, quanto mais se aprofunda a mineração, menor a ocorrência de uraninita e coltan radioativas.



Estimativa da exposição anual média 360 mrem (EUA).

Dose máxima permitida para adulto 50.000 mrem/ano (mãos), 15.000 mrem/ano (olhos), dose letal = LD (50) exposição 400.000 a 500.000 mrem. Veja páginas xiii - xv, "Símbolos e convenções" e **Tabelas 2 e 3**, seção 1.5.3.

Fonte: WEBMINERAL (2013).

Os limites da caixa acima, dos EUA, apesar de terem equivalência na legislação brasileira, não são aplicáveis imediatamente, porque, no Brasil, os limites de dose somente se referem a trabalhadores ou indivíduos do público que sejam expostos à radioatividade em instalações nucleares ou radioativas ou em decorrência da atividade destas, e nas quais os garimpos não se incluem. Há uma norma nuclear ainda em elaboração que irá regular a atividade de mineração, mas devido à informalidade da atividade garimpeira, mesmo se contemplados na norma, a fiscalização de garimpos dificilmente será promovida.

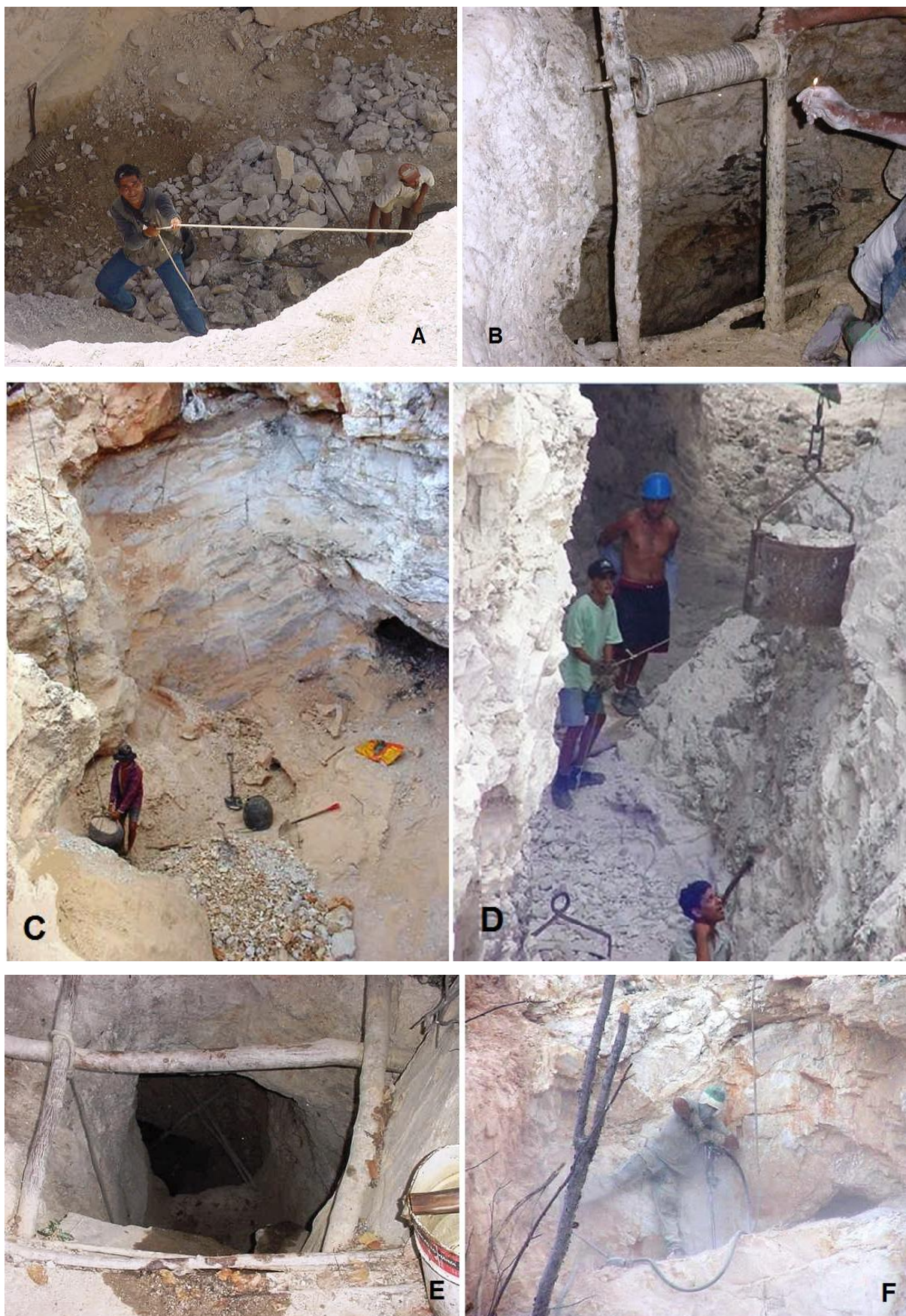


Figura 25 – Condições de trabalho inseguras: Garimpo Quintos do Meio (A), Garimpo Alto do Giz (B, E): Falta de EPI e iluminação à vela. C, F Malhada Vermelha, D Trigueiro I.

2.1.3 Geoquímica do minério de coltan dos lotes inspecionados

Inicialmente, tentou-se obter resultados a partir de diagramas binários, ternários e quaternários comumente utilizados em geoquímica (ROLLINSON, 1994; ALBARÈDE, 1995), a partir dos quatro elementos analisados. Contudo, essas tentativas não resultaram em separação química desses pegmatitos. A modelagem com o quadrilátero de columbita (ERCIT, 1994), habitual para minerais do grupo columbita não foi possível por falta de análises de Fe e Mn.

Os resultados geoquímicos, apresentados com diagramas de dispersão (**Figuras 26 e 27**), denotam a grande variação dos quatro elementos, urânio, tório, nióbio e tântalo nas amostras de coltan dos lotes de minério oriundos da região de Parelhas/RN (**Tab. A2, APÊNDICE**). Ambos os gráficos (A e B) da **Figura 26** mostram que o minério de coltan oriundo de Parelhas é, majoritariamente, tantalita (13 tantalita/9 columbita). O conteúdo mais alto de U ocorre numa amostra de coltan com uma composição de tantalita perto da divisão com columbita (**Figura 26A**). Já a **Figura 26B** mostra que a columbita é ligeiramente mais rica em Th do que a tantalita e a **Figura 27A** que o teor molar de Th tende a ser maior do que o do U num cômputo geral.

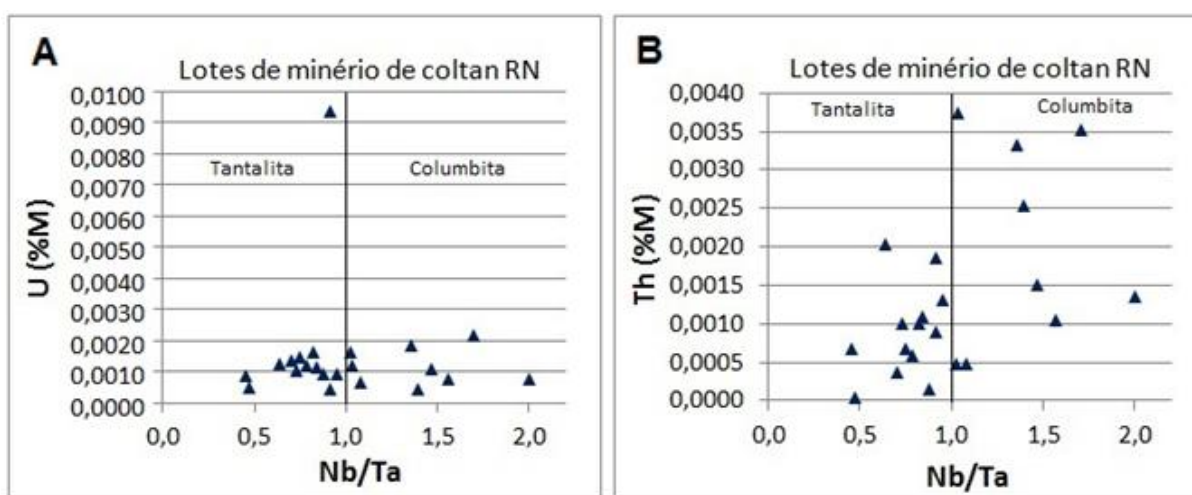


Figura 26 – Partição de urânio (A) e tório (B) em minério de coltan de Parelhas. Amostras de lotes comerciais fiscalizados pela CNEN (**Tabela A2, APÊNDICE**).

U e Th no minério de coltan dos lotes fiscalizados pela CNEN têm amplo espectro de enriquecimento (**Figura 26A e B e 27A**), desde os mais ricos em Ta até os mais ricos em Nb,

tendo, contudo, tendência a ter valores mais altos desses elementos quando o valor de Nb aumenta.

Estes fatos motivaram o autor a modelar razões de U/Th versus as razões Nb/Ta, mesmo não sendo um método até então utilizado. Na realidade, a razão Nb/Ta representa a composição (sem ânions) da série columbita-tantalita e a variação da razão U/Th parecia sistemática.

Para a modelagem geoquímica, os valores das análises químicas de U, Th, Nb e Ta do minério de coltan dos lotes comerciais estudados foram convertidos para os respectivos valores de concentração molar (%M), veja item 1.6.5 (APÊNDICE, **Tabela A2**). Usando as razões molares de U/Th e Nb/Ta plotadas em gráficos bivariantes, afinal, conseguiu-se uma distribuição com quatro *trends* distintos (**Figura 27B**).

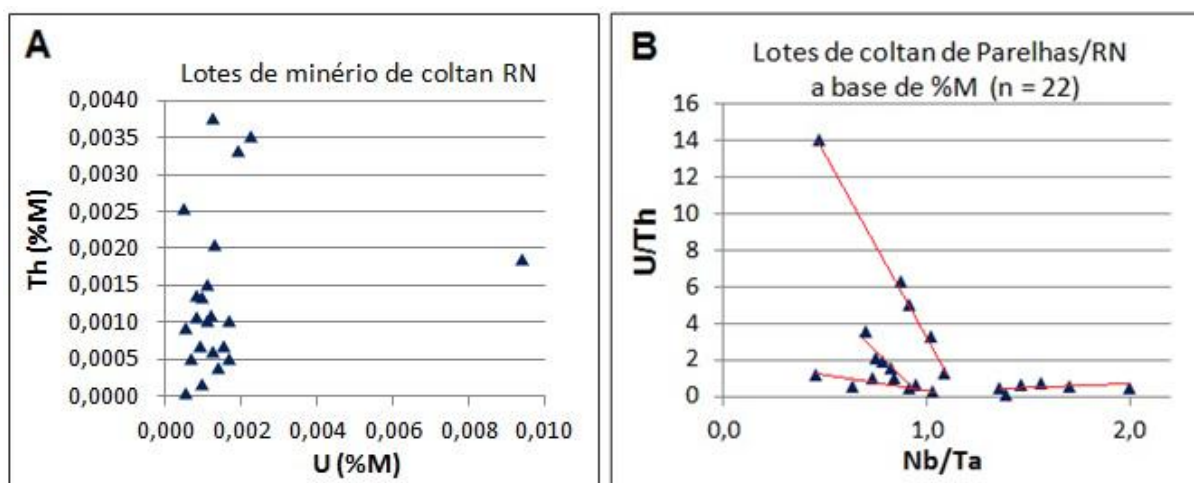


Figura 27 – Razão U/Th (**A**) e Nb/Ta versus U/Th (**B**) em minério de coltan de Parelhas. Quatro *trends* magmáticos (**B**). Amostras de lotes comerciais fiscalizados pela CNEN (**Tabela A2**, APÊNDICE).

Para verificar se estes *trends* estariam associados aos quatro tipos estruturais de pegmatitos descritos por ARGAWAL (1992) para a região, o estudo foi então estendido a pegmatitos selecionados pela estrutura e ao comportamento geoquímico de seus minerais de coltan, conforme será apresentado no capítulo relativo aos resultados finais.

2.1.4 Discussão dos resultados preliminares

O resultado da modelagem geoquímica, ilustrado com a **Figura 27B**, Nb/Ta vs. U/Th, mostra quatro *trends*, possivelmente relacionados aos quatro tipos de pegmatitos, descritos na literatura (ARGAWAL, 1992), se refletindo na variação da composição da coltan. Como mencionado no item 1.4.1, segundo este autor, os pegmatitos são subdivididos em quatro grupos estruturalmente controlados. Portanto, o autor concluiu que estes quatro *clusters* deste diagrama possivelmente são relacionados aos quatro eventos de formação dos pegmatitos.

Parece que cada evento de *emplacement* de pegmatito impôs suas próprias razões elementais (**Figura 27B**) e o efeito do intemperismo, exsolução dos íons maiores e posterior formação da “gumita” e lixiviação das espécies móveis, com consequente acumulação das espécies menos solúveis, não afeta as razões elementais impostas durante os eventos intrusivos. Possivelmente, a taxa de lixiviação remobiliza razões constantes, embora atuando sobre razões iniciais diferentes: a partição é constante. Ou a mudança nas relações continua sendo típico para cada tipo, conservando padrões características para cada tipo de pegmatito.

Finalmente, em relação às condições de exposição radioativa dos trabalhadores dos garimpos, algumas considerações devem ser feitas:

- 1) As ocorrências dos minerais de urânio identificados em alguns garimpos são pontuais e esparsas, formando “núcleos cristalinos” com diâmetro médio de cinco centímetros. Embora não represente risco radiológico na frente da lavra, sua concentração por estocagem é praticada pelos garimpeiros. Normalmente, os locais de estocagem são garagens ou depósitos dentro de residências. Este fato traz em si grave risco de exposição externa à radioatividade gama e em locais fechados pode levar ao aumento da concentração de Radônio no ar.
- 2) As taxas de exposição medidas a um metro das paredes e nos pontos centrais ao longo dos eixos das banquetas dos garimpos Alto do Trigueiro I e III e Quintos do Meio, com valores de no máximo 30 mR/h, indicam uma situação preocupante em relação aos trabalhadores, mesmo concorrendo o fato de serem desenvolvidas atividades sazonais, pois o material radioativo é retirado e levado para as residências.

- 3) Em termos ambientais, não se verificou nenhum risco de exposição à radiação gama. Muito embora a radiação alfa e beta não tenham sido medidas, é sabido que esses decaimentos são acompanhados de decaimento gama. Ou seja, sem detecção apreciável de radiação gama, é possível subtender-se que também não há decaimento alfa nem beta.
- 4) Já em termos ocupacionais, é possível que um futuro estudo de proteção radiológica conclua pela necessidade de intervenção na atividade garimpeira, contudo, em decorrência da sazonalidade da atividade, da alta rotatividade da mão-de-obra e da precariedade econômica desses empreendimentos,
- 5) Os garimpos da região são explorados de forma arcaica, com alto risco para os trabalhadores, com baixo rendimento econômico e com aproveitamento inadequado dos depósitos. A atividade ocorre em períodos irregulares e os trabalhadores não são fixos. Em consequência existem vários garimpos abandonados, por estarem alagados ou por não produzirem coltan, nem gemas.

2.2 RESULTADOS FINAIS

2.2.1 Assinatura geoquímica de coltan dos pegmatitos de Parelhas

A relação $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ representa a composição columbita-tantalita nos gráficos seguintes. Para o estudo preliminar, os óxidos foram transformados em percentagens molares, onde a separação entre columbita/tantalita no eixo X está no valor 1 (Nb/Ta mol%), vj. seção 1.5.2. Os diagramas desta seção são baseados na percentagem em peso dos óxidos Nb_2O_5 e Ta_2O_5 . Consequentemente, a separação entre columbita/tantalita está agora em $X = 0,6015$ ($\text{Nb}_2\text{O}_5 \text{ mol}/\text{Ta}_2\text{O}_5 \text{ mol} = 265,82/441,90$).

A correlação da classificação tectônica e os dados estruturais dos pegmatitos tipos I, II, III e IV com os dados químicos de suas amostras resultou na caracterização estrutural-química aqui apresentada, a assinatura geoquímica de coltan. A modelagem dos dados geoquímicos das amostras de coltan em diagramas de variação de $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ vs. U/Th revelou o mesmo padrão com quatro tendências, como no minério de coltan dos lotes comerciais previamente estudados (seção 2.1.3).

Para ilustrar esta correlação, cada tipo de pegmatito é apresentado com dois mapas geológicos detalhados juntamente com o correspondente diagrama de relação elemental das amostras de coltan. Os quatro diagramas são plotados na mesma escala da **Figura 2** (seção 1.2) para possibilitar a comparação dos *trends*.

Inicialmente, os valores da análise dos lotes comerciais de minério de coltan estudados foram convertidos para os respectivos valores de concentração molar (%M) dos elementos U, Th, Nb e Ta (APÊNDICE, **Tabela A2**) para a modelagem geoquímica (**Figuras 26 e 27**). Nesses gráficos, a divisão entre columbita e Tantalita é exatamente no valor 1 no eixo X, porque por definição, é columbita, quando a relação atômica $\text{Nb}/\text{Ta} > 1$, e é tantalita, quando $\text{Nb}/\text{Ta} < 1$, respectivamente.

Usando as razões molares de U/Th e Nb/Ta plotadas em gráficos bivariantes conseguiu-se a distribuição com quatro *trends* distintos, como mostrado na última seção (**Figura 27B**). Embora a modelagem com percentagem molar seja a melhor, pois resulta na variação real da composição mineral, ocorre que a conversão estequiométrica de percentagem para

percentagem molar demanda uma série de cálculos, os quais são um empecilho para a ideia de medição rápida e imediata identificação da fonte da coltan. Assim, para o estudo das amostras dos pegmatitos e a comparação com coltan de lotes comerciais, apresentado neste capítulo, procedeu-se apenas à transformação estequiométrica do óxido de urânio da análise (U_3O_8) no conteúdo percentual de urânio, passando-se o tório também para valores percentuais do elemento, e mantendo-se os óxidos de nióbio e de tântalo em seus valores percentuais conforme analisados, representando a composição da série columbita-tantalita mineralogicamente. A maior diferença entre a apresentação gráfica com valores dos óxidos em comparação a com valores elementais (**Figuras 26 e 27**), é que a divisão entre columbita e tantalita não é mais $X = 1$, mas $X = 0,6015$.

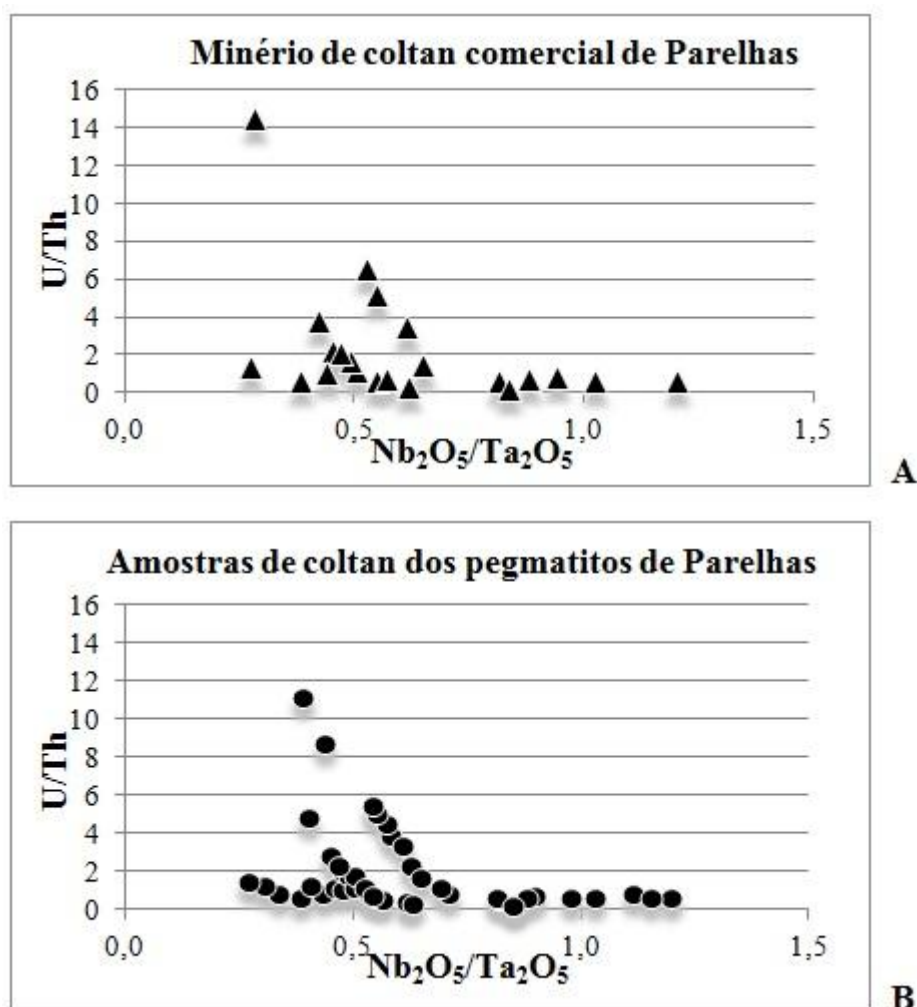


Figura 28: Diagrama de variação de U/Th vs. Nb_2O_5/Ta_2O_5 dos lotes de coltan (A) estudados anteriormente (Tabela A1, APÊNDICE) e (B) de amostras de coltan coletadas nos pegmatitos (Tabelas A3-A6, APÊNDICE).

A diferença entre os *trends* obtidos com as razões das composições molares e das

percentagens em peso é, apenas, um deslocamento dos pontos para a esquerda e uma razão do eixo X menor, porque o conteúdo molar do óxido de tântalo é quase o dobro do valor do óxido de nióbio. Ou seja, verificou-se que não ocorria uma melhora significativa na distribuição gráfica dos pontos que justificasse o excesso de cálculo estequiométrico.

Baseado na classificação tectônica de DNPM/CPRM (1997) e AGRAWAL (1992) foi iniciada a busca de uma correlação entre os quatro tipos estruturais dos pegmatitos, aqui denominados Tipos I, II, III e IV, e os dados químicos das amostras de coltan coletadas neles, o que resultou na caracterização estrutural-química, a assinatura geoquímica aqui apresentada.

Os dados geoquímicos das amostras de coltan coletadas nos pegmatitos foram modelados com diagramas de variação (dispersão) com $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ versus U/Th. Revelou-se o mesmo padrão com quatro *trends* (**Figura 28**) observado no minério de coltan dos lotes comerciais estudados anteriormente (**Figuras 2 e 27B**).

Para ilustrar esta correlação entre o pegmatito fonte e a variação das razões U/Th nas amostras de coltan oriundas dele, são apresentados a seguir, para cada tipo de pegmatito, dois mapas geológicos detalhados, acompanhados do correspondente diagrama de variação das relações elementais das amostras de coltan. Todos esses quatro diagramas têm a mesma escala das **Figuras 2 e 28** para possibilitar a comparação.

2.2.1.1 Pegmatitos Tipo I – concordantes com a foliação principal (S2) e deformados pelas dobras F3

Nove amostras de coltan foram coletadas em dois pegmatitos diferentes do **Tipo I** e analisadas. Estes pegmatitos geralmente são homogêneos. Pedras semipreciosas e minerais metálicos são pequenos, a uraninita está ausente. Os pegmatitos são alocados como *sills* dentro do bandamento dos metassedimentos (**Figura 29**).

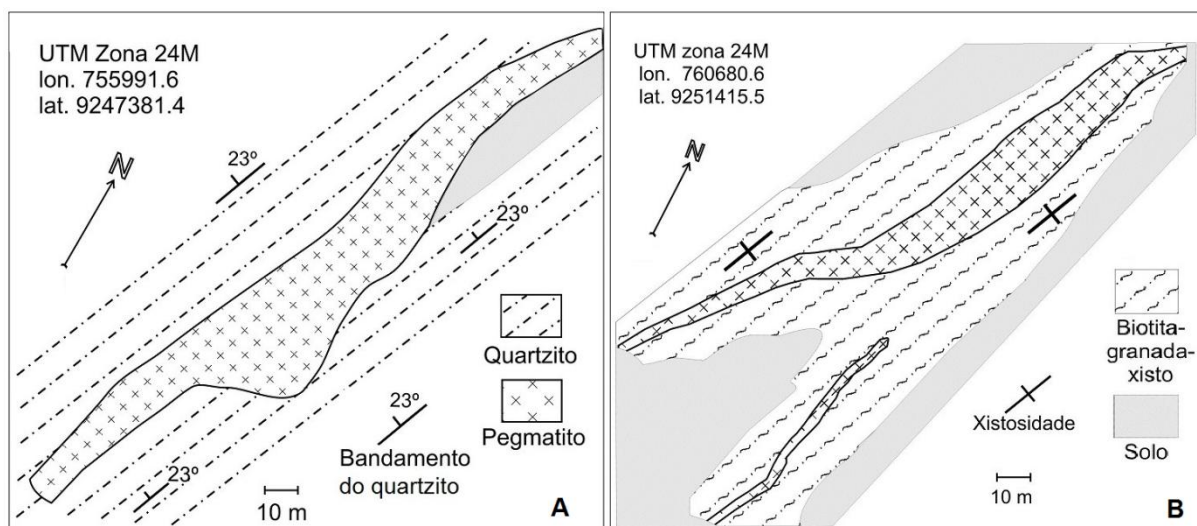


Figura 29 – Mapas detalhados de pegmatitos Tipo I: Alto da Mata (A) e Alto de Antônio Porfírio (B).

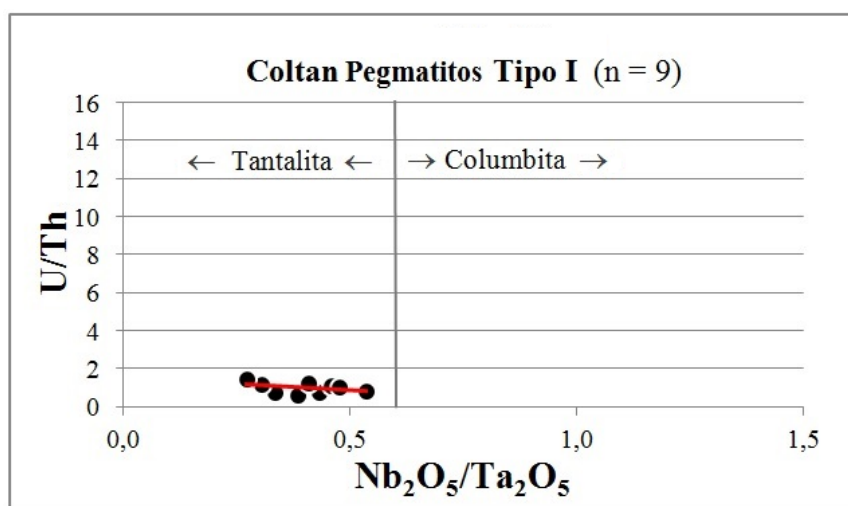


Figura 30 – Variação de U/Th em amostras de coltan de pegmatitos Tipo I (Tabela A3, APÊNDICE).

Os minerais de coltan dos pegmatitos Tipo I são ricos em Ta e as razões U/Th são muito baixas. As razões elementais das amostras plotam quase que paralelamente ao eixo x, com tendência ligeiramente negativa (**Figura 30**). A principal característica dos minerais de coltan destes pegmatitos é pouca variação de U/Th (0,61 – 1,45 apenas) e $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ variando de 0,27 a 0,54. Então, a assinatura geoquímica (*fingerprint*) do Tipo I é a baixa razão de $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ ($\text{Nb}/\text{Ta} < 1$ = tantalita) com pouca variação para U/Th (0,61 – 1,45).

2.2.1.2 Pegmatitos Tipo II – cortam a foliação principal (S2) e as dobras intrafoliais (F2) e são dobrados por F3

Em dois diferentes pegmatitos do **Tipo II**, 11 amostras de minerais de coltan foram coletadas e analisadas. Tais pegmatitos, geralmente, também são homogêneos; pedras semipreciosas e minerais metálicos são pequenos, a uraninita não foi encontrada. Os pegmatitos assentam como uma peça fundida da rocha encaixante em um afloramento mais ou menos arredondado que segue e corta a foliação do xisto (**Figura 31**). Algumas partes intrudiram *lit par lit* nas rochas circundantes.

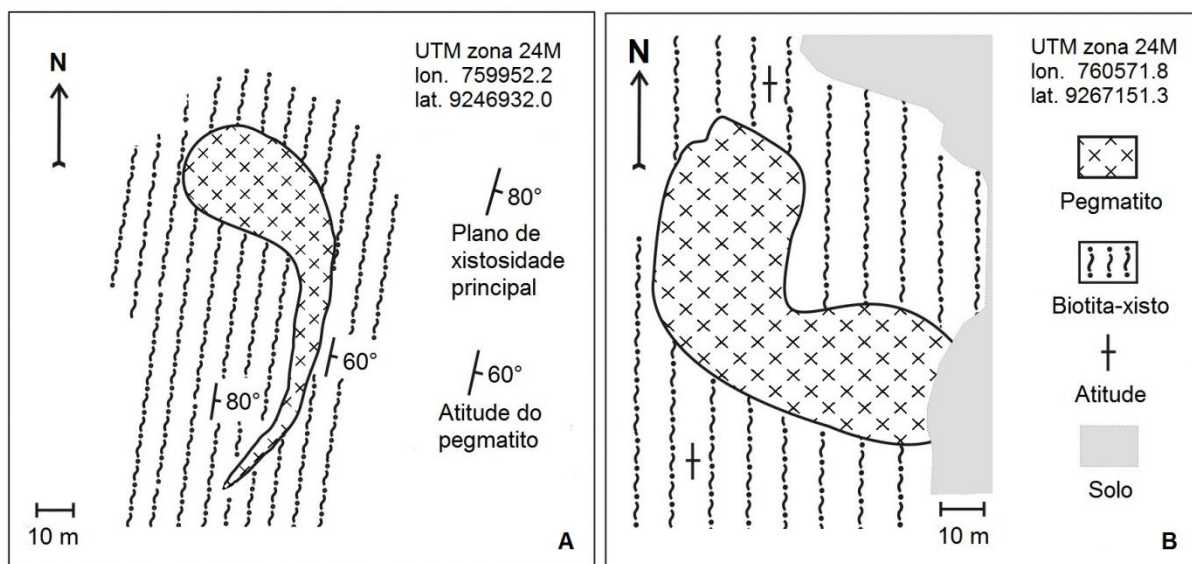


Figura 31 - Mapas detalhados de pegmatitos Tipo II: Alto Malhada Vermelha (A) and Alto da Boa Vista (B).

Minerais de coltan do Tipo II são enriquecidos em Nb. Como no Tipo I, a razão U/Th é muito baixa - mas a linha de tendência é ligeiramente positiva (**Figura 32**). Característico para a coltan dos pegmatitos do Tipo II é a linha de tendência quase paralela ao eixo X, como o Tipo I (**Figura 30**), mas com razões maiores de $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ variando de 0,82 a 1,20. Então, a assinatura geoquímica (*fingerprint*) do Tipo II é uma composição só de columbita ($\text{Nb}/\text{Ta} > 1$) com quase nenhuma variação para a razão muito baixa de U/Th, variando de 0,22 a 0,85 (**Figura 32**).

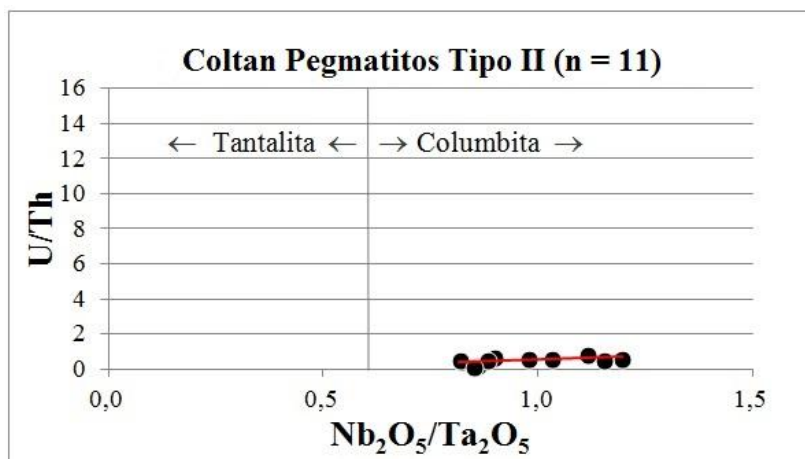


Figura 32 – Variação de U/Th em amostras de coltan de pegmatitos Tipo II (*Tabela A4, APÊNDICE*).

2.2.1.3 Pegmatitos Tipo III – cortam as dobras F3

Em dois pegmatitos diferentes do **Tipo III**, 13 amostras de minerais de coltan foram coletadas e analisadas. Pegmatitos Tipo III cortam a foliação do xisto como diques, mas correndo em duas direções diferentes NW-SE e SW-NE (**Figura 33**). Geralmente são heterogêneos mostrando pequenos núcleos de quartzo. Pedras semipreciosas e minerais metálicos podem aparecer como megacristais e na qualidade de gema. Uraninita foi amostrada e identificada.

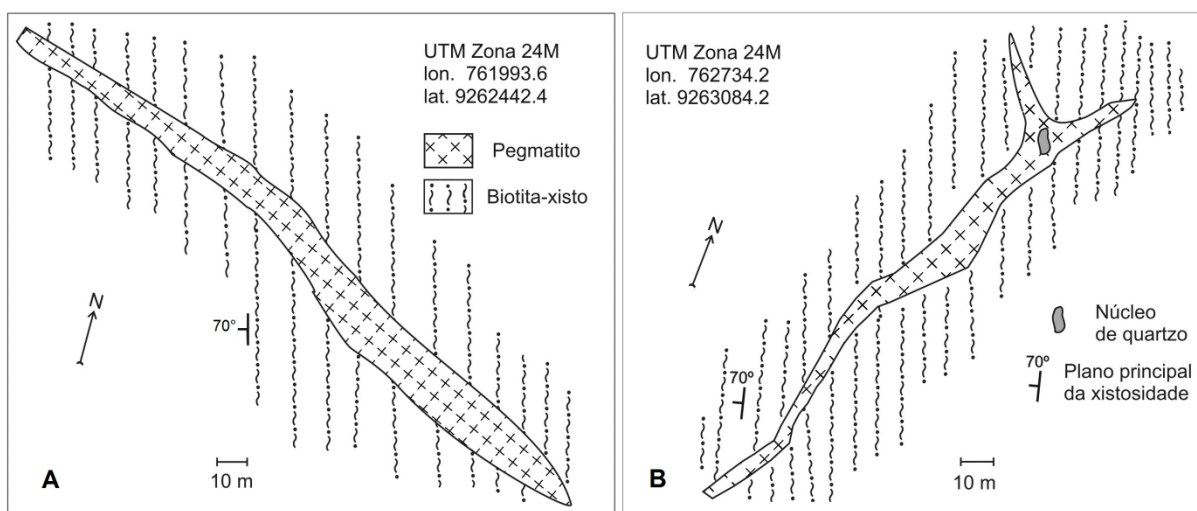


Figura 33 - Mapas detalhados de pegmatitos Tipo III: Alto Pé da Serra (A) e Alto País da Lua (B).

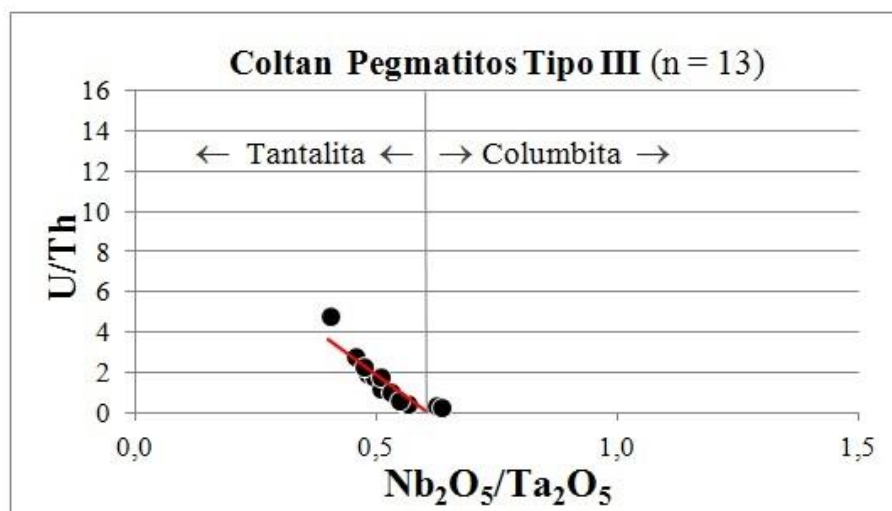


Figura 34 – Variação de U/Th em amostras de coltan de pegmatitos Tipo III (*Tabela A5, APÊNDICE*).

As amostras de coltan dos pegmatitos Tipo III (**Figura 34**) mostram alto enriquecimento relativo em U e depleção relativa de Th, se comparado aos Tipos I e II (**Figuras 30 e 32**).

Razões de U/Th tão elevadas possivelmente indicam uma idade menor de tais pegmatitos em comparação com Tipos I e II. A linha de tendência é íngreme, eventualmente indicando uma série contínua entre coltan rica em Th e a pobre em Th. A assinatura geoquímica (*fingerprint*) para o Tipo III é uma composição de, principalmente, tantalita (9 de tantalita e 2 de columbita), com tendência fortemente negativa, com U/Th variando de 0,32 a 4,84 e Nb_2O_5/Ta_2O_5 de 0,40 a 0,63.

2.2.1.4 Pegmatitos Tipo IV – cortam a foliação principal (S2) e as dobras F2 e ocorrem no plano axial das dobras F3

Em três pegmatitos diferentes **Tipo IV**, 11 amostras de minerais de coltan foram coletadas e analisadas. Os pegmatitos Tipo IV cortam ortogonalmente a foliação do xisto como diques, mas paralelos aos eixos das dobras F3, sempre correndo SW-NE (**Figura 35**). Normalmente são heterogêneos mostrando os maiores núcleos de quartzo. Pedras semipreciosas e em qualidade de gemas aparecem como megacristais, minerais de coltan ocorrem em contatos do pegmatito com as rochas encaixantes e uraninita foi amostrada.

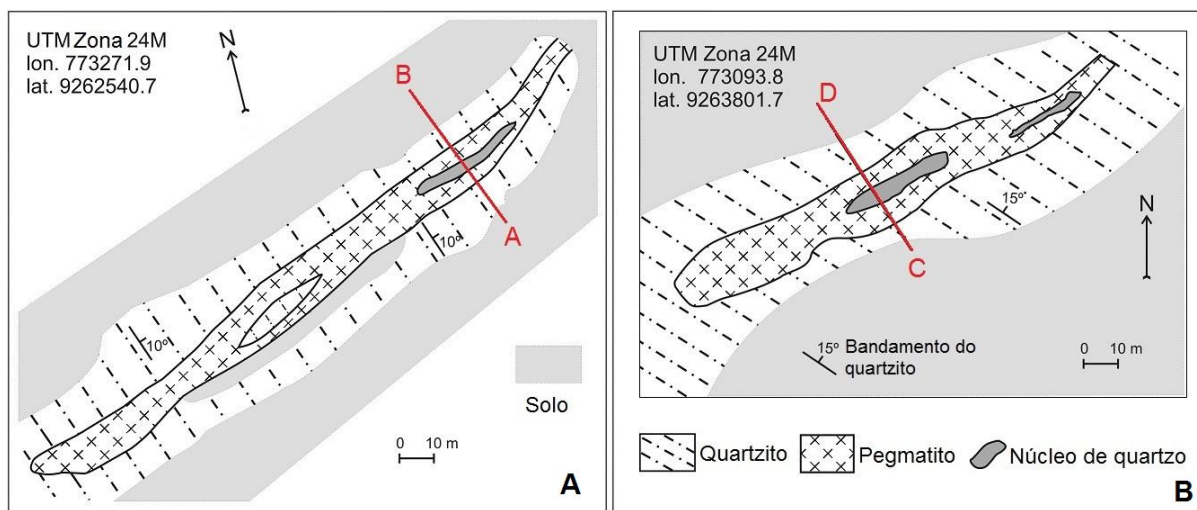


Figura 35 – Mapa detalhada de pegmatitos Tipo IV: Alto Trigueiro I (A) e Alto Trigueiro III (B). **A-B** e **C-D** são linhas de perfil das **Figuras 40 e 41**.

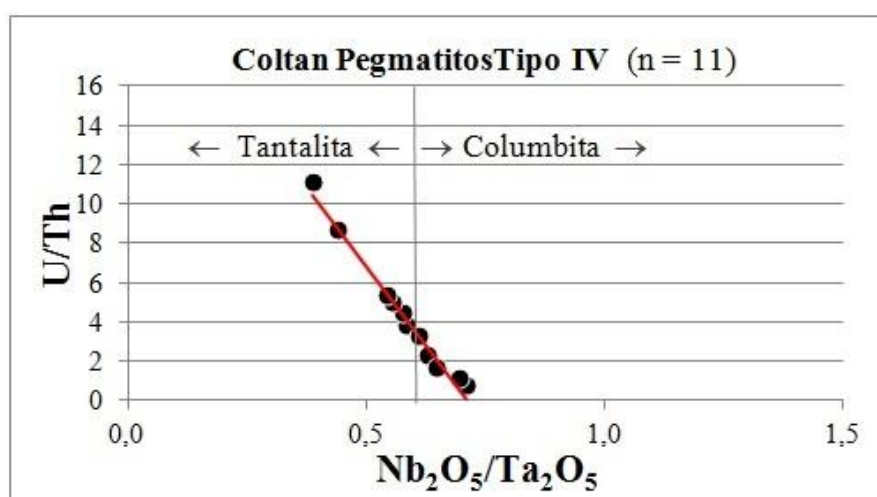


Figura 36 – Variação de U/Th em amostras de coltan de pegmatitos Tipo IV (**Tabela A6, APÊNDICE**).

As amostras de coltan de pegmatitos Tipo IV são um pouco mais ricas em Ta do que em Nb e a razão U/Th atinge os valores mais altos de todos os quatro tipos (**Figura 36**). As amostras plotam numa linha de tendência negativa íngreme. Quanto maior o teor de Nb, menor é a concentração de U e maior é o teor relativo de Th. Quando o Ta aumenta, o U também cresce, e o Th então diminui relativamente.

Semelhantemente a pegmatitos do Tipo III (**Figura 34**), a assinatura geoquímica (*fingerprint*) do Tipo IV (**Figura 36**) é uma composição entre columbita e tantalita, mas com uma linha de tendência negativa mais íngreme, a razão U/Th atingindo os valores mais elevados (0,79 - 11,10) e Nb_2O_5/Ta_2O_5 variando de 0,39 a 0,71.

2.2.2 Levantamento da radiação gama ambiental

Com o fim de identificar riscos ambientais, foram realizados novos perfis de radiação gama (CPS) nas paredes dos pegmatitos, e também na rocha encaixante, no solo e na água acumulada nas escavações. Sete destes perfis são apresentados a seguir, dois se encontram nos resultados preliminares, seção 2.1.1.

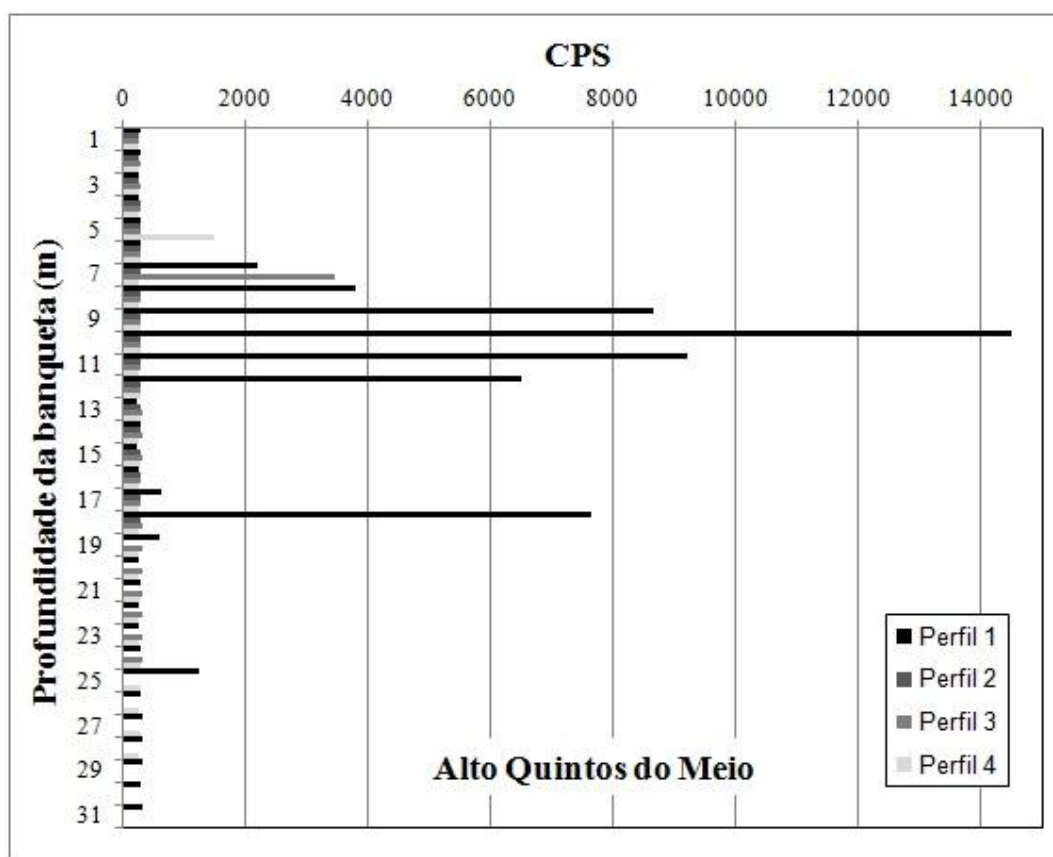


Figura 37 – Quatro perfis cintilométricos verticais ao longo das paredes da banqueta do garimpo Alto Quintos do Meio (Tabela B3, APÊNDICE).

Os perfis verticais ao longo das paredes de escavação foram espaçados de 5 metros e as medições verticais têm espaçamento de 1 metro.

Todas as medições verticais confirmaram o resultado do levantamento preliminar onde se observou que as paredes das escavações, pontualmente, podem apresentar altos níveis de radiação. Ao longo do mesmo perfil, variam, por exemplo, no garimpo Alto Quintos do Meio, de um mínimo de 10 a um máximo de 14.500 CPS, devido à distribuição irregular de minerais radioativos (**Figura 37**). No garimpo Alto dos Mamões, são observados valores de CPS tão

altos quanto 1200 CPS, em pequenos agrupamentos de muscovita contendo coltan finamente distribuída. As condições de segurança observadas *in situ* são bem precárias.

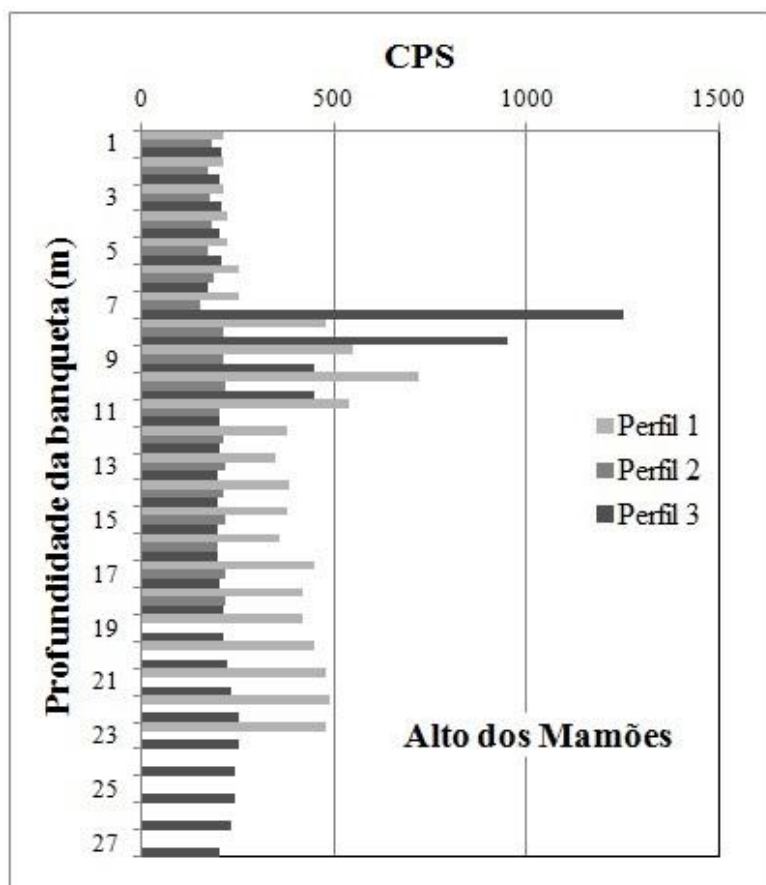


Figura 38 – Quatro perfis cintilométricos verticais ao longo das paredes da banqueta do garimpo Alto dos Mamões (**Tabela B4, APÊNDICE**). Observe as diferentes escalas dos eixos X (CPS) das Figuras 37 e 38; A escala da Fig. 37 é mais de 10 vezes maior do que a da Figura 38.

É importante lembrar que as medições de radiação nas rochas referem-se apenas aos primeiros centímetros da superfície da rocha, porque qualquer corpo auto-absorve a radiação proporcionalmente a sua densidade. Quanto maior a densidade, maior a auto-absorção.

Nas rochas em geral, as medidas foram feitas diretamente em contato com as paredes dos pegmatitos e não, como geralmente é medido, a uma distância de um metro, porque não se objetivava determinar doses, mas apenas verificar a ocorrência de *hotspots*.

Os perfis horizontais atravessando núcleos de quartzo dos pegmatitos (**Figuras 34, 35 e 36**) incluíram solo, rochas encaixantes e zona feldspática (mineralizada). O ponto inicial dos perfis foi sempre estabelecido a uma distância não influenciada pela radioatividade oriunda do pegmatito ou das rochas encaixantes, e foram traçados em direção que permitisse atravessar o núcleo. As **Figuras 34, 35 e 36** ilustram que a radiação dos pegmatitos zonados está

concentrada na zona mineralizada ou zona feldspática, com a radiação sendo quase a do BKG nos núcleos de quartzo. Estes perfis também revelam que as rochas encaixantes contêm uma concentração muito baixa de elementos radioativos, visto que têm taxas de contagens baixas.



Figura 39 – Núcleo de quartzo remanescente no pegmatito Alto Cabeças (A). A zona de feldspato mineralizada foi removida completamente, quando explorada por gemas, pedras semipreciosas e minério metálico. Escavação inundada no garimpo Alto do Trigueiro II (B, veja o perfil cintilométrico subaquático da **Figura 43**).

A radiação medida no núcleo do pegmatito Trigueiro I (**Figura 40**), maior do que no solo e na rocha encaixante, é uma consequência do efeito de massa das paredes do pegmatito, por estarem muito próximas, já que a distância entre essas paredes é inferior a cinco metros. No núcleo do pegmatito Trigueiro III (**Figura 41**), sem este efeito de massa, a radiação medida é tão baixa quanto no solo, como normalmente esperado.

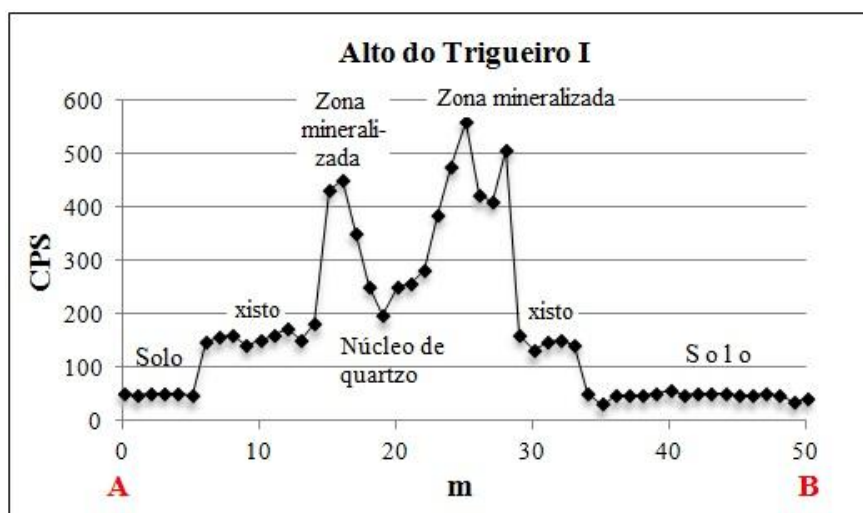


Figura 40 – Perfil cintilométrico horizontal através o pegmatito Alto do Trigueiro I (**Tabela B5**, APÊNDICE). Linha de perfil **A–B** veja **Figura 35A**).

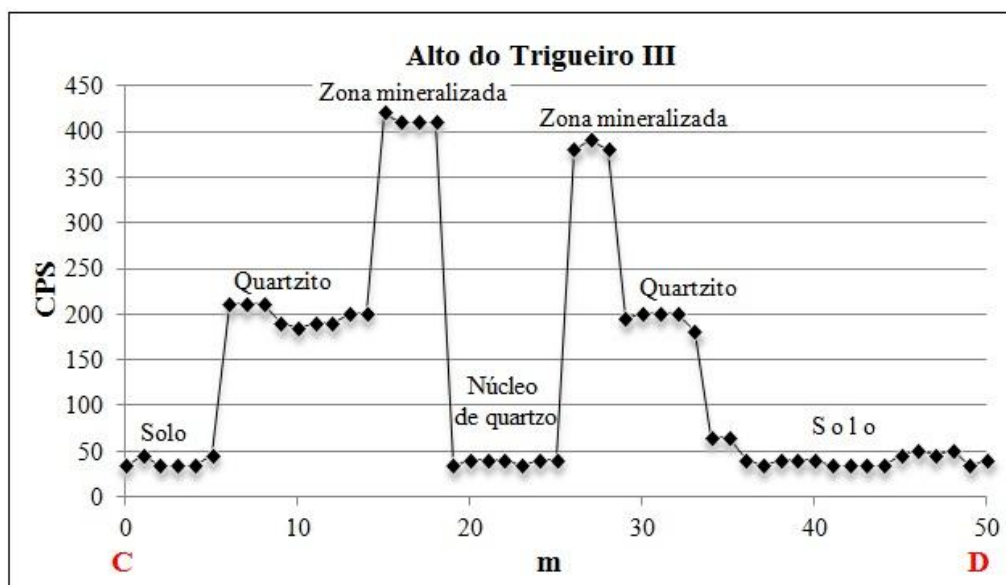


Figura 41 - Perfil cintilométrico (taxa de contagem, CPS) horizontal através o pegmatito do garimpo Alto do Trigueiro III (Tabela B6, APÊNDICE). Linha de perfil C-D veja Figura 35B).

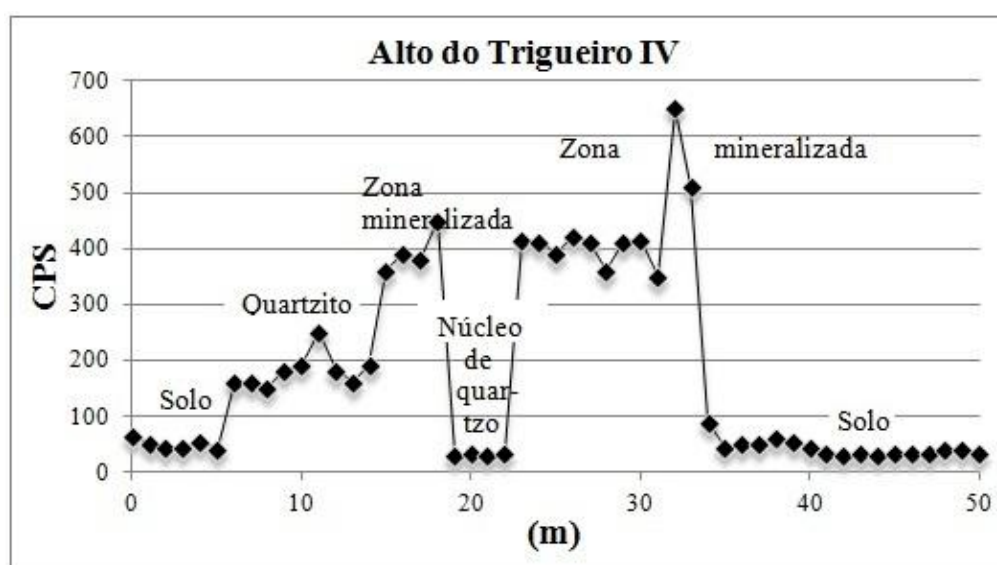


Figura 42 - Perfil cintilométrico (taxa de contagem, CPS) horizontal através o pegmatito do garimpo Alto do Trigueiro IV (Tabela B7, APÊNDICE).

O cintilômetro com cabo permite fazer medições subaéreas e subaquáticas. O levantamento radiométrico incluiu perfis verticais na água acumulada dentro das escavações. Perfis na água foram feitos primeiramente medindo-se no ar muito perto da superfície da água e em seguida submergindo-se a sonda na água, a uma distância média de dois metros das paredes, promovendo-se a leitura a cada metro até que tocasse o fundo. Esses perfis têm uma distância de cinco metros entre eles (Figura 43).

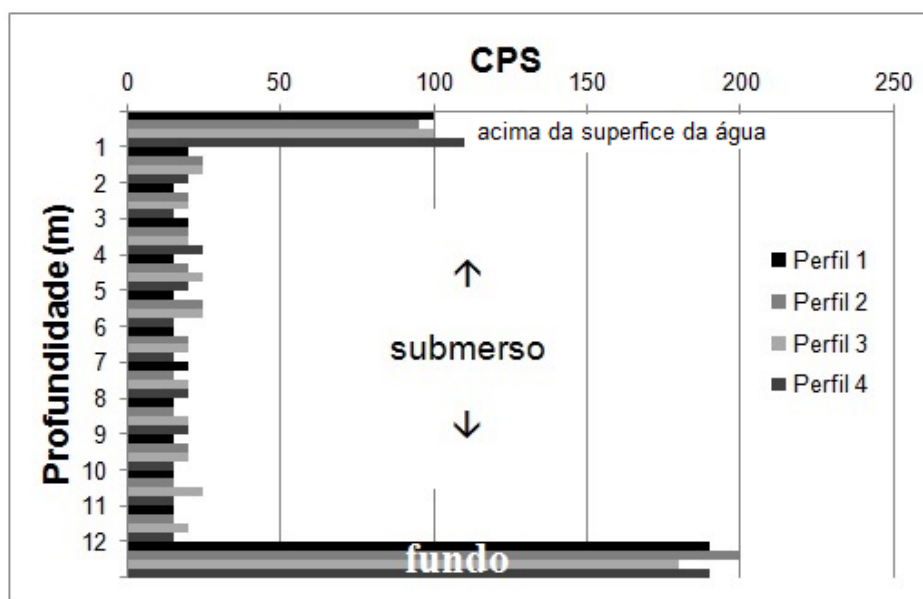


Figure 43 – Quatro perfis cintilométricos verticais subaquáticos (taxa de contagem, CPS) no garimpo Alto do Trigueiro II (Tabela B8, APÊNDICE).

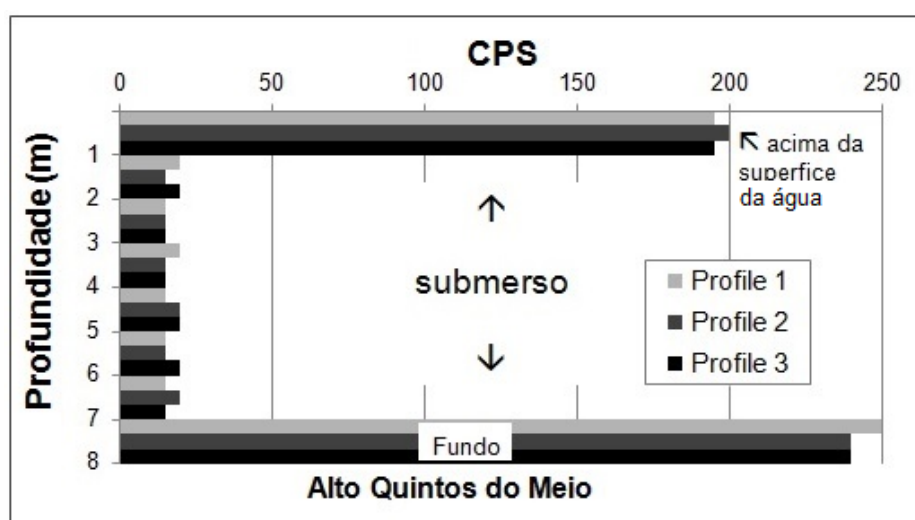


Figure 44 – Três perfis cintilométricos verticais subaquáticos (taxa de contagem, CPS) no garimpo Alto Quintos do Meio II (Tabela B9, APÊNDICE).

A medição da radiação gama na água acumulada nas escavações (**Figuras 43 e 44**) revelou que não há nenhum emissor gama solubilizado. A razão é que, além da baixa solubilidade de U e Th em água natural, um pH variando entre 6,5 - 7,5 favorece a precipitação de carbonatos de U, Th e Ra. Além disso, nesta região semi-árida, esses garimpos em pegmatitos se tornam reservatórios abertos, mas a oferta insignificante de água não permite que a água se acumule por muito tempo. Assim, o U e o Th não são solubilizados.

Os perfis de CPS mostrados nas **Figuras 40, 41, 42, 43 e 44** também indicam que, solo e água não acumulam os emissores gama, nesta região. U e Th são lixiviados em concentrações muito baixas. Portanto, esses elementos radioativos não se concentram o suficiente para serem medidos pelos equipamentos de campo, o que significa que a radiação ambiental é muito baixa.

2.2.3 Discussão dos dados gamarradiométricos

O levantamento gamarradiométrico da água acumulada nas escavações nos pegmatitos (**Figura 43, 44**) revelou que não há radionuclídeo gama emissor solubilizado em concentrações detectáveis. O motivo disto é que, em adição às baixíssimas solubilidades do urânio e do tório, que ocorrem na forma de óxidos, uraninita e torianita, ou silicatos como a torita, em águas naturais, o pH natural, que, normalmente, varia entre 6,5 e 7,5, favorece a precipitação de carbonatos. Por outro lado, na região semiárida, nesses garimpos em pegmatitos, que algumas vezes se tornam reservatórios abertos, a água não tem tempo de residência longo (uso e evaporação), assim, e em decorrência dessa oferta negligenciável de água, praticamente, o urânio e o tório não são solubilizados, nem das rochas, nem do solo.

Urânio e tório são lixiviados em quantidades ínfimas. Isso certamente ocorre tanto da rocha para o solo e para a água, quanto do solo para a água. Esse conjunto de fatores geoquímicos faz com que elementos radioativos não se concentrem o suficiente para serem detectados pelos medidores de campo.

O comportamento geoquímico do urânio e do tório, e do perigoso rádio que resulta de seu decaimento e que tem quase essas mesmas propriedades químicas, explica por que o solo e a água dentro e ao redor desses pegmatitos com minerais radioativos não representam risco ambiental.

Segundo HEINRICH (1966), os minerais de U, que ocorrem em muitos tipos diferentes de rochas, são geoquimicamente muito persistentes devido aos fatos descritos a seguir:

1) O isomorfismo do U^{4+} com Th, Zr, ETR, Ca e Fe^{2+} , que podem ocorrer juntos, ainda que em pequenas quantidades, em vários óxidos complexos de alta temperatura, em silicatos e em fosfatos.

2) A grande estabilidade da uraninita, que pode ser formada em ambientes com condições de altas P e T, como pegmatitos, até condições de P e T atmosféricas.

3) A fácil oxidação do U^{4+} a U^{6+} , que conduz a formação de uranila $(UO_2)^{2+}$. A uranila forma complexos com carbonato $(CO_3)^{2-}$. Como os carbonatos são normalmente insolúveis em condições ambientais, vários grupos de minerais secundários de baixa temperatura de uranila são formados por precipitação. A decomposição desses minerais pode reprecipitar urânio na forma U^{4+} .

4) A solubilidade da uranila controla o transporte e a distribuição de urânio em muitos ambientes oxidantes. Minerais de uranila se formam como fases secundárias em depósitos de urânio, e eles também representam importantes depósitos e acumuladores de urânio e outros radionuclídeos em repositórios de rejeito ou resíduo nuclear e em locais de contaminação da água subterrânea por urânio.

Com relação à solubilidade do urânio, YU *et al.* (2007) realizaram estudo variando o pH de 4 a 10, e impondo fugacidades de CO_2 (fCO_2) = da ordem de $10^{1,4}$ a 10^3 Pa (**Figura 45**). Eles obtiveram solubilidades variando, em mol/l, de 10^{-7} (em pH 4 e $fCO_2 = 10^{1,4}$ Pa) até 10^{-1} (em pH 10 e $fCO_2 = 10^3$ Pa). Concluíram que a concentração dissolvida de urânio é essencialmente constante em $pH < 6$, mas que aumenta rapidamente acima de $pH > 6,5$. Notaram também que, mesmo em valores de pH constantes, quanto maior a fCO_2 , maior é a concentração dissolvida.

Yu *et al.* (2007) determinaram que a concentração de urânio cresce quase duas ordens de magnitude devido a um aumento de pH de 7,5 para 8,5. Relatam ainda que não importa o quanto o pH cresça, o uranofano não irá ser dissolvido. Já a naboltwoodita tem uma concentração de dissolução constante em torno de $4,0 \times 10^{-3}$ mol/l. Quando o pH é maior do que 8,2, a soddyita começa a dissolver. Em $pH = 8,0$, a schoepita apresenta sua menor concentração, $1,48 \times 10^{-3}$ mol/l e, então, aumenta para $3,14 \times 10^{-3}$ em $pH = 8,5$. A dissolução de Na-boltwoodita e schoepita contribui para a inteira tendência de aumento da dissolução de urânio. Quando a pressão parcial de CO_2 aumenta, com pH fixo em 8, a soddyita precipita muito menos, enquanto a schoepita dissolve mais. Também a concentração de carbonato de uranila aumenta por causa do aumento da concentração de $(CO_3)^{2-}$ que complexa com o cátion $(UO_2)^{2+}$. Esses processos resultam no aumento total da concentração de urânio. O valor do urânio total dissolvido aumenta com aumento do pH, e a concentração de dissolução desses quatro minerais muda diferentemente para cada um.

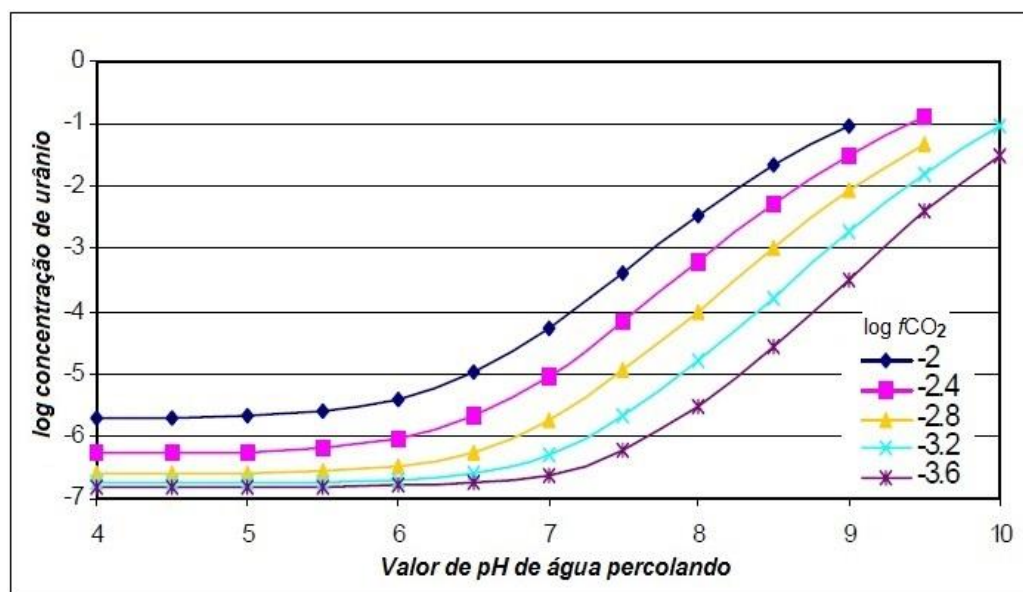


Figura 45 – Solubilidade do urânio modelada em função do pH e da $f\text{CO}_2$. Valores de fugacidade na unidade bar, conversão para Pa multiplica-se por 10^5 (adaptada de YU et al., 2007).

Contudo, de acordo com COOPER *et al.* (1996) e também WATAI *et al.* (1998), em condições normais naturais médias, o pH varia de 6,5 a 7,5 e a $f\text{CO}_2$ normalmente registrada na natureza é ao redor de 10^{-1} Pa, o que significa que as fugacidades aplicadas no estudo de YU *et al.* (2007) são muito distantes do que se observa em condições naturais, e quase 10^3 vezes maiores do que os valores encontrados onde o urânio está sendo naturalmente lixiviado/solubilizado das rochas. Portanto, isso demonstra claramente que, embora esses complexos de urânio sejam naturalmente formados, isso necessita de muito tempo para que ocorra uma concentração solubilizada perigosamente alta. A conclusão disso é que as concentrações de urânio solúvel são muito baixas em ambientes naturais. Analogamente, as concentrações de tório são ainda menores, porque o tório é ainda menos solúvel que o urânio.

Finalmente, como o rádio é o produto do decaimento desses dois elementos escassamente solubilizados, e, como a exemplo do cálcio, o rádio é avidamente precipitado por carbonato (ou em presença de CO_2), as concentrações ambientais naturais de rádio solúvel, assim como sua lixiviação, obrigatoriamente, são também muito baixas, especialmente em ambiente semiárido.

Esse comportamento da solubilidade se reflete na também escassa acumulação desses elementos no solo minguado e pobre em matéria orgânica do semiárido da região deste estudo. Primeiro, porque a mobilização da rocha para o solo é pequena, segundo, porque concomitantemente ocorre a lixiviação do solo e a transferência dessas pequenas quantidades para a água, momento em que, provavelmente, precipitam na forma de carbonatos.

2.2.4 Discussão das assinaturas geoquímicas de coltan e validação do novo método

2.2.4.1 Variação de U/Th em coltan da região de Parelhas

Há décadas sabe-se que a composição dos minerais raros nos pegmatitos dá indícios de sua origem (por ex. ČERNÝ & ERCIT, 1989, ERCIT, 1994 e ČERNÝ *et al.*, 2004). Fracionamento e contaminação na fusão da fonte do pegmatito são registrados na partição dos elementos raros dos minerais que servem para obter uma assinatura química, o *analytical fingerprint* (AFP) de outros autores como MELCHER *et al.* (2008 e 2009); GRAUPNER *et al.*, 2010, GRAUPNER & MELCHER, 2012).

Não existia um método simples para caracterizar o minério de coltan (vj. seção 1.6.6) e por isso, foi feita esta investigação de coltan dos diferentes tipos de pegmatitos da região de Parelhas usando apenas as análises feitas regularmente pela CNEN. Um bom resultado foi obtido com os diagramas de variação das razões de $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ versus U/Th aqui apresentados.

Esse novo método se mostrou eficiente para correlacionar a coltan da região de Parelhas com seu local de origem, sem o alto custo e sem a demora do único método conhecido (GRAUPNER & MELCHER, 2012; MELCHER, 2013).

Os resultados da investigação apresentada nesta tese mostram que os quatro tipos de pegmatitos da região de Parelhas, estruturalmente diferentes, podem ser correlacionados com quatro grupos de coltan quimicamente diferentes, com característico comportamento, a partir apenas das análises de U, Th, Nb e Ta.

A **Figura 46** ilustra como o controle químico nas amostras de coltan é evidente e resulta em uma distribuição característica para cada um dos quatro tipos estruturais de pegmatito. Parece que o efeito do intemperismo não afeta as razões elementais impostas durante os eventos intrusivos ou que a taxa de lixiviação remobiliza razões constantes, ou seja que o coeficiente de partição de intemperismo eventualmente é constante, ou porque a lixiviação neste clima é insignificante. Este motivo em si não foi investigado por fugir ao escopo do trabalho.

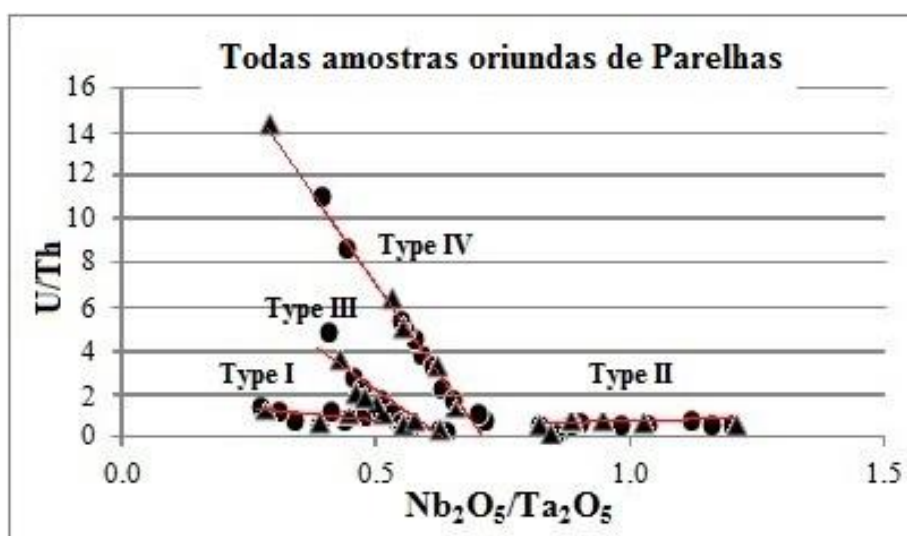


Figura 46 – Variação de U/Th versus Nb_2O_5/Ta_2O_5 em todas as amostras de coltan da região de Parelhas: amostras de coltan de pegmatitos selecionados (●) juntos com o minério de coltan de lotes comerciais (▲) e quatro linhas de tendências. Cada tendência representa um tipo de pegmatito, veja **Figuras 28, 30, 32, 34, 36** (e 2, seção 1.2).

Mesmo em minério de coltan comercial amostrado aleatoriamente e parcialmente intemperizado, originário da região de Parelhas, as razões Nb_2O_5/Ta_2O_5 versus U/Th, se encaixam exatamente nos mesmos *trends* que as amostras frescas de coltan coletadas em pegmatitos da região selecionados com base no controle estrutural (**Figura 46**). Uma explicação para tal comportamento geoquímico pode ser que, neste ambiente, todos os quatro elementos, U, Th, Nb e Ta, não são móveis. A transformação em minerais secundários não solúveis os obriga a ficar juntos, mantendo as percentagens elementais constantes, ou as fases secundárias ficam juntas.

Comparando a **Figura 2** com a **Figura 46**, os *trends* anteriormente supostos do minério de coltan de lotes comerciais são notavelmente semelhantes com aqueles resultantes da

modelagem da coltan de pegmatitos dos tipos I, II, III e IV. Somente a linha de tendência do tipo III da **Figura 2** é um pouco diferente com menor inclinação, indicando que mais amostras do lote pertencem ao tipo III, anteriormente incluídas em outro grupo para calcular a linha de tendência, agora conhecido como tipo I. Isso ilustra bem como funciona o método. A origem dessas amostras do lote agora pode ser associada a um tipo particular de pegmatito.

2.2.4.2 Variação de U/Th em coltan do Amapá e de Rondônia

Entre 2001 e 2008, lotes de minério de coltan oriundos do Amapá e de Rondônia foram exportados e fiscalizados pela CNEN. As análises de algumas dessas amostras foram usadas para testar se o novo método serve também para caracterizar amostras de outros locais de origem do que a região de Parelhas, no Rio Grande do Norte.

O resultado é apresentado nas **Figuras 47, 48 e 49** e revela que o minério de coltan do Amapá é significativamente diferente do minério de Rondônia (**Figura 47**), e ambos são diferentes da coltan de Parelhas (**Figura 39**).

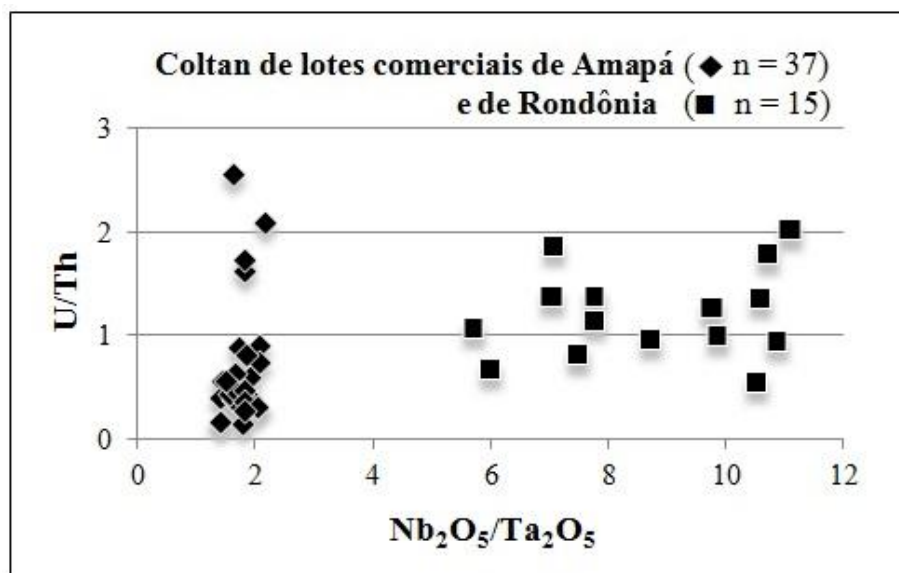


Figura 47 – Variação de U/Th em minério de coltan de lotes comerciais com origem dos estados Amapá (■) e Rondônia (♦). *Tabelas A7 e A8, APÊNDICE.*

A coltan da região de Parelhas tem, no máximo, 1,2 de valor para a razão $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$. Todas as amostras do Amapá têm valores mais elevados do que o 1,4 de $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$, mas

U/Th não excede 2,55, enquanto U/Th das amostras de Parelhas atinge 14,5. As amostras de Rondônia plotam longe de todas as outras, com razões de $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ variando de 5,7 a 11,10, ou seja, trata-se de columbita com valores 5,7 a 11,10 vezes mais ricas em Nb_2O_5 do que em Ta_2O_5 , e ainda apresentam composição de U/Th em torno de 1:1.

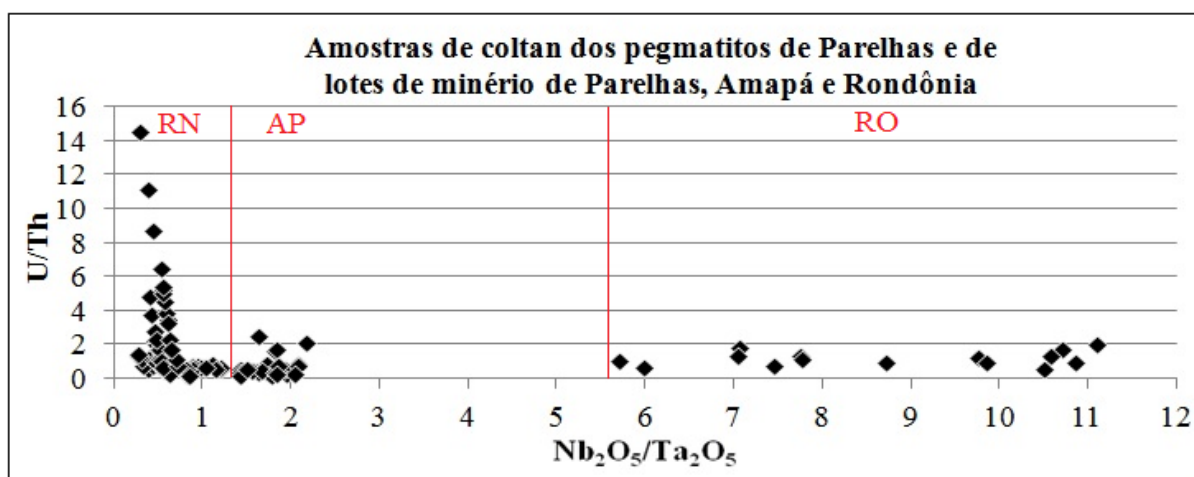


Figura 48 - Variação de U/Th nas amostras de coltan dos pegmatitos da região de Parelhas e dos lotes de minério de Parelhas(RN), Amapá (AP) e Rondônia (RO). Tabelas A1, A3-A8, APÊNDICE.

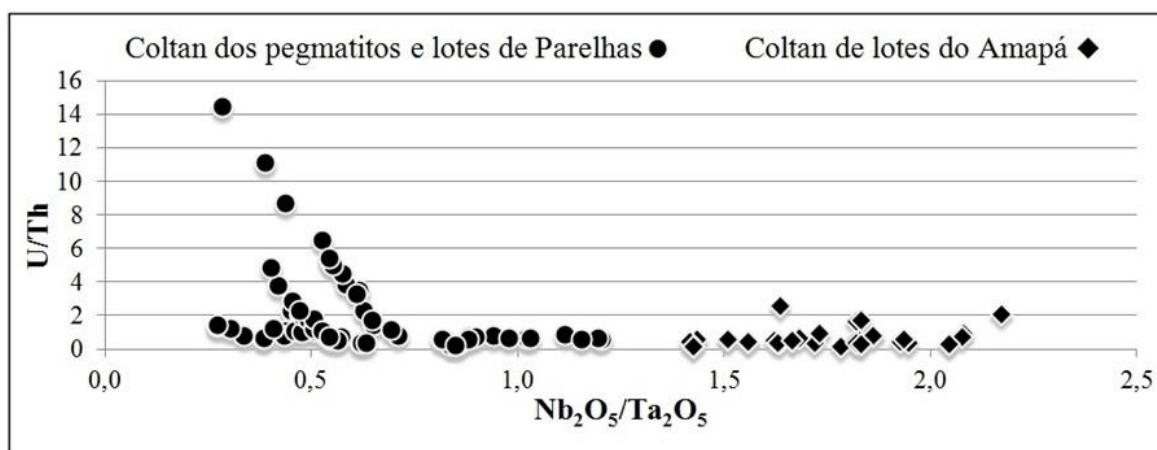


Figura 49 – Variação de U/Th nas amostras de coltan dos pegmatitos da região de Parelhas e dos lotes de minério de Parelhas (●) e Amapá (◆). Dados das Tabelas A1, A3-A7, APÊNDICE.

Figura 47 tem escala apropriada para mostrar a distribuição elemental somente das amostras de Amapá e Rondônia. Uma comparação no mesmo diagrama com as amostras de Parelhas (**Figura 48**) não mostra tão bem o hiato entre as amostras do Amapá e de Parelhas, porque a coltan de Rondônia plota muito longe de todas as outras comprimindo a escala do eixo X. Por isso, apresentam-se aqui três figuras com escalas diferentes, para ilustrar as

regiões distintas e, assim, a assinatura química das amostras de regiões diferentes. A **Figura 49** demonstra melhor a distância entre o *cluster* das amostras de Parelhas e do Amapá.

Essa verificação de que as razões U/Th e Nb_2O_5/Ta_2O_5 de Rondônia e do Amapá se distribuem em *clusters* distintos entre si, e distintos das razões do minério de Parelhas, já tem o efeito de validar o método. Contudo, outras províncias como a do sudeste e de outras localidades do norte e do nordeste ainda precisam ser investigadas.

3. CONCLUSÕES E RECOMENDAÇÕES.

Os objetivos inicialmente propostos foram plenamente atingidos.

Foram encaminhados para publicação em revistas internacionais, dois artigos relativos ao trabalho da tese, etapa obrigatória, conforme define o regulamento do PPGL para a defesa de tese de doutorado (**ANEXO 1 e ANEXO 2**).

O principal objetivo de achar assinaturas geoquímicas para a fonte de coltan (columbita-tantalita) foi alcançado. As variações de U/Th versus Nb₂O₅/Ta₂O₅ das amostras de coltan dos pegmatitos selecionados da região de Parelhas/RN fornecem assinaturas geoquímicas para sua origem. Elas mostram quatro *trends* que correspondem com os quatro tipos de pegmatitos desta região, nomeados Tipo I, II, III e IV, diferentes em composição, estrutura e mecanismo de *emplacement*. Os lotes de minério de coltan comerciais, previamente estudados, oriundos da mesma região, cabem perfeitamente nos mesmos quatro *trends* geoquímicos, uma evidência forte para a mesma origem.

O novo método foi validado através de outras amostras de lotes comerciais de coltan dos estados Amapá e Rondônia. Resultou em dois *clusters* bem diferentes e ambos distintos do campo das amostras de Parelhas. Esta é uma indicação que o novo método aqui apresentado pode ser também eficiente para minérios de coltan de outras províncias.

Conclui-se que este método simples é capaz de caracterizar a origem de minérios de coltan da região de Parelhas, do Amapá e de Rondônia e diferenciá-los uns dos outros. Isto é um instrumento útil para a CNEN de controle do comércio de coltan baseado em análises regulares.

A relação U/Th na coltan pode ser uma característica primária para cada tipo de pegmatito na região estudada. Isto, eventualmente, vale também para outras regiões e não só para os minerais de columbita-tantalita, mas também para outras fases de Nb-Ta como pirocloro-microlita. Para investigar as relações genéticas é necessário analisar outros elementos como Fe, Mn e Ti.

Trabalhos futuros devem refinar o método com mais amostras e investigar se pode ser

aplicado a minérios de coltan de outras províncias brasileiras como os estados de Minas Gerais, Amazônia e Roraima ou até de outros países. Uma primeira investigação deve ser realizada na região de Caicó, RN, onde ocorre um segundo grande grupo de pegmatitos no estado do Rio Grande do Norte. Outras localidades na Paraíba, Bahia e no Ceará também podem ser investigados a fim de confirmar esta validação e ao mesmo tempo produzir-se uma assinatura geoquímica para as várias províncias nordestinas.

O outro objetivo, a investigação do impacto da radiação gama oriundo dos minerais radioativos nos pegmatitos da região de Parelhas, também foi atingido. Ao final, conclui-se que os garimpos da região são explorados e explotados numa maneira arcaica e artesanal e muito insegura. O levantamento gamarradiométrico detalhado nestas minas, como esperado, revelou que a radioatividade alta somente ocorre onde os minerais radioativos são detectados. As ocorrências são pontuais e escassas e, portanto, em geral não há risco de dano à saúde para pessoas que trabalham lá sazonalmente. O levantamento gamarradiométrico (CPS) indica que o solo e a água não acumulam emissores gama nesta região. Urânio e tório na rocha e no solo são lixiviados em concentrações muito baixas. Consequentemente, estes elementos radioativos não se concentram o bastante para serem medidos por equipamentos de campo.

Embora a radiação gama medida a uma distância de alguns centímetros das inclusões de minerais radioativos não possa representar um perigo de saúde, as circunstâncias deste tipo de mineração nos garimpos são de risco elevado para os garimpeiros.

Uma investigação específica, exposição ocupacional, é necessária para determinar o risco da exposição radioativa para aqueles que permanecem perto dos locais muito radioativos por tempo prolongado, transportam e armazenam estes minerais radioativos sem nenhuma proteção.

Outra conclusão se refere à causa das relações elementais encontrados na coltan. Como o U tem meia-vida de 4,5 e o Th de 10 Ga, e o Th é gerado a custo do U, quando este se desintegra, as razões U/Th possam indicar, que os pegmatitos Tipo I e Tipo II são muito mais velhos que os Tipos III e IV (já datados com idades Brasileiras), e, provavelmente, são transamazônicos conforme sugerem vários autores. As razões U/Th das amostras de coltan dos pegmatitos Tipo I e II são baixas devido à desintegração mais rápida do U e à geração concomitante de Th. Ao longo do tempo, o U diminui, enquanto o Th, relativamente, cresce.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- AGRAWAL, V. N. **Structural evidence for an early episode of pegmatite emplacement in the Seridó Group**. In: SIMP. GEOL. NORDESTE, 12. João Pessoa, 1986. *Atas...* João Pessoa, SBG, p. 282-289. 1986.
- AGRAWAL, V. N. Relations between pegmatite emplacements and tectono-metamorphic events in the Seridó Group, Northeastern Brazil. **Revista Brasileira de Geociências**, v. 22 (1):43-46. 1992.
- ALBARÈDE, F. **Introduction to Geochemical Modeling**. Cambridge University Press, 543 p. 1995.
- ALMEIDA, F. F. M.; HASUI, Y.; BRITO NEVES, B. B. & FUCK, R. A. Brazilian Structural Provinces: an introduction. **Earth-Science Reviews**, v. 17, p. 1–29. 1981.
- ANTHONY, J. W.; BIDEAUX, R. A.; BLADH, K. W. & NICHOLS, M. C. Eds., **Handbook of Mineralogy**, Mineralogical Society of America, Chantilly, VA 20151-1110, USA. Disponível em: <<http://www.handbookofmineralogy.org/>> Último acesso em 10 ago 2013.
- ARCHANJO, C. J. & SALIM, J. **Posição da Formação Seridó no contexto estratigráfico regional (RN-PB)**. In: SIMPÓSIO DE GEOLOGIA DO NORDESTE, 12, João Pessoa. SBG. Núcleo Nordeste, 556 p. il. (Boletim do Núcleo Nordeste da SBG, 10), p. 270-281. 1986.
- ARTHAUD, M. H.; CABY, R.; FUCK, R. A.; DANTAS, E. L. & PARENTE, C. V. **Geology of the northern Borborema Province, NE Brazil and its correlation with Nigeria, NW Africa**. Geological Society, London, Special Publications v. 294; p. 49-67. 2008. doi:10.1144/SP294.4
- BAUMGARTNER, R.; ROMER R. L.; MORITZ, R.; SALLET, R. & CHIARADIA, M. Columbite-Tantalite-bearing granitic pegmatites from the Seridó Belt, NE Brazil: Genetic constraints from U-Pb dating and Pb isotopes. **Canadian Mineralogist**, v. 44, p. 69-86. 2006.
- BENVINDO DA LUZ, A.; FREITAS LINS, F. A.; PIQUET, B.; COSTA, M. J. & COELHO, J. M. **Pegmatitos do nordeste: diagnóstico sobre o aproveitamento racional e integrado**. Série Rochas e Minerais Industriais. CETEM, R.J. 96 p. 2003.
- BEURLIN, H.; SILVA, M. R. R. & SOARES, D. R. Ametista da província pegmatítica da Borborema: gênese e confirmação da procedência através do estudo de inclusões fluidas. **Revista de Geologia**, v. 15, p.77-86. 2002.
- BEURLIN, H., SOARES, D. R., BORGES, L. E. P. VILLAROEL LEO H.S e DA SILVA, M.R.R. Análise de mecanismos de substituição em tantalato exótico: provável titano-ixiolita na província pegmatítica da Borborema. **Revista de Geologia**, v. 16, nº 2, p.7-18, 2003
- BRITO NEVES, B. B.; VAN SCHMUS, W. R.; DOS SANTOS, E. J.; CAMPOS NETO, M. C. & KOZUCH, M. O evento Carirís Velhos na Província Borborema: integração de dados, implicações e perspectivas. **Revista Brasileira de Geociências**, v. 25(4):279-296. 1995.

BRITO NEVES, B. B., SÁ, J. M., NILSON, R. R. & BOTELHO, N. F. A Tafrogênese estateriana nos blocos paleoproterozóicos da América do Sul e processos subsequentes. **Geonomos**, Belo Horizonte, v. 3, n. 2, p. 1-21. 1995.

BRITO NEVES, B. B. & SATO, K. **Chronogeological milestones in the Evolution of the South American Continent**. In: International Conference on Assessment Tectonics, 14., 1998, Ouro Preto. Abstracts. Ouro Preto, p. 2-4. 1998.

BRITO NEVES, B. B.; DOS SANTOS, E. J. & VAN SCHMUS, W. R. **Tectonic history of the Borborema Province, Northeastern Brazil**. In: CORDANI, U. G., MILANI, E. J., THOMAZ FILHO, A.; CAMPOS, D. A. (eds) Tectonic evolution of South America, 31st International Geological Congress, Rio de Janeiro, Brazil, 151–182. 2000.

ČERNÝ, P. & ERCIT, T. S. **Mineralogy of niobium and tantalum: crystal chemical relationships, paragenetic aspects and their economic implications**. Pp. 27-79 in: Lanthanides, Tantalum and Niobium (P. Möller et al., editors). Springer Verlag, Berlin. 1989.

ČERNÝ, P., ERCIT, T. S., WISE, M. A. The Tantalite-Tapiolit gap: Natural assemblages versus experimental data. **Canadian Mineralogist**, v. 30, p. 587-596. 1992.

ČERNÝ, P. Geochemical and petrogenetic features of mineralization in rare-element granitic pegmatites in the light of current research. **Applied Geochemistry**, v. 7, p. 393-416. 1992.

ČERNÝ, P.; CHAPMAN, R. ; FERREIRA, K. & SMEDS, S.-A. Geochemistry of oxide minerals of Nb, Ta, Sn and Sb in the Varuträsk granitic pegmatite, Sweden: the case of an “anomalous” columbite–tantalite trend. **Am. Mineral.** 89, p.505-518. 2004.

ČERNÝ, P. & ERCIT, T.S. The classification of granitic pegmatites revisited. **The Canadian Mineralogist**, v. 43, p. 2005-2026. 2005.

CNEN/CPRM. Projeto **Currais Novos, Relatório Final de Sondagem**. Convênio CNEN/CPRM. 1974.

CNEN/CPRM. Projeto **Projeto Jardim do Seridó, Relatório Final - mapas**. Convênio CNEN/CPRM. Min. Das Minas e Energia, Vol.II. 1975.

CNEN. **Transporte de Materiais Radioativos**. Resolução CNEN -13/88, D.O.U. de 01/08/88. 1988.

CNEN, Comissão Nacional de Energia Nuclear, CNEN-NN-3.01:2011. **Diretrizes Básicas de Proteção Radiológica**. Publicação D.O.U. em 01.09.2011. Disponível em <<http://www.in.gov.br/visualiza/index.jsp?data=01/09/2011&jornal=1&pagina=16&totalArquivos=212>> Acesso 12 set 2013.

CNMNC – COMMISSION ON NEW MINERALS, NOMENCLATURE AND CLASSIFICATION, International Mineralogical Association (IMA). Disponível em: <[Commission on New Minerals, Nomenclature and Classification](#)> Acesso 12 set 2013.

COLAB - Coordenação de Laboratórios de Poços de Caldas. **Manual de Procedimentos Analíticos**. Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN, 1983.

COOPER, D. J.; WATSON, A. J. & NIGHTINGALE, P. D. **Large decrease in ocean-surface CO₂ fugacity in response to in situ iron fertilization.** *Nature*, v. 383, 511-513, 1996. DOI:10.1038/383511a0

COSTA-DE-MOURA, J.; SILVA, L. F. & PEREIRA, V. **Pegmatitos Radioativos da Serra da Borborema. Mineralogia e Geoquímica de Radiominerais e de Minerais Radioativos.** X Congresso Brasileiro de Geoquímica e II Simpósio de Geoquímica dos Países do Mercosul, Porto de Galinhas, Pernambuco, Brasil, CD-ROM Abstracts. 2005.

COSTA-DE-MOURA, J.; Radioactive pegmatites of the Parelhas region, Rio Grande do Norte, northeast Brazil: preliminary investigation on radiominerals and radioactive minerals. International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2009. Rio de Janeiro, RJ, Brazil, **Associação Brasileira de Energia Nuclear – ABEN**. 13 p. 2009. ISBN: 978-85-99141-03-8.

CPRM – Serviço Geológico do Brasil. Províncias geológicas brasileiras. Disponível em <<http://geobank.sa.cprm.gov.br/>>. Último acesso 12 jul 2013.

CPRM – Serviço Geológico do Brasil. **Geologia e Recursos Minerais da Folha Sousa SB.24-X-A. Estados da Paraíba, Rio Grande do Norte e Ceará.** Recife: 312 p. 2008.

DADA, S. S. **Proterozoic evolution of the Nigeria_Borborema province** Geological Society, London, Special Publications, v. 294; p. 121-136. doi:10.1144/SP294.7. 2008.

DANTAS, J. R. A. & CAULA, J. A. L. Estratigrafia e geotectônica. In: SERM/CDRM. **Mapa geológico do estado da Paraíba**; texto explicativo. João Pessoa, SERM/CDRM. 134 p. 1982.

DAVIDSON, C.F. Distribution of radioactivity. **Mineral. Mag.**, v. 85:329-340. 1951.

DNPM/CPRM. Principais Depósitos Minerais do Brasil. **Província Pegmatítica da Borborema – Seridó, Paraíba e Rio Grande do Norte.** Brasília, v. IV, parte B, capítulo 4, p. 41-52. 1997.

DOS SANTOS, E. J. **Província scheelitífera do Nordeste.** In: Cong. Bras. de Geologia, 27, Aracajú. Roteiro das excursões. Aracajú: SBG. Núcleo Nordeste 74p. (Boletim, 3) p. 31-46. 1973.

DOS SANTOS, E. J.; FERREIRA, C. A. & SILVA JÚNIOR, J. M. F. **Geologia e recursos minerais do Estado da Paraíba - Escala 1:500.000.** Recife: CPRM, 1 CD-ROM, 2002.

DOS SANTOS, E. J.; NUTMAN, A. P. & BRITO NEVES, B. B., Idades SHRIMP U-Pb do Complexo Sertânia: Implicações Sobre a Evolução Tectônica da Zona Transversal, Província Borborema. **Revista do Instituto de Geociências – Geol. USP Sér. Cient.**, São Paulo, v. 4, n. 1, pp.1-12, 2004.

DOS SANTOS, T. J. S.; FETTER A. H. & NETO J. A. N. **Comparisons between the northwestern Borborema Province, NE Brazil, and the southwestern Pharusian Dahomey Belt, SW Central Africa.** Geological Society, London, Special Publications; v. 294; p. 101-120. doi:10.1144/SP294.6. 2008.

EBERT, H. **Geologia do Alto Seridó: nota explicativa da folha geológica de Currais Novos**. Recife: SUDENE. 120 p. (Série Geologia Regional, 11). 1969.

EBERT, H. The precambrian geology of the Borborema Belt (states of Paraíba and Rio Grande do Norte, northeastern Brazil), and the origin of its mineral resources. **Geol. Rundschau**, v. 59, p. 1299-1326. 1970.

ERCIT, T.S. The Geochemistry and Crystal Chemistry of Columbite-Group Minerals from Granitic Pegmatites, South Western Grenville Province Canadian Shield. **The Canadian Mineralogist**, Vol. 32, pp.421-438. 1994.

FERREIRA, J. A. M. & ALBUQUERQUE, J. P. T. **Sinopse da geologia da Folha Seridó**. Recife: SUDENE (Série Geologia Regional, 18), 52 p. 1969.

FETTER, A. H.; VAN SCHMUS, W. R.; DOS SANTOS, T. J. S.; NOGUEIRA NETO, J. A. & HENRIARTHAUD, M. U-PB and SM-ND geochronological constraints on the crustal evolution and basement architecture of Ceará state, NW Borborema Province, NE Brazil: implications for the existence of the Paleoproterozoic supercontinent "Atlantica" **Revista Brasileira de Geociências**, 30(1):102-106, 2000.

GRAUPNER, T.; MELCHER, F.; GÄBLER, H. E.; SITNIKOVA, M.; BRÄTZ, H. & BAHR, A. Rare earth element geochemistry of columbite-group minerals: LA-ICP-MS data. **Mineralogical Magazine**, v. 74(4), p. 691–713. 2010.

GRAUPNER, T. & MELCHER, F. Analytical Fingerprinting (AFP) of Ta ("Coltan"), Sn and W Ore Concentrates. German Federal Institute for Geosciences and Natural Resources (BGR). <http://www.bgr.bund.de/DERA/DE/Downloads/PDAC_2012_Graupner.html> Disponibilizado em 20/03/2012. Último acesso em 15 ago 2013.

HEINRICH, E. W. **Mineralogia y Geologia de las Materias primas Radiactivas**. Editora Omega, Barcelona. Capítulo V, Yacimientos de Pegmatitas Radiactivas, p. 209-248. 1966.

IMA - INTERNATIONAL MINERALOGICAL ASSOCIATION. **The New IMA List of Minerals – A Work in Progress**. Disponível em: <[http://pubsites.uws.edu.au/ima-cnmc/IMA_Master_List_\(2013-08\).pdf](http://pubsites.uws.edu.au/ima-cnmc/IMA_Master_List_(2013-08).pdf)> Última atualização em 08/2013. Acesso em 15 ago 2013.

JARDIM DE SÁ, E. F. & SALIM, J. Reavaliação dos conceitos estratigráficos na região do Seridó (RN-PB). **Miner. Metal.**, v. 80, n. 421, p. 16-28. 1980.

JARDIM DE SÁ, E. F. **Geologia da região Seridó: reavaliação de dados**. In: Simpósio de Geologia do Nordeste, 11, 1984, Natal. Atas do... Natal: SBG. Núcleo Nordeste. 473 p. il. (Boletim do Núcleo Nordeste da SBG, 9) p. 278-296. 1984.

JARDIM DE SÁ, E. F. **A Faixa Seridó (Província Borborema, NE do Brasil) e o seu significado geodinâmico na Cadeia Brasileira/Pan-Africana**. Brasília. Tese (Doutorado) - Instituto de Geociências, Universidade de Brasília. 2 mapas. 803 p. 1994.

JOHNSTON JR. W. D. **Os pegmatitos berilo-tantalíferos da Paraíba e Rio Grande do Norte, no Nordeste do Brasil**. Rio de Janeiro, DNPM-DFPM, 85 p. (Boletim 72), 1945.

KLEPPER, M. R. & WYANT, D. G. Geology of uranium (abs.) **Geol. Soc. Am. Bull.**, v. 66:1585-1586. 1955.

kombizz's moblog. Disponível em <<http://moblog.net/view/973594/blood-coltan>>, última atualização 06/2013. Último acesso em 11 ago. 2013.

LEHMANN, B., MELCHER, F., SITNIKOVA, M. & MUNANA, J. R. The Gatumba raremetal pegmatites: chemical signature and environmental impact. **Etudes Rwandaises**, v. 16, p. 25-40. 2008.

LOUGHLIN, W. Principal component analysis for alteration mapping. **Photogrammetric Engineering and Remote Sensing**, v. 57, p. 1163-1169. 1991.

MEDNUCLEAR, **Medicina Nuclear do Brasil**. <Disponível em: <http://www.oocities.org/br/mednuclearbr/ferramentas/conversao.html>> Último acesso em 29 ago 2013.

MELCHER, F.; SITNIKOVA, M. A.; GRAUPNER, T.; MARTIN, N.; OBERTHÜR, T.; HENJES-KUNST, F.; GÄBLER, E.; GERDES, A.; BRÄTZ, H.; DAVIS, D. W. & DEWAELE, S. Fingerprinting of conflict minerals: columbite-tantalite ("coltan") ores. **SGA News**, v. 23, p. 1-14. 2008.

MELCHER, F.; GRAUPNER, T.; SITNIKOVA, M. A.; HENJES-KUNST, F.; OBERTHÜR, T.; GÄBLER, E.; BAHR, A.; GERDES, A.; BRÄTZ, H. & RANTITSCH, G. Ein Herkunftsnachweis für Niob-Tantalminerale am Beispiel Afrikanischer Selten-Element-Pegmatite. **Mitteilungen der Österreichischen Mineralogischen Gesellschaft**, v. 155, p. 231-267. 2009.

MELCHER, F. "Coltan fingerprint": BGR enables the certification of trading chains. **Report of the project: Disponível em: <[Coltan: Herkunftsnachweis von Columbit-Tantaliterzen](http://www.bgr.bund.de/DE/Themen/Min_rohstoffe/Projekte/Rohstoff-Forschung-abgeschlossen/LF_Herkunftsnachweis_COLTAN.html?nn=1547826)**. http://www.bgr.bund.de/DE/Themen/Min_rohstoffe/Projekte/Rohstoff-Forschung-abgeschlossen/LF_Herkunftsnachweis_COLTAN.html?nn=1547826 e <http://www.bgr.bund.de/EN/Themen/Min_rohstoffe/Rohstoff_forsch/LF_Herkunftsnachweis_COLTAN_Newsletter01-2010.html>. 2010. Último acesso em 15 ago 2013.

MELKOV, V. G. **Intern. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy**, Record of proceedings of session 7 B, Proc. 6:824-825. 1956.

MIYASAKI, G. S. & COSTA-DE-MOURA, J. **Inspeção de Lavras garimpeiras. Província pegmatítica da Borborema, Rio Grande do Norte/Paraíba**. Relatório Técnico DIFOR/DIMAP N° 01/04. CNEN. Rio de Janeiro. 21 p. 2004.

MULJA, T., WILLIAMS-JONES, A. E., MARTIN, R. F. & WOOD, S. A. Compositional variation and structural state of columbite-tantalite in rare-element granitic pegmatites of the Preissac-Lacorne batholith, Quebec, Canada. **American Mineralogist**, **81**, p.146-157. 1996.

NICKEL, E. H. & NICHOLS, M. C. **Mineral Database**©, Materials Data Inc. (MDI), 2002-2011, Data Version 03/2009 MINERAL-LE Distributed by Materials Data. Livermore, CA, U.S.A. 2009.

PETTA, R. A.; CAMPOS, T. F. C. & MEYER, M. **A radioatividade dos pegmatitos do Seridó e seu gerenciamento através de um sistema de informações georreferenciadas.** Disponível em: <<http://www.cprm.gov.br/publique/media/Painel41.pdf>> Último acesso em 8 ago 2012.

POHL, W.L. **Economic Geology, Principles and Practice: Metals, Minerals, Coal and Hydrocarbons — an Introduction to Formation and Sustainable Exploitation of Mineral Deposits** (book published May 2011), Sample Chapter: Niobium and Tantalum. . <Disponível em: <http://www.walter-pohl.com/sample.html>>. Última atualização em 11/09/2013. Último acesso em 15 ago. 2013.

ROGERS, J. J. W. **History of Continents in the Past Three Billion Years.** J. of Geology, Chicago, v. 104, p. 91-107. 1996.

ROLF, P. A. **Minerais dos pegmatites da Borborema.** DNPM-DFPM, boletim 78:25-76. 1946.

ROMER, R. L.; SMEDS, S.-A. & ČERNÝ, P. Crystal-chemical and genetic controls of U-Pb systematics of columbite-tantalite. **Mineralogy and Petrology**, 57, p.243-260. 1996.

ROLLINSON, H. **Using geochemical data: evaluation, presentation, interpretation.** Longman Scientific & Technical, 352 p. 1994.

ROY, P. L.; DPTTIN, O. & MADON, H. L. **Estudo dos pegmatitos do Rio Grande do Norte e da Paraíba.** SUDENE – Série Geol. Econômica, I, 129 p. 1964.

SAVVIN, S. B. Analytical applications of Arsenazo III-II determination of thorium, uranium, protactinium, neptunium, hafnium and scandium. **Pergamon Press Ltd**, Talanta, vol. 11, pp. 1 to 6. North Ireland, 1964.

SCORZA, E. P. **Província Pegmatítica da Borborema.** DNPM-DGM, Rio de Janeiro. Boletim 112, 57 p. 1944.

SCHOBENHAUS, C. & CAMPOS, D. A. **A evolução da Plataforma Sul-Americana no Brasil e suas principais concentrações minerais.** In: SCHOBENHAUS, C., CAMPOS, D. A., DERZE, G. R. & ASMUS, H. E. (eds) Geologia do Brasil. Ministério de Minas e Energia/ Departamento Nacional da Produção Mineral, Brasília, p. 9–53. 1984.

SILVA, M. R. R. **Petrographical and geochemical investigations of pegmatites in the Borborema pegmatite province of NE Brazil.** München, Inaugural-Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades der Fakultät für Geowissenschaften der Ludwig-Maximilians-Universität München. 305 p. 1993.

SILVA, S. M. P; CRÓSTA, A. P.; FERREIRA, F. J. F.; BEURLIN, H.; SILVA, A. M. & DA SILVA, M. R. R. **Mineralogical characterization and mapping using reflectance spectroscopy: an experiment at Alto do Giz pegmatite in the south portion of the Borborema Pegmatite Province (BPP), northeastern Brazil.** Estudos Geológicos, v. 19, n. 2, p. 337-342. 2009.

SILVA, S. M. P. **Espectroscopia de imageamento e gamaespectrometria aérea e terrestre de pegmatitos e granitos da porção sul da Província Pegmatítica da Borborema (PPB), Nordeste Brasil**. Tese de Doutorado. Campinas, SP: [s.n.], 173 p. 2009.

SILVA, S. M. P.; CRÓSTA, A. P.; FERREIRA, F. J. F.; BEURLIN, H.; SILVA, A. M. & SANTOS, L. F. Espectrometria de raios gama de granitos pegmatíticos da Província Pegmatítica da Borborema (PPB), nordeste do Brasil. **Rev. Bras. Geof.** v. 28, n. 4 São Paulo, 2010. ISSN 0102-261X. 2010.

SILVA, S. M. P. & CRÓSTA, A. P. **Mapeamento de pegmatitos da Faixa Seridó (FSe) com base na análise por componentes principais de imagens TM/Landsat-5 e Terra/ASTER e o apoio da espectroscopia de reflectância**. Anais XV Simpósio Brasileiro de Sensoriamento Remoto - SBSR, Curitiba, PR, Brasil, INPE, p. 3597. 2011.

SINTEC - **Secretaria de Indústria, do Comércio, da Ciência e Tecnologia do Estado do Rio Grande do Norte**. Disponível em: <<http://www.sintec.rn.gov.br>>. Último acesso em 07 ago. 2007.

TORQUOTO, J. R. & CORDANI, U. G. Brazil – Africa Geological Links. **Earth-Science Reviews**, v. 17, 155–176. 1981.

USHP. **Sociedade Americana de Física da Saúde**. US Health Physics Society website. Disponível em: <<http://www.radprocalculator.com/FAQ.aspx>>. Último acesso em 29 ago. 2013.

VAN SCHMUS, W. R.; BRITO NEVES, B.B.; WILLIAMS, I. S.; HACKSPACHER, P. C.; FETTER, A. H.; DANTAS, E. L. & BABINSKI, M. The Seridó Group of NE Brazil, a late Neoproterozoic pre- to syn-collisional basin in west Gondwana: insights from SHRIMP U-Pb detrital zircon ages and Sm-Nd crustal residence (TDM) ages. **Precambrian Research**, v. 127(4): 287–327. 2003.

VAN SCHMUS, W. R. OLIVEIRA, E. P.; DA SILVA FILHO, A. F.; TOTEU, S. F.; PENAYE, J. & GUIMARÃES, I. P. **Proterozoic links between the Borborema Province, NE Brazil, and the Central African Fold Belt**. Geological Society, London, Special Publications, v. 294; p. 69-99. 2008. doi:10.1144/SP294.5

YU, Z.; LIN, Y.; JOHANNESSON, K.; SMIECINSKI, A.J. & STETZENBACH, K. J. Geochemical modeling of solubility and speciation of uranium, neptunium, and plutonium. University of Nevada, Las Vegas. **Yucca Mountain Publications**, 46 p. 2007.

WASSERSTEIN, B. Ages of uraninite by a new method. **Nature**, v. 174:1004-1005. 1954.

WATAI, T.; KIKUCHI, M. & NAKAZAWA, T. Temporal Variations of Surface Oceanic and Atmospheric CO₂ Fugacity and Total Dissolved Inorganic Carbon in the Northwestern North Pacific. **Journal of Oceanography**, v. 54, p. 323-336. 1998.

WEBMINERAL. **Mineralogy Database**. Disponível em: <<http://www.webmineral.com/>>. Último acesso em 28 jul 2013.

APÊNDICE

A - Análises químicas

**Tabela A1 – Amostras de lotes de minério de coltan de Parelhas/RN (n = 22),
percentagem em peso (%)**

Lotes - RN	U ₃ O ₄	ThO ₂	Nb ₂ O ₅	Ta ₂ O ₅	Nb ₂ O ₅ /Ta ₂ O ₅	U/Th
001/2000	0,35	0,99	24,40	39,40	0,6193	0,3411
003/2001	0,47	0,13	13,80	22,40	0,6161	3,4886
005/2001	0,22	0,36	32,60	27,10	1,2030	0,5897
006/2001	0,23	0,28	33,20	35,30	0,9405	0,7926
008/2001	0,31	0,40	26,42	30,02	0,8801	0,7478
011/2001	0,53	0,88	25,70	31,50	0,8159	0,5812
012/2001	0,62	0,93	26,20	25,60	1,0234	0,6433
013/2001	0,15	0,01	15,00	52,60	0,2852	14,4742
016/2001	0,19	0,13	22,20	34,10	0,6510	1,4103
020/2001	0,13	0,67	21,18	25,30	0,8372	0,1872
001/2002	0,14	0,24	20,10	36,70	0,5477	0,5629
008/2002	0,36	0,54	21,60	56,40	0,3830	0,6433
009/2002	0,33	0,29	29,50	58,30	0,5060	1,0980
015/2002	0,42	0,18	28,30	62,60	0,4521	2,2515
002/2003	0,27	0,35	22,40	39,20	0,5714	0,7444
003/2003	2,64	0,49	24,70	45,10	0,5477	5,1989
007/2003	0,30	0,27	27,25	61,75	0,4413	1,0722
010/2003	0,25	0,18	19,60	71,80	0,2730	1,3402
012/2003	0,47	0,27	29,70	60,20	0,4934	1,6797
013/2003	0,34	0,16	27,40	58,20	0,4708	2,0505
001/2004	0,27	0,04	23,00	43,70	0,5263	6,5134
001/2004	0,39	0,10	16,02	38,04	0,4211	3,7633

Tabela A2 - Amostras de lotes de minério de coltan de Parelhas/RN (n = 22), percentagem molar (%M) Valores calculados a partir da Tabela A1.

Lotes - RN	3U (M%)	Th (M%)	Nb (M%)	Ta (M%)	Nb/Ta	U/Th
Lote 001/2000	0,0012	0,00375	0,1836	0,1783	1,0298	0,3325
Lote 003/2001	0,0017	0,00049	0,1038	0,1014	1,0245	3,4007
Lote 005/2001	0,0008	0,00136	0,2453	0,1226	2,0004	0,5748
Lote 006/2001	0,0008	0,00106	0,2498	0,1597	1,5640	0,7727
Lote 008/2001	0,0011	0,00152	0,1988	0,1358	1,4635	0,7290
Lote 011/2001	0,0019	0,00333	0,1934	0,1425	1,3567	0,5665
Lote 012/2001	0,0022	0,00352	0,1971	0,1158	1,7019	0,6271
Lote 013/2001	0,0005	0,00004	0,1129	0,2380	0,4742	14,1093
Lote 016/2001	0,0007	0,00049	0,1670	0,1543	1,0826	1,3747
Lote 020/2001	0,0005	0,00254	0,1594	0,1145	1,3921	0,1825
Lote 001/2002	0,0005	0,00091	0,1512	0,1661	0,9107	0,5487
Lote 008/2002	0,0013	0,00205	0,1625	0,2552	0,6369	0,6271
Lote 009/2002	0,0012	0,00110	0,2220	0,2638	0,8414	1,0704
Lote 015/2002	0,0015	0,00068	0,2129	0,2833	0,7518	2,1948
Lote 002/2003	0,0010	0,00133	0,1685	0,1774	0,9502	0,7256
Lote 003/2003	0,0094	0,00186	0,1859	0,2041	0,9107	5,0678
Lote 007/2003	0,0011	0,00102	0,2050	0,2794	0,7338	1,0451
Lote 010/2003	0,0009	0,00068	0,1475	0,3249	0,4539	1,3064
Lote 012/2003	0,0017	0,00102	0,2235	0,2724	0,8204	1,6374
Lote 013/2003	0,0012	0,00061	0,2062	0,2633	0,7829	1,9988
Lote 001/2004	0,0010	0,00015	0,1731	0,1977	0,8752	6,3492
Lote 001/2004	0,0014	0,00038	0,1205	0,1721	0,7003	3,6684

Tabela A3 – Amostras de coltan de pegmatitos Tipo I da região de Parelhas/RN (n = 9), percentagem em peso (%)

Pegmatitos Tipo I	U ₃ O ₄	ThO ₂	Nb ₂ O ₅	Ta ₂ O ₅	Nb ₂ O ₅ /Ta ₂ O ₅	U/Th
2007 – Alto da Mata	0,350	0,550	21,70	56,30	0,3854	0,6141
2007 – Alto da Mata	0,320	0,400	16,90	39,00	0,4333	0,7720
2007 – Alto da Mata	0,210	0,250	19,00	35,50	0,5352	0,8106
2007 – Alto da Mata	0,400	0,310	25,80	63,00	0,4095	1,2451
2007 – Alto da Mata	0,400	0,500	22,50	67,00	0,3358	0,7720
2007 – Alto da Mata	0,210	0,170	22,00	72,10	0,3051	1,1920
2008 – Antônio Porfírio	0,440	0,390	28,90	62,90	0,4595	1,0887
2008 – Antônio Porfírio	0,290	0,280	29,39	61,71	0,4763	0,9994
2008 – Antônio Porfírio	0,210	0,140	19,90	73,00	0,2726	1,4474

Tabela A4 – Amostras de coltan de pegmatitos Tipo II da região de Parelhas (n = 11), percentagem em peso (%)

Pegmatitos Tipo II	U ₃ O ₄	ThO ₂	Nb ₂ O ₅	Ta ₂ O ₅	Nb ₂ O ₅ /Ta ₂ O ₅	U/Th
2007 – Alto da Boa Vista	0,180	0,650	21,90	25,50	0,8588	0,2672
2007 – Alto da Boa Vista	0,500	0,900	25,50	31,00	0,8226	0,5361
2007 – Alto da Boa Vista	0,260	0,390	32,90	27,50	1,1964	0,6433
2007 – Alto da Boa Vista	0,600	0,900	24,95	25,50	0,9784	0,6433
2007 – Alto da Boa Vista	0,360	0,500	26,45	29,45	0,8981	0,6948
2008 - Malhada Vermelha	0,220	0,250	39,00	35,00	1,1143	0,8492
2008 - Malhada Vermelha	0,290	0,500	26,60	30,20	0,8808	0,5597
2008 - Malhada Vermelha	0,510	0,850	25,80	31,60	0,8165	0,5790
2008 - Malhada Vermelha	0,240	0,390	33,60	29,10	1,1546	0,5938
2008 - Malhada Vermelha	0,630	0,950	26,30	25,50	1,0314	0,6399
2008 - Malhada Vermelha	0,160	0,690	22,00	25,90	0,8494	0,2238

Tabela A5 – Amostras de coltan de pegmatitos Tipo III da região de Parelhas (n = 13), percentagem em peso (%)

Pegmatitos Tipo III	U ₃ O ₄	ThO ₂	Nb ₂ O ₅	Ta ₂ O ₅	Nb ₂ O ₅ /Ta ₂ O ₅	U/Th
2007 – Pé de Serra	0,400	1,020	24,20	39,00	0,6205	0,3784
2007 – Pé de Serra	0,160	0,260	20,40	37,00	0,5514	0,5938
2007 – Pé de Serra	2,910	0,580	26,90	66,90	0,4021	4,8414
2007 – Pé de Serra	0,310	0,150	25,80	53,90	0,4787	1,9942
2007 – Pé de Serra	0,480	0,260	29,50	60,00	0,4917	1,7814
2007 – Pé de Serra	0,320	0,260	29,40	58,20	0,5052	1,1876
2008 - Alto País da Lua	0,160	0,300	22,00	39,00	0,5641	0,5146
2008 - Alto País da Lua	0,400	1,200	26,00	41,00	0,6341	0,3216
2008 - Alto País da Lua	0,380	0,130	16,90	37,25	0,4537	2,8206
2008 - Alto País da Lua	0,460	0,250	29,10	57,50	0,5061	1,7755
2008 - Alto País da Lua	0,430	0,180	27,90	59,20	0,4713	2,3051
2008 - Alto País da Lua	0,320	0,280	30,90	58,70	0,5264	1,1028
2008 - Alto País da Lua	0,290	0,410	22,30	41,00	0,5439	0,6825

Tabela A6 – Amostras de coltan de pegmatitos Tipo IV da região de Parelhas/RN (n = 11), percentagem em peso (%)

Pegmatitos Tipo IV	U₃O₄	ThO₂	Nb₂O₅	Ta₂O₅	Nb₂O₅/Ta₂O₅	U/Th
2007 – Alto Trigueiro I	0,280	0,340	28,00	39,40	0,7107	0,7947
2007 – Alto Trigueiro I	0,230	0,190	23,90	34,40	0,6948	1,1681
2007 – Alto Trigueiro I	0,480	0,120	13,50	23,10	0,5844	3,8598
2008 – Alto Trigueiro I	0,740	0,310	35,20	56,20	0,6263	2,3034
2008 – Alto Trigueiro II	0,230	0,130	22,11	34,15	0,6474	1,7072
2008 – Alto Trigueiro II	0,280	0,060	25,80	44,90	0,5746	4,5031
2008 – Alto Trigueiro III	0,260	0,050	26,00	47,00	0,5532	5,0177
2008 – Alto Trigueiro III	0,410	0,120	13,40	22,00	0,6091	3,2969
2008 – Alto Trigueiro III	2,690	0,480	26,70	49,10	0,5438	5,4077
2008 – Alto Trigueiro III	0,180	0,020	25,00	57,00	0,4386	8,6845
2008 – Alto Trigueiro III	0,230	0,020	20,00	51,40	0,3891	11,0969

Tabela A7 – Amostras de lotes de minério de coltan do estado de Rondônia (n = 15), percentagem em peso (%)

Rondônia (Lotes)	U₃O₄	ThO₂	Nb₂O₅	Ta₂O₅	Nb₂O₅/Ta₂O₅	U/Th
2001-2008	0,187	0,269	47,80	8,00	5,9750	0,6708
2001-2008	0,290	0,139	38,50	3,47	11,0951	2,0132
2001-2008	0,210	0,109	45,90	6,50	7,0615	1,8591
2001-2008	0,010	0,010	62,70	7,20	8,7083	0,9649
2001-2008	0,217	0,152	44,40	6,30	7,0476	1,3776
2001-2008	0,182	0,128	38,00	4,90	7,7551	1,3720
2001-2008	0,046	0,055	47,00	6,30	7,4603	0,8070
2001-2008	0,147	0,125	45,00	5,80	7,7586	1,1348
2001-2008	0,050	0,045	45,00	7,90	5,6962	1,0722
2001-2008	0,042	0,032	45,90	4,70	9,7660	1,2665
2001-2008	0,052	0,050	50,20	5,10	9,8431	1,0035
2001-2008	0,094	0,051	40,70	3,80	10,7105	1,7785
2001-2008	0,058	0,059	59,70	5,50	10,8545	0,9486
2001-2008	0,040	0,070	52,50	5,00	10,5000	0,5514
2001-2008	0,090	0,064	52,90	5,00	10,5800	1,3570

**Tabela A8 – Amostras de lotes de minério de coltan do estado de Amapá,
(n = 34) percentagem em peso (%)**

Amapá (Lotes)	U₂O₃	ThO₂	Nb₂O₅	Ta₂O₅	Nb₂O₅/Ta₂O₅	U/Th
2001-2008	0,052	0,179	45,40	24,80	1,8306	0,2803
2001-2008	0,090	0,491	42,80	30,00	1,4267	0,1769
2001-2008	0,054	0,091	45,40	30,10	1,5083	0,5726
2001-2008	0,031	0,096	37,40	18,30	2,0437	0,3116
2001-2008	0,080	0,174	36,00	23,10	1,5584	0,4437
2001-2008	0,158	0,325	36,49	21,92	1,6647	0,4691
2001-2008	0,070	0,145	41,30	22,60	1,8274	0,4658
2001-2008	0,071	0,185	41,50	22,80	1,8202	0,3703
2001-2008	0,098	0,116	41,10	22,10	1,8597	0,8152
2001-2008	0,042	0,114	38,00	22,10	1,7195	0,3555
2001-2008	0,052	0,124	39,90	20,70	1,9275	0,4047
2001-2008	0,017	0,035	34,90	19,20	1,8177	0,4687
2001-2008	0,032	0,034	42,40	20,40	2,0784	0,9082
2001-2008	0,037	0,017	44,10	20,30	2,1724	2,1002
2001-2008	0,031	0,093	32,70	16,80	1,9464	0,3216
2001-2008	0,038	0,061	44,70	23,10	1,9351	0,6011
2001-2008	0,043	0,056	43,60	21,00	2,0762	0,7436
2001-2008	0,042	0,025	46,20	25,40	1,8189	1,6211
2001-2008	0,160	0,089	41,40	22,60	1,8319	1,7347
2001-2008	0,050	0,075	39,00	23,20	1,6810	0,6433
2001-2008	0,389	0,419	41,20	23,80	1,7311	0,8959
2001-2008	0,217	0,082	43,00	26,30	1,6350	2,5536
2001-2008	0,119	0,205	33,00	23,00	1,4348	0,5601
2001-2008	0,089	0,209	38,40	27,10	1,4170	0,4109
2001-2008	0,089	0,180	39,70	24,50	1,6204	0,4771
2001-2008	0,063	0,158	39,10	23,90	1,6360	0,3848
2001-2008	0,085	0,532	40,10	22,50	1,7822	0,1542
2001-2008	0,068	0,173	40,10	24,60	1,6301	0,3793
2001-2008	0,080	0,174	36,00	23,10	1,5584	0,4437
2001-2008	0,158	0,325	36,49	21,92	1,6647	0,4691
2001-2008	0,070	0,145	41,30	22,60	1,8274	0,4658
2001-2008	0,071	0,185	41,50	22,80	1,8202	0,3703
2001-2008	0,098	0,116	41,10	22,10	1,8597	0,8152
2001-2008	0,031	0,096	37,40	18,30	2,0437	0,3116

APÊNDICE

B – Tabelas de medidas de taxa de contagem (CPS)

Tabela B1 – Garimpo Alto doTrigueiro I, quatro perfis verticais.

Profundidade (m)	Perfil 1 SPP3 (CPS)	Perfil 2 SPP3 (CPS)	Perfil 3 SPP3 (CPS)	Perfil 4 SPP3 (CPS)
0	70	80	70	90
1	80	130	100	150
2	100	140	120	1700
3	70	130	150	150
4	140	130	140	160
5	140	140	160	150
6	70	150	160	160
7	120	150	180	150
8	150	170	150	150
9	140	160	160	150
10	150	200	250	160
11	130	210	320	140
12	140	190	190	140
13	150	190	190	140
14	150	200	180	160
15	-	190	150	160

Tabela B2 - Garimpo Alto doTrigueiro III, cinco perfis verticais.

Profundidade (m)	Perfil 1 SPP3 (CPS)	Perfil 2 SPP3 (CPS)	Perfil 3 SPP3 (CPS)	Perfil 4 SPP3 (CPS)	Perfil 5 SPP3 (CPS)
0	335	150	165	180	145
1	290	500	350	400	220
2	310	550	450	500	140
3	350	600	650	600	200
4	390	650	850	800	210
5	850	1150	1250	900	260
6	2200	2500	1200	1050	200
7	2000	2500	1050	1200	220
8	1450	2100	1100	2500	240
9	1200	2000	1200	3800	290
10	1050	-	2400	4500	420
11	1050	-	5500	-	550
12	1000	-	2600	-	500
13	900	-	3100	-	600
14	900	-	-	-	700
15	750	-	-	-	700
16	600	-	-	-	700

Tabela B3 – Garimpo Alto Quintos do Meio, quatro perfis verticais.

Local da medição	Profundidade (m)	Perfil 1 SPP3 (CPS)	Perfil 2 SPP3 (CPS)	Perfil 3 SPP3 (CPS)	Perfil 4 SPP3 (CPS)
Pegmatito	30	280	275	250	270
Pegmatito	29	290	275	280	270
Pegmatito	28	275	275	290	270
Pegmatito	27	275	300	280	270
Pegmatito	26	280	300	280	1500
Pegmatito	25	280	305	280	280
Pegmatito	24	2200	300	3450	270
Pegmatito	23	3800	290	285	260
Pegmatito	22	8650	290	285	280
Pegmatito	21	14500	290	290	280
Pegmatito	20	9200	290	300	270
Pegmatito	19	6500	290	305	280
Pegmatito	18	240	290	310	280
Pegmatito	17	280	290	310	270
Pegmatito	16	240	300	310	280
Pegmatito	15	250	305	300	270
Pegmatito	14	630	300	300	275
Pegmatito	13	7650	305	320	275
Pegmatito	12	590	-	320	270
Pegmatito	11	260	-	320	270
Pegmatito	10	290	-	320	280
Pegmatito	9	260	-	320	270
Pegmatito	8	250	-	325	270
Pegmatito	7	290	-	320	280
Pegmatito	6	1250	-	-	280
Pegmatito	5	290	-	-	270
Pegmatito	4	310	-	-	280
Pegmatito	3	320	-	-	260
Pegmatito	2	310	-	-	-
Pegmatito	1	300	-	-	-
Pegmatito	0	320	-	-	-

Tabela B4 – Garimpo Alto dos Mamões, três perfis verticais.

Local da medição	Profundidade (m)	Perfil 1 SPP3 (CPS)	Perfil 2 SPP3 (CPS)	Perfil 3 SPP3 (CPS)
Xisto	0	210	180	205
Xisto	1	210	170	200
Xisto	2	210	175	205
Xisto	3	220	180	200
Xisto	4	220	170	205
Xisto	5	250	185	170
Xisto	6	250	150	1250
Pegmatito	7	480	210	950
Pegmatito	8	550	210	450
Pegmatito	9	720	215	450
Pegmatito	10	540	200	200
Pegmatito	11	380	210	200
Pegmatito	12	350	215	195
Pegmatito	13	385	210	195
Pegmatito	14	380	215	195
Pegmatito	15	360	195	195
Pegmatito	16	450	215	200
Pegmatito	17	420	215	210
Pegmatito	18	420	-	210
Pegmatito	19	450	-	220
Pegmatito	20	480	-	230
Pegmatito	21	490	-	250
Pegmatito	22	480	-	250
Pegmatito	23	-	-	240
Pegmatito	24	-	-	240
Pegmatito	25	-	-	230
Pegmatito	26	-	-	200

Tabela B5 – Pegmatito Alto do Trigueiro I, Perfil gamarradiométrico horizontal.

Local da medição	Distância (m)	CPS (SPP3)	Local da medição	Distância (m)	CPS (SPP3)
Solo	0	50	Pegmatito	26	420
Solo	1	45	Pegmatito	27	410
Solo	2	50	Pegmatito	28	505
Solo	3	50	Xisto	29	160
Solo	4	50	Xisto	30	130
Solo	5	45	Xisto	31	145
Xisto	6	145	Xisto	32	150
Xisto	7	155	Xisto	33	140
Xisto	8	160	Solo	34	50
Xisto	9	140	Solo	35	30
Xisto	10	150	Solo	36	45
Xisto	11	160	Solo	37	45
Xisto	12	170	Solo	38	45
Xisto	13	150	Solo	39	50
Xisto	14	180	Solo	40	55
Pegmatito	15	430	Solo	41	45
Pegmatito	16	450	Solo	42	50
Pegmatito	17	350	Solo	43	50
Núcleo de quartzo	18	250	Solo	44	50
Núcleo de quartzo	19	195	Solo	45	45
Núcleo de quartzo	20	250	Solo	46	45
Pegmatito	21	255	Solo	47	50
Pegmatito	22	280	Solo	48	45
Pegmatito	23	385	Solo	49	35
Pegmatito	24	475	Solo	50	40
Pegmatito	25	560			

Tabela B6 – Pegmatito Alto do Trigueiro III, Perfil gamarradiométrico horizontal.

Local da medição	Distância (m)	SPP3 (CPS)
Solo	0	35
Solo	1	45
Solo	2	35
Solo	3	35
Solo	4	35
Solo	5	45
Xisto	6	210
Xisto	7	210
Xisto	8	210
Xisto	9	190
Xisto	10	185
Xisto	11	190
Xisto	12	190
Xisto	13	200
Xisto	14	200
Pegmatito	15	420
Pegmatito	16	410
Pegmatito	17	410
Pegmatito	18	410
Núcleo de quartzo	19	35
Núcleo de quartzo	21	40
Núcleo de quartzo	22	40
Núcleo de quartzo	23	35
Núcleo de quartzo	24	40
Núcleo de quartzo	25	40

Local da medição	Distância (m)	SPP3 (CPS)
Pegmatito	26	380
Pegmatito	27	390
Pegmatito	28	380
Xisto	29	195
Xisto	30	200
Xisto	31	200
Xisto	32	200
Xisto	33	180
Solo	34	65
Solo	35	65
Solo	36	40
Solo	37	35
Solo	38	40
Solo	39	40
Solo	40	40
Solo	41	35
Solo	42	35
Solo	43	35
Solo	44	35
Solo	45	45
Solo	46	50
Solo	47	45
Solo	48	50
Solo	49	35
Solo	50	40

Tabela B7 – Pegmatito Alto do Trigueiro IV, Perfil gamarradiométrico horizontal.

Local da medição	Distância (m)	SPP3 (CPS)	Local da medição	Distância (m)	SPP3 (CPS)
Solo	0	65	Pegmatito	26	420
Solo	1	50	Pegmatito	27	410
Solo	2	45	Pegmatito	28	360
Solo	3	45	Quartzito	29	410
Solo	4	55	Quartzito	30	415
Solo	5	40	Quartzito	31	350
Quartzito	6	160	Quartzito	32	650
Quartzito	7	160	Quartzito	33	510
Quartzito	8	150	Solo	34	90
Quartzito	9	180	Solo	35	45
Quartzito	10	190	Solo	36	50
Quartzito	11	250	Solo	37	50
Quartzito	12	180	Solo	38	60
Quartzito	13	160	Solo	39	55
Quartzito	14	190	Solo	40	45
Pegmatito	15	360	Solo	41	35
Pegmatito	16	390	Solo	42	30
Pegmatito	17	380	Solo	43	35
Pegmatito	18	450	Solo	44	30
Núcleo de quartzo	19	30	Solo	45	35
Núcleo de quartzo	20	35	Solo	46	35
Núcleo de quartzo	21	30	Solo	47	35
Núcleo de quartzo	22	35	Solo	48	40
Pegmatito	23	415	Solo	49	40
Pegmatito	24	410	Solo	50	35
Pegmatito	25	390			

Tabela B8 – Garimpo Alto do Trigueiro II, quatro perfis subaquáticos gamarradiométricos (CPS).

Local da medição	Profundidade (m)	CPS (SPP3)	CPS (SPP3)	CPS (SPP3)	CPS (SPP3)
Acima da superfície da água	0	100	95	100	110
Água	1	20	25	25	20
Água	2	15	20	20	15
Água	3	20	20	20	25
Água	4	15	20	25	20
Água	5	15	25	25	15
Água	6	15	20	20	15
Água	7	20	15	20	20
Água	8	15	15	20	20
Água	9	15	20	20	15
Água	10	15	15	25	15
Água	11	15	15	20	15
Fundo do pegmatito	12	190	200	180	190

Tabela B9 – Garimpo Alto Quintos do Meio, três perfis subaquáticos gamarradiométricos (CPS).

Local da medição	Profundidade (m)	CPS (SPP3)	CPS (SPP3)	CPS (SPP3)
Acima da superfície da água	0	195	200	195
Água	1	20	15	20
Água	2	15	15	15
Água	3	20	15	15
Água	4	15	20	20
Água	5	15	15	20
Água	6	15	20	15
Fundo do pegmatito	7	250	240	240

APÊNDICE

C – Tabelas de calibração dos medidores de radiação gama

C1 – Linearidade do cintilômetro SPP-3 em baixa dose com capa de atenuação.

Distância (cm)	CNEN – L *	IME – L *	SPP-3 – L *
50	-	-	6190
100	5060	4760	3590
150	2310	2260	2190
200	1410	1360	1390

* unidades veja explicação na seção 1.6.3.

C2 – Linearidade do cintilômetro SPP-3 em alta dose com capa de atenuação.

Distância (cm)	AUTOMES*	EBERLINE*	CNEN-CAP*	SPP-3-CAP (CPS)	IME-CAP*
50	56,9	3740	14700	6160	14800
100	15,4	965	3850	3210	3900
150	6,9	390	1850	1760	1850
200	3,8	230	1000	1010	950

* unidades veja explicação na seção 1.6.3.

ANEXOS – ARTIGOS PUBLICADOS

Dois trabalhos publicados são apresentados neste anexo, em conformidade com as regras estabelecidas pelo Programa de Pós-Graduação em Geologia, que estabelecem a obrigatoriedade das Publicações para posterior defesa, Resolução CEPEG 2005/1.

ANEXO 1 – PRIMEIRO ARTIGO

RADIOACTIVE PEGMATITES OF THE PARELHAS REGION, RIO GRANDE DO NORTE, NORTHEAST BRAZIL. PRELIMINARY INVESTIGATION ON RADIOMINERALS AND RADIOACTIVE MINERALS

Autor: Jorge Costa de Moura

Artigo publicado em: 10 de Setembro de 2009

2009 International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2009

Rio de Janeiro, RJ, Brazil, September 27 to October 2, 2009

ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE ENERGIA NUCLEAR - ABEN

ISBN: 978-85-99141-03-8

RADIOACTIVE PEGMATITES OF THE PARELHAS REGION, RIO GRANDE DO NORTE, NORTHEAST BRAZIL. PRELIMINARY INVESTIGATION ON RADIOMINERALS AND RADIOACTIVE MINERALS

Jorge Costa de Moura

Comissão Nacional de Energia Nuclear/DINOR.
R. General Severiano, 90, sala 400B, Botafogo.
CEP 22290-901. Rio de Janeiro, RJ
jcmoura@cnen.gov.br

ABSTRACT

The region of Serra da Borborema, in Northeast Brazil, along the border of the states of Rio Grande do Norte and Paraíba, is known for comprising thousands of pegmatitic bodies and it is called Borborema Pegmatitic Province. The pegmatites are exploited for gems and non-metallic ores and also for metallic by-products. Many of these bodies are mined for radiominerals and radioactive minerals in so-called *garimpos*, illegal mines, with dangerous and insalubrious working conditions. In order to locate the sources of commercial batches of columbite-tantalite (coltan) ores, exported between 2000 and 2004, were made radiometric surveys in these mines in the region of the city of Parelhas and radioactive samples collected from the batches were analyzed for uranium, thorium, niobium, and tantalum. The gamma radiation was measured in the pegmatites, also from their enclosing rocks and from the surrounding soil. The results indicate that uraninite has been mixed with coltan ores, but these minerals themselves show considerable contents of uranium and thorium. Chemical analyses indicate four distinct trends for uranium, possibly correlated with previously and already observed four structural features which control the pegmatites, and also evidencing four magmatic-metassomatic events of their emplacement. Regarding the working conditions in the mines, the sparsely presence of uranium minerals does not necessarily represent a hazard for the workers. Laboring risks are much higher than any kind of radioactive risk.

1. INTRODUCTION

The Brazilian National Nuclear Energy Agency (Comissão Nacional de Energia Nuclear, CNEN) inspects and controls the production and commercialization of uranium and thorium ores, as well as other ores and mineral concentrates, products and subproducts, which contain elements of interest for the nuclear industry like Zr, Li, Be, and Nb.

The occurrence of hundreds of radioactive pegmatites in the Northeast of Brazil is well known [1,3]. Mining in Brazil is frequently done in so-called *garimpos*, illegal mines with precarious working conditions. This term will be used in the following text for the type of mines where columbite-tantalite ore, called coltan, is exploited. The inspection of commercial batches of coltan ores in the Parelhas region, exported between 2000 and 2004, detected contents of uranium with values higher than 0,2 % (2000 ppm) in 15 inspected batches, and in five batches concentrations higher than 0,5 % with a maximum of 2,64 % of U_3O_8 (Table 1). These values characterize the coltan ores from pegmatites of the Parelhas region as being radiometrically anomalous, because their concentration of uranium is higher than the maximum uranium content in the ore of the only Brazilian uranium mine in activity, Caetité, in Bahia with 2000 ppm (0,2 %).

CNEN in partnership with DNPM (National Department of Mineral Production) started investigating the *garimpos* in the region of the Borborema Pegmatitic Province, which exploit coltan ores with the purpose to identify the sources of these coltan ores rich in U and Th. Furthermore was to study the conditions of radioprotection in the *garimpos*. This paper presents preliminary results of these investigations (**Table 1**) and the subsequent geochemical study to achieve a geochemical signature of the coltan ore of Parelhas.

Table 1. Chemical analyses of coltan ore batches from the region of Parelhas in the Borborema Pegmatitic Province between 2000 and 2004.

Batch	U ₃ O ₈ (%)	ThO ₂ (%)	Nb ₂ O ₅ (%)	Ta ₂ O ₅ (%)
001/2000	0.35	0.99	24.40	39.40
003/2001	0.47	0.13	13.80	22.40
005/2001	0.22	0.36	32.60	27.10
006/2001	0.23	0.28	33.20	35.30
008/2001	0.31	0.40	26.42	30.02
011/2001	0.53	0.88	25.70	31.50
012/2001	0.62	0.93	26.20	25.60
013/2001	0.15	0.01	15.00	52.60
016/2001	0.19	0.13	22.20	34.10
020/2001	0.13	0.67	21.80	25.30
001/2002	0.14	0.24	20.10	36.70
008/2002	0.36	0.54	21.60	56.40
009/2002	0.33	0.29	29.50	58.30
002/2003	0.27	0.35	22.40	39.20
003/2003	2.64	0.49	24.70	45.10
007/2003	0.30	0.27	27.25	61.75
010/2003	0.25	0.18	19.60	71.80
012/2003	0.47	0.27	29.70	60.20
013/2003	0.34	0.16	27.40	58.20
015/2002	0.42	0.18	28.30	62.60
001/2004	0.27	0.04	23.00	43.70
001/2004	0.39	0.10	16.02	38.04

These numbers of **Table 1** do not allow to draw conclusions about an existing health hazard for the “garimpeiros” (miners), but denote the necessity of a detailed study in future. In this article the focus will be on radiometry and geochemistry of the radioactive minerals present in the pegmatites of the region of Parelhas, in the states of Rio Grande do Norte (RN) and Paraíba (PB).

2. THE BORBOREMA PEGMATITIC PROVINCE

"The Borborema Pegmatitic Province" was the denomination suggested by Scorza [5] for the area of the pegmatite domain in the northeast of Brazil, distributed in an elongated area of NE–SW direction along the border of the two states Paraíba and Rio Grande do Norte, (Figure 1).

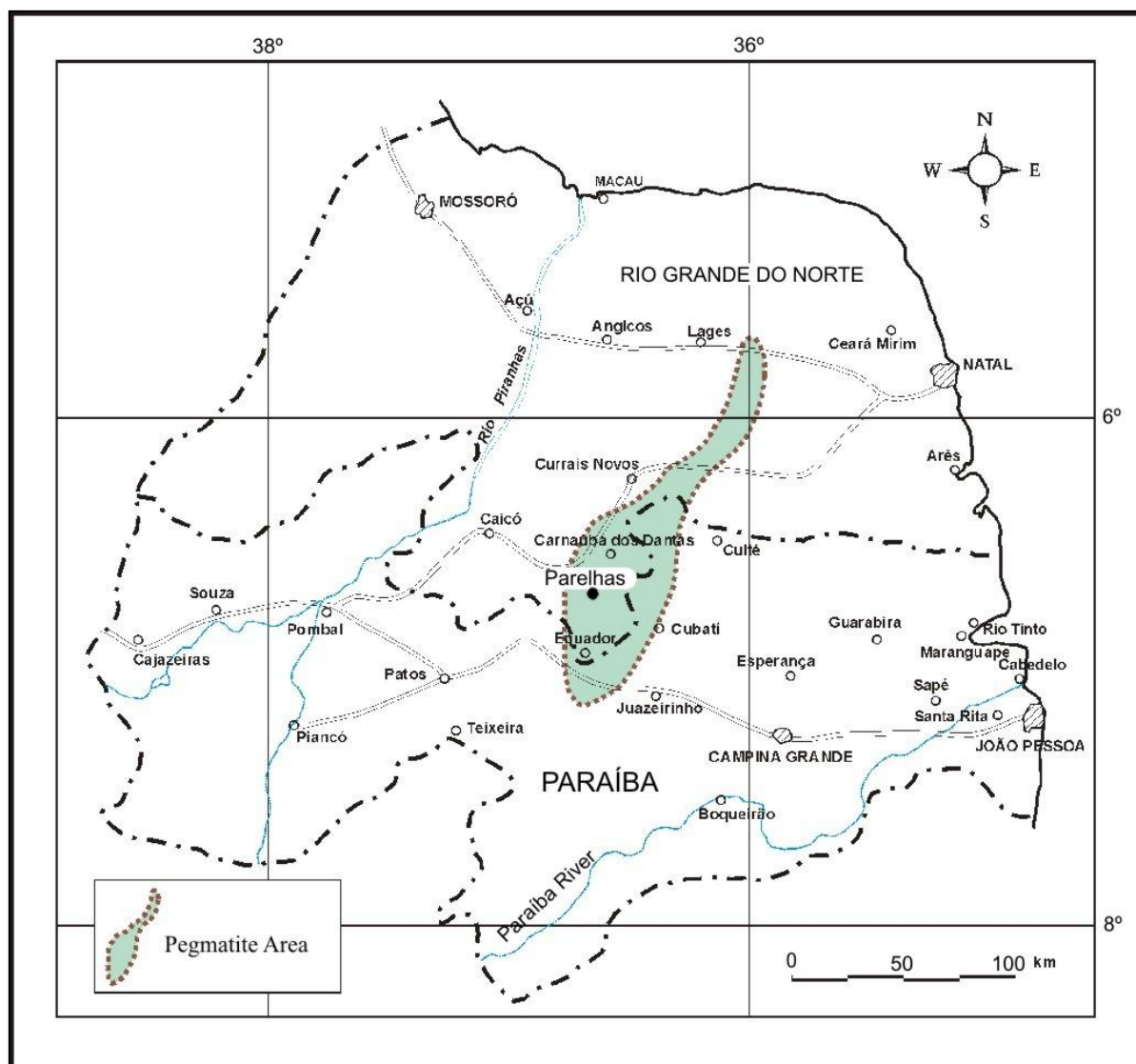


Figure 1. Location map of the Borborema Pegmatitic Province [5].

The basement of the Borborema Province appears to be mainly consolidated in the Paleoproterozoic (Rhyacian and Orosirian periods) [2]. Their mobile belts agglutinate, surround and rework the few archaic cores, which number and localities are still under investigation.

The geotectonic setting of the northeast region, Rio Grande do Norte and Paraíba states are

divided by the Borborema Province and by the Costal Province. The Borborema Province contains the Seridó Group with deposits of scheelite and mineralized pegmatites forming the two principal mineral provinces of the Northeast: the Pegmatitic Province and the Scheelitic Province [4,5,6,7].

The Pegmatites of the Seridó Group are classified in two types related to relative ages and to tectonic events [5]. The first group of older pegmatites (pre F3) shows a high degree of deformation. The second group is of relatively younger age, late tectonic or post phase F3. This group of pegmatites of Neobrazilian age is, probably, genetically related to granites of the same age. Tectonically, the pegmatites are subdivided in four groups: 1) Pegmatites concordant with the principal foliation (S2) and deformed by F3 folds; 2) pegmatites which cut the principal foliation (S2) and the intrafolial F2 folds and are folded by F3 folds; 3) pegmatites which cut the principal foliation (S2) and F2 folds and follow the axial plane of F3 folds; 4) pegmatites which cut the F3 folds.

2.1. Pegmatites of the Parelhas Region

In the literature, the number of the pegmatite bodies in the Borborema Pegmatitic Province varies between 400 and 5000. They are embedded in micaschists, quartzites and gneisses of the Seridó Group and a minority in the gneisses and migmatites of the gneiss-migmatite complex [5]. According to this author, in the *garimpos* in activity the environmental impact is strong and working conditions unsafe.

Several classifications of pegmatites have been suggested. The famous structural classifications of Johnston Jr., Rolff and Roy & Madonna [5] are approximately equivalent. They organize the pegmatites by the degree of homogeneity and dependence of the presence of a single nucleus. The most accepted classification divides the pegmatites in homogeneous, heterogeneous and mixed [5].

3. CLASSIFICATION OF THE DEPOSITS OF RADIOACTIVE MINERALS

Some authors report that has been realized countless attempts to determinate the diverse classes of deposits of radioactive minerals and to arrange them in representative groups of their formation conditions comparing their mineralogical and geological characteristics [3]. These classifications attempt to include not only the characteristics of similarity between the deposits, but, also, their systematic differences. Both the U and Th are relatively abundant in the crust. They are more abundant than metals such as Au, Ag, Bi and Sb. The U, most of all, is a very widespread and geochemically persistent element due to three factors: 1) the isomorphism of U^{+4} with Th, Zr, REE, Ca and Fe^{2+} , therefore appearing together, even in little quantities, in various complex oxides of high temperature, in silicates and in phosphates (Table 2) the great stability of the uraninite, which can form in environments ranging from

conditions of high P and T, as the pegmatites, to atmospheric T and P conditions, and 3) the easy oxidation of U^{+4} to U^{+6} , which forms the uranyl ion $(UO_2)^{2+}$, which can form complexes with carbonate $(CO_3)^{2-}$, which leads, by precipitation, to various uranyl mineral groups of low-temperature; and, with decomposition, can reprecipitate as in an uranious form. Th is not so frequent as U, but also distributed within a considerable P and T range, principally as monazite and thorite. The complex oxides of Th, the silicates and the thorianites are formed, predominantly, in deposits of elevated temperature [3].

Table 2. Main deposit categories and chemical elements accompanying U and Th.

Charac- teristic element	Type of deposit							
	Granitic pegmatite	Carbo- natite	Elevated T	Interme- diate T	Low T veins	Clastic rocks	Uraniferous phospho- rites	Uraniferous black shales
Th	X	X	X					
Ce	X	X						
Y	X		m					
Zr	X	X						
Ta-Nb	X	X						
Ti	X	X	X	X	X			
Fe ²	X	X	X	X	m	X	m	X
Mg			X	X	X	m		
Ca	X	X	X	X	X	X	X	m
Ba		X		X		m		
Sr		X						
Na				X	m			
K			X	X	m	X		
Al			X	X	X		m	m
Si	X	m	X	X		X	m	
C							X	X
CO ₃		X	m	X	m	X	X	m
P		X				m	X	m
S		X	X	X	X	X	m	X
F		X		m	X	m	X	m
Cl		X						
Cu			m	X	m	X		
Pb				m	m	m		
Zn					m	m		
Cd						m		
Mo			m	m	m	m		
Au				X				
Ag				X		m		
V						X		
Bi				X				
Co				X				
Ni				X				
Cr						m		
As						m		
Mn					m			
Se				m		m		

X – always associated; m – minor quantity or eventually present. Source: Heinrich (1966)

4. METHODOLOGY

Methodology follows previous recommended procedures [4,6,7]. This paper resumes 16 inspected *garimpos*, nine had been abandoned and seven were in activity. In these mines, the following activities have been developed: 1) brief mineralogical description, 2) radiometric survey at the surface and in the interior; 3) sampling of coltan ores and other radioactive minerals; 4) sampling of the main mineral types occurring at the mining site and in a local mining company. The samples were analyzed for of U, Th, Nb and Ta.

The counting rates and the dose rates were measured at the excavation front using SPP-2 and SPP-3 scintillometers and Geiger counter, model Thyac. The *garimpos* Alto do Trigueiro I and III and Alto Quintos do Meio were measured in detail.

The detailed study in the selected *garimpos* consisted of: 1) scintillometric survey, with radiometric profiles of the walls (SPP3 multi-channel, with cable of 16 meters); 2) survey of counting rates with SPP-2 and of exposition rates in the interior of the banquette (monitor Thyac); 3) sampling; 4) documentation.

For geochemical modeling was carried out stoichiometric transformation of the weight percentage of U_3O_8 , ThO_2 , Nb_2O_5 , and Ta_2O_5 to their molar percentage quantities. U_3O_8 was converted to molar percentages of U_2O_4 .

5. RESULTS

The inspection of the Pegmatites in the region of Parelhas revealed the presence of radioactive coltan ores with alteration to gummite. Crystals of fresh uraninite were also found, and strongly radioactive gummite with uranium content above 40 % of U_3O_8 , showing octahedral forms, obviously pseudomorphic after cubic uraninite.

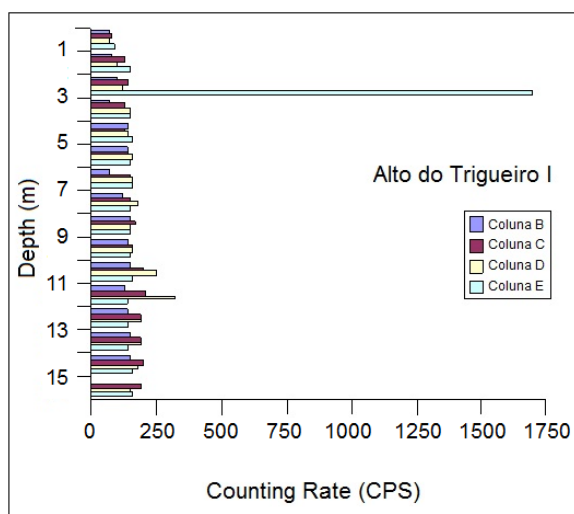


Figure 2. Scintillometric profile of the walls of the *garimpo* Alto do Trigueiro I.

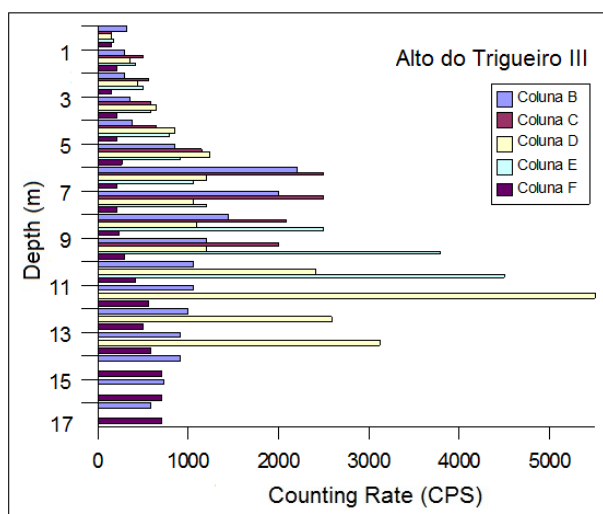


Figure 3. Scintillometric profile of the walls of the *garimpo* Alto do Trigueiro III.

In many *garimpos* were detected points with very elevated radiation (**Table 3**). Two of them are presented in **Figures 2 and 3**. Three of them were selected for detailed studies. The highest value measured was 30 mR/h. All the *garimpos* in activity had as primary production other types of ores, like feldspar and quartz.

Four samples of coltan were collected, three to determine the contents of uranium and thorium and one to determine the contents of niobium and tantalum. In three radioactive samples were confirmed uranium minerals. The maximum contents attained were: 68.3 % of U_3O_8 , 0.306 % of ThO_2 , 2.56 % of Nb_2O_5 , and 2.0 % of Ta_2O_5 . Regarding the sample of coltan ore, the following relation was observed: U_3O_8 1.75 %, ThO_2 0.008 %, Nb_2O_5 44.6 %, and Ta_2O_5 31.4 %.

All samples provided by the mine workers had been stored together with fragments of other minerals, but for the miners it was just a small batch of coltan ore. Most crystals had a crust of gummite (10000 cps in contact with the container). A sample with elevated levels of Nb and Ta did not show this alteration crust. The X-ray diffraction, performed by CDTN/CNEN, in two of these samples (primary and secondary mineral of uranium), identified the minerals reported in **Table 4**. The analysis by X-ray fluorescence of the sample of secondary uranium mineral is shown in **Table 5**.

Table 3. Exposition rates in the interior of the the *garimpo* Alto do Trigueiro III.

Locality	Exposition rate (mR/h)
Central part at 1 m from the ground	0.3; 0.25; 0.1
At 1 m from the walls	0.5; 0.15; 0.08; 0.16
Selected points in contact with the wall	2.0; 1.5; 3.5; 7.0; 8.5; 4.0; 1.4; 1.0; 20.0 (gummite core)
In the excavation area at 1 m from the wall	0.15
Gummite fragments at the surface (contact - 1 m)	0.8 – 0.25

Table 4. Analysis of uranium minerals by X-ray diffraction.

Sample	Identified Mineral		
	Predominant (> 80 %)	Minor (< 5 %)	Rare (< 3 %)
Primary Mineral	Uraninite	Curite; Paraschoepite; Uranophane	—
Secondary Mineral	Uranophane	Kasolite	Curite; Metatorbenite Uraninite

Analysis by CDTN/CNEN

Table 5. Qualitative analysis of secondary uranium mineral by X-ray fluorescence.

Sample	Identified Mineral*			
	Principal (> 10 %)	Major (< 10 %)	Minor (> 5 %)	Trace (< 0,1 %)
Secondary Mineral	U	Al, Si	Cu, Fe, Mn, Pb	P

* Estimate of the contents of the detected chemical elements. Analysis by CDTN/CNEN

Crystalline uraninite occurs in the mines of Alto Quintos do Meio, Trigueiro II and III. In Trigueiro IV were observed only gummite pseudomorphs after coltan ore. Here and in Alto Trigueiro II and III, uraninite and coltan ores were observed in the middle of a cluster of muscovite, feldspars and quartz. In Trigueiro IV, coltan ore is seen as an inclusion in morion quartz and feldspars.

Table 6 shows the analyses of the radioactive samples collected in the *garimpos* of the region. For the selection were considered counting-rates, mineralogical characteristics (samples dark, dense, yellowish alteration, etc.). **Table 7** summarizes the results of the sample analyses of the mineral types occurring in the inspected *garimpos*.

Table 6. Results of chemical and radiometric analyses of selected samples, collected in various inspected *garimpos*.

Sample from garimpo	SPP-2 (cps)	SPP-3 (cps)	Mass (g)	Chemical analyses (%)			
				U ₃ O ₈	ThO ₂	Nb ₂ O ₅	Ta ₂ O ₅
Alto do Trigueiro I	2500	2500	247.2	49.8	0.32	5.66	3.4
Alto do Trigueiro III	160	125	99.8	1.75	0.01	44.6	31.4
Alto do Trigueiro III	>15000	>15000	182.3	57.5	0.31	2.24	< 0.005
Alto do Trigueiro (Nezinho)	>15000	>15000	68.9	68.3	0.22	2.56	2
Alto do Trigueiro (Nezinho)	>15000	>15000	54.3	58.5	0.17	2.42	1.8
Alto do Trigueiro II - Feldspar	1000	750	47.5	0.11	< 0.001	0.09	< 0.005
Alto Quintos do Meio	5000	7500	10.1	43.6	N.A.	1.7	0.9
Alto do Giz	350	300	304.8	0.19	0.1	5.51	4.7
Alto das Areias	390	310	108.0	0.35	< 0.003	52.4	25.1
MALHADA VERMELHA	1300	1300	6.9	0.92	0.01	56.9	11.8
MALHADA VERMELHA/2	600	490	132.7	0.52	< 0.003	64	13.4
Alto Manoel Sabino	1250	1000	272.1	0.78	0.79	9.68	54.5

N.A.: Not Analyzed. SPP-2 (CNEN). SPP-3 (UFRJ). Mass (CNEN). Chemical Analysis (CNEN); BKG: SPP-2. 150 cps. SPP-3. 150 cps.

The graphs of **Figures 4, 5, 6** and **7** show the chemical behavior of uranium and thorium in

coltan ore. **Figures 4 and 5** show that the coltan ore from Parelhas is mostly tantalite and columbite is slightly richer in U than tantalite. Th has a wide spectrum of enrichment in both of the minerals but, however, much higher values in columbites. This is explained by the higher exsolution of the larger ions followed by subsequent leaching of the more soluble elements.

Table 7. Chemical analysis of representative samples from the *garimpos*.

Mine, Garimpo	Sample	U ₃ O ₈ (%)	ThO ₂ (%)
Mining company	White feldspar	< 0.003	< 0.003
Mining company	Mafic accessories	2.1	0.1
Mining company	Quartz + felsic accessories	0.01	< 0.003
Trigueiro I	White feldspar	0.04	< 0.003
Trigueiro I	Mafic accessories	0.11	< 0.003
Trigueiro I	Quartz + felsic accessories	2.1	< 0.003
Trigueiro III	White feldspar	< 0.003	< 0.003
Trigueiro III	Mafic accessories	0.03	< 0.003
Trigueiro III	Quartz + felsic accessories	< 0.003	< 0.003
Trigueiro III	Red Feldspar	< 0.003	< 0.003
Quintos do Meio	White Feldspar	< 0.003	< 0.003
Quintos do Meio	Mafic accessories	0.07	0.02
Quintos do Meio	Quartz + felsic accessories	0.01	< 0.003
Cabeças	White feldspar	< 0.003	< 0.003
Cabeças	Mafic accessories	< 0.003	< 0.003
Cabeças	Quartz + felsic accessories	< 0.003	< 0.003

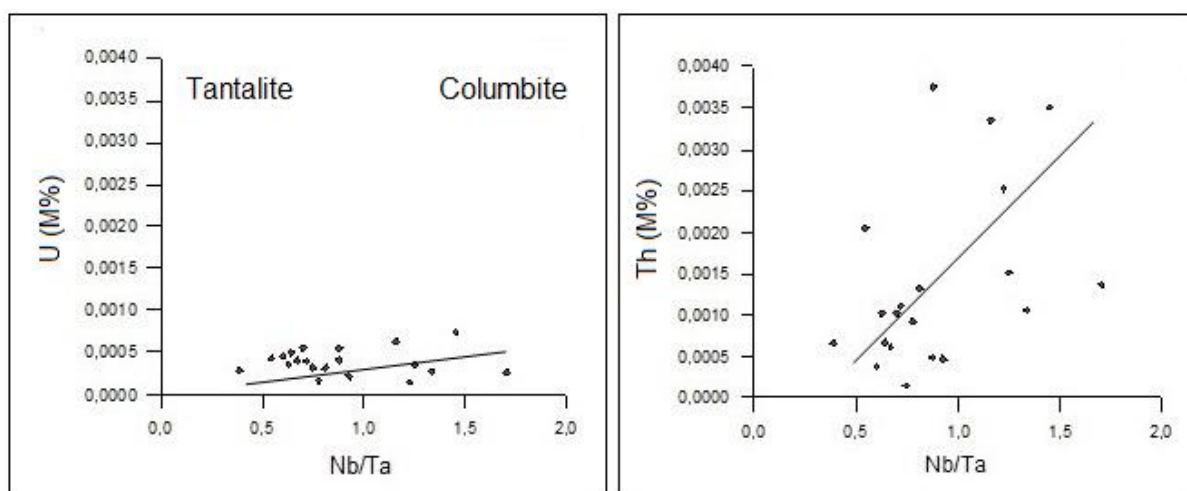


Figure 4 and 5. Chemical Partition of U and Th in coltan ore.

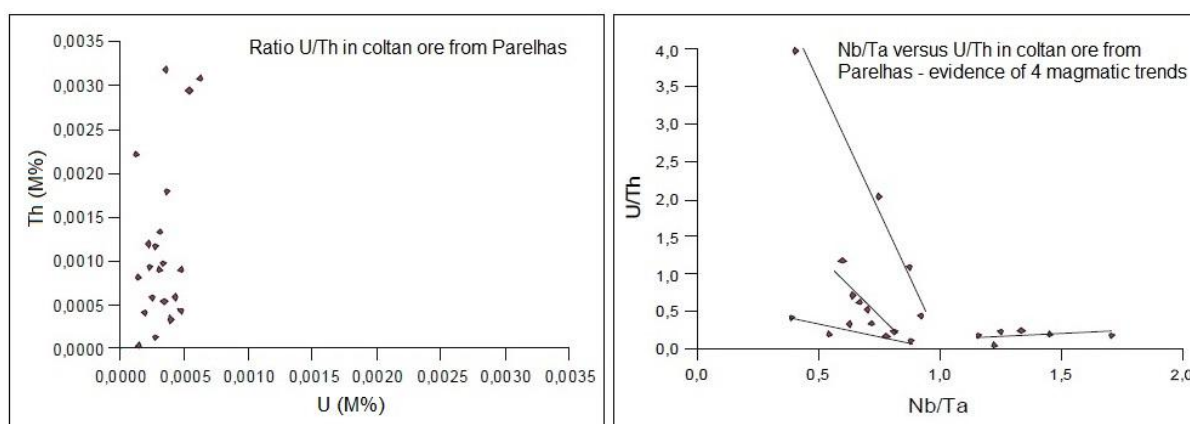


Figure 6 and 7. Elemental ratios in coltan ore.

Figure 6 shows that the molar composition of the coltan ore of Parelhas is richer in Th than in U. Actually, this contradicts the results of chemical analysis of gummite and uraninite samples by fluorescence and X-ray diffraction, but the graph shows that in fact the weathering has acted strongly and uranium has been leached more than thorium.

A structural control of the emplacement of the pegmatites was described [5] and the pegmatites were subdivided in four structurally controlled groups. **Figure 7**, ratio U/Th versus Nb/Ta, illustrates that chemical control is also evident and there can be detected four formation events of the pegmatites. Each event imposed its own element ratios, as can be seen in figure 7. The effect of weathering - exsolution of larger ions, subsequent formation of gummite, and leaching of the mobile species - with consequent accumulation of the less soluble species, does not affect the element ratios imposed during the intrusive events, because the leaching rate remobilizes constant ratios, although acting on different initial ratios: the partition is constant.

6. CONCLUSIONS

Field and laboratory results indicate that the radioactive elements in these *garimpos* are found in two different modes: 1) uraninite: cubic dark crystals with isolated occurrence or in cores, normally with yellowish alteration crust (Alto do Trigueiro I, II and III); 2) the radioactive elements occur associated and/or incorporated in the structure of coltan ore (Trigueiro IV and Quintos do Meio).

In the production of the *garimpos* inspected by the CNEN/DNPM, it was noticed that uraninite is added to the coltan ore to increase the weight of the batch.

Although a detailed study in relation to the conditions of radioactive exposition of the miners in these *garimpos* was not conducted, some statements can be made:

- Uranium minerals were identified in some *garimpos*, but the occurrences are punctual and sparse, forming “crystalline nuclei” with maximum diameter of five centimeters.
- The *garimpos* of the region are exploited in an archaic, artisan, predatory and very insecure way. These processes are of high risk for the workers, low economic efficiency and inappropriate use of the deposit.

Further studies will intensify the investigation on chemical trends in relation to the structural control described by the CPRM and the detailed examination of radioprotection conditions.

ACKNOWLEDGMENTS

We thank the 14th District of the National Department of Mineral Research/RN, the Division of Raw Materials and Minerals (DIMAP), the Division of Fortaleza (DIFOR), the Coordination of the Laboratories of Poços de Caldas (COLAB), and the Center of Development of Nuclear Technology (CDTN) of the National Nuclear Energy Agency (CNEN).

REFERENCES

1. Benvindo da Luz, A.; Freitas Lins, F.A. Piquet, B.; Costa, M.J. & Coelho, J.M. “Pegmatitos do nordeste: diagnóstico sobre o aproveitamento racional e integrado,” Série ***Rochas e Minerais Industriais***. CETEM, R.J. 96p. (2003).
2. Brito Neves, B.; Van Schmus, W. R.; dos Santos, E.J.; Campos Neto, M. C. & Kozuch, M. “O Evento Carirís Velhos na Província Borborema: integração de dados, implicações e perspectivas.” *Revista Brasileira de Geociências*, **25** (4):279-296 (1995).
3. Heinrich, E.W. *Mineralogia Y Geologia de las Materias primas Radiactivas*. Editora Omega, Barcelona. Capítulo V, Yacimientos de Pegmatitas Radiactivas, pp.209-248 (1966).
4. Miyasaki, G.S. & Costa de Moura, J. “Inspeção de lavras garimpeiras. Província pegmatítica da Borborema, Rio Grande do Norte/Paraíba.” Relatório técnico DIFOR/DIMAP N° 01/04. 21p. Comissão Nacional de Energia Nuclear, Rio de Janeiro (2004).
5. DNPM/CPRM, *Principais Depósitos Minerais do Brasil. Volume IV*, parte B, capítulo 41, Província Pegmatítica da Borborema – Seridó, Paraíba e Rio Grande do Norte; Brasília, pp. 441-467 (1997).
6. Projeto Currais Novos, Relatório Final de Sondagem, Convênio CNEN/CPRM (1974).
7. Projeto Jardim do Seridó, Relatório Final – mapas, Convênio CNEN-CPRM, Min. das Minas e Energia, **Vol. I-II** (1975).

ANEXO 2 - SEGUNDO ARTIGO**GEOCHEMICAL SIGNATURE OF COLUMBITE-TANTALITE AND ENVIRONMENTAL IMPACT OF RADIOACTIVE PEGMATITE MINING IN THE PARELHAS REGION, RIO GRANDE DO NORTE, NORTHEAST BRAZIL**

Autores: Jorge Costa-de-Moura, Isabel P. Ludka, Julio C. Mendes, Paulo R. Cruz & Valmir Pereira

Artigo enviado para publicação em: 21 de junho de 2013

Artigo aceito em: 26 de setembro de 2013

2013 International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2013

Recife, PE, Brasil, November 24–29, 2013

ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE ENERGIA NUCLEAR – ABEN

ISBN: 978-85-99141-05-2

GEOCHEMICAL SIGNATURE OF COLUMBITE-TANTALITE AND ENVIRONMENTAL IMPACT OF RADIOACTIVE PEGMATITE MINING IN THE PARELHAS REGION, RIO GRANDE DO NORTE, NORTHEAST BRAZIL

**Jorge Costa-de-Moura¹, Isabel P. Ludka², Julio C. Mendes², Paulo R. Cruz¹
and Valmir Pereira¹**

¹ Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN)
Rua General Severiano, 82 - Botafogo
22290-901 Rio de Janeiro, RJ, Brazil
jcmoura@cnen.gov.br
pcruz@cnen.gov.br
vpereira@cnen.gov.br

² Departamento de Geologia
Centro de Ciências Matemáticas e da Natureza (CCMN)
Universidade Federal de Rio de Janeiro (UFRJ)
Avenida Athos da Silveira Ramos, 274, Ilha do Fundão
21941-902, Rio de Janeiro, RJ, Brazil
ludka@geologia.ufrj.br
julio@geologia.ufrj.br

ABSTRACT

This article comprises geochemical, structural and radiometric investigations on radioactive pegmatites of the Borborema Pegmatitic Province in Northeast Brazil. The studied area is located in the surroundings of the city of Parelhas, in the geotectonic Province of Borborema. It is well known for its thousands of pegmatitic bodies exploited in primitive mines called *garimpos*. The main goal was to find an efficient, cheap and routine inspection procedure to identify the origin of commercialized radioactive columbite-tantalite (coltan) ore. The Brazilian Nuclear Energy Agency (CNEN) controls uranium commerce and nuclear activity in Brazil. Without an effective method to characterize coltan ores from different localities it is impossible to control the trade. The here presented new method was developed by correlating structural features of these pegmatites with the geochemical behavior of their coltan samples. It was found that the variation of U/Th vs. Nb₂O₅/Ta₂O₅ provides geochemical signatures (analytical fingerprints) for the source location of such ore. The new method was tested with coltan samples of commercial batches from the Brazilian states of Amapá and Rondônia and also generated distinct geochemical signatures. A radiometric survey (CPS) to study the environmental impact of gamma radiation was also carried out in several mines and pegmatites. It included *in situ* measurements of pegmatite walls, enclosing rocks, soil, and accumulated water and revealed that gamma emitters are hardly solubilized and therefore environmental gamma radiation generally is not enhanced to a dangerous level.

1. INTRODUCTION

1.1. General Objective

This article comprises a geochemical-structural study and a radiometric survey of pegmatites and their radioactive coltan minerals in the Serra da Borborema, surroundings of Parelhas, a city in the Brazilian state of Rio Grande do Norte. The studied area is well known for its thousands of pegmatitic bodies which are exploited in primitive mines, the so-called *garimpos*. Coltan is the trade name for columbite-tantalite ores, general fórmula (Fe,Mn)(Nb,Ta)₂O₆. Columbite is named after its content of the element niobium, Nb, formerly called columbium (Cb), and tantalite for its content of the element tantalum, Ta [2,

17]. Coltan is the main ore for Nb and Ta, especially, the latter nowadays most important in electronic devices like mobile telephones. They often contain elevated levels of naturally occurring uranium, U, and thorium, usually high enough for them to be classified as radioactive for handling and transport [19].

A transport of a cargo which contains radioactive materials with specific activity higher than 70 kBq/kg is considered a transport of hazardous material Category 7. All transport of hazardous material is regulated by specific laws of the Ministry of Transport and for the cases of Category 7 the CNEN regulates and controls such transport [21].

The main objective of this investigation was the development of a geochemical signature for the source location of coltan ore, which commerce is controlled by the Brazilian Nuclear Energy Agency (Comissão Nacional de Energia Nuclear - CNEN) based on regular analytical procedures. In 2003 an investigation was started on commercial batches of coltan ore controlled by the CNEN between 2000 and 2004 with declared origin from the Parelhas region. The purpose was to identify the rock source and, *latu sensu*, the provenance location of the coltan ore. The results of a preliminary survey to determine methodology, geology and structural discussion were published [9,10].

Without an effective method to characterize coltan ores from different locations it is impossible to control their commerce. The Brazilian law does not allow the transportation of radioactive material without special permission by the CNEN. The commercialized ore is declared to be produced in the place of fiscalization, thus the real origin remains unknown. The ore may come from another region, state and even from other countries (smuggle). Since, especially in Africa, illegal commerce of coltan has become a great problem. Even the United Nations Security Council recommended the development of a traceability system able to prove the origin of coltan ores [15, 16]. Other authors [14, 15,16] studied many samples from all over the world and presented fingerprints for coltan ore, but with expensive analytical efforts combining ore microscopy, study of REE distribution patterns and U-Pb dating.

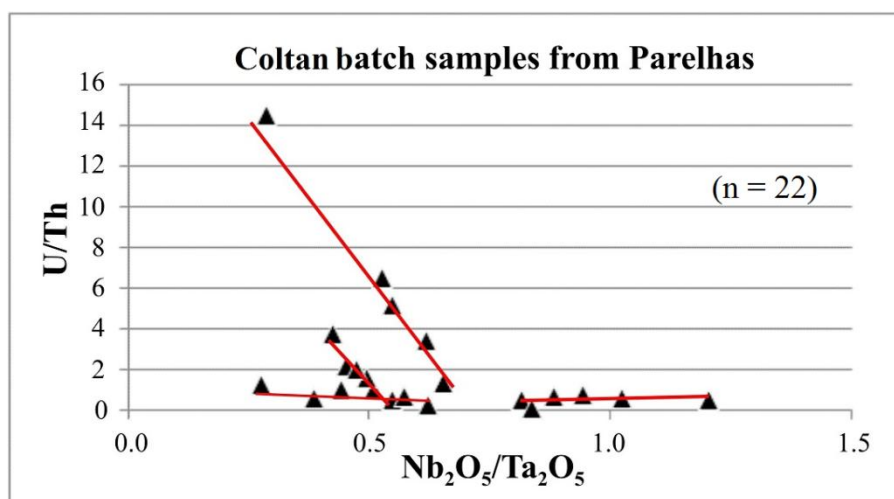


Figure 1: Partition of U/Th in samples of commercial coltan ore batches controlled by the CNEN between 2000 and 2004 indicating four geochemical trends.

Modeling of chemical analyses of these commercial coltan batches indicated four geochemical trends (Fig. 1) when plotting ratios of U/Th vs. $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ in a scatter diagram [10], eventually corresponding to four structurally different types of source pegmatite described by [1] and [11]. In order to verify this hypothesis the study was then extended on selected pegmatites in this region and focused on the geochemical behavior of U, Th, Nb, and Ta of their coltan samples.

The gamma radiation of those coltan ore batches was also measured and indicated possible labor and environmental hazards. Therefore another objective was to determine the environmental impact of the radioactive minerals in the mines (garimpos) and on the surface of the pegmatites.

1.2. Methodology

A series of field campaigns was conducted in order to measure gamma radiation at the garimpos, to map pegmatites geologically, to identify the four structurally controlled types of pegmatites described in the literature [1], and to select the sites for later sampling of coltan minerals at each different type of pegmatite. Methodology follows previous recommended and described procedures [6, 7, 10]. It was carried out:

- 1) Detailed geological mapping and sampling of radioactive minerals.
- 2) Scintillometric survey of gamma radiation inside and outside the pegmatites.
- 3) Analysis of samples with X-ray diffractometry for mineral identification.
- 4) Chemical analysis of samples for U, Th, Nb, and Ta.
- 5) Modeling of the geochemical data. Presentation of geochemical and radiometric data.

50 pegmatites have been mapped in detail (scale 1:1000). Structural measurements were performed using a common geological compass and position was determined by means of GPS equipment. Coltan and other radioactive minerals were sampled in 21 pegmatites.

All samples were analyzed in the CNEN laboratories. U and Th contents were measured by photometric analysis (Arsenazo III-II Method). Nb and Ta were analyzed by X-ray fluorescence. The analytical methodologies are published [8, 20]. Results of analyses are obtained in weight-percent (wt%) of the oxides U_3O_8 , ThO_2 , Nb_2O_5 , and Ta_2O_5 . For geochemical modeling U_3O_8 and ThO_2 were stoichiometrically converted into elemental percentages (wt%). After conversion, the behavior of these two elements and the two oxides was studied with dispersion XY-diagrams (program Microsoft Excel®), especially, the here presented variation of U/Th vs. $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$.

The measurement of gamma radiation expressed in counting rates per second (CPS) at the excavation sites of the garimpos was carried out in direct contact using a SPP-3 scintillometer with a 20 meter cable. This scintillometric survey included measurements on the surface of the pegmatites, excavation walls of the garimpos, soil, enclosing rock and underwater, where rainwater was trapped in the excavation. The acquired data were illustrated as bar and dispersion charts of the profiles of gamma radiation (CPS), also created with the computer program Microsoft Excel®.

1.3. The Borborema Pegmatitic Province

Borborema Pegmatitic Province is the denomination for the area of the pegmatite domain located in the north-east of Brazil and distributed in an elongated area of NE–SW direction along the border of the two states Paraíba and Rio Grande do Norte [12] and part of the northern geotectonic Province of Borborema (Fig. 2). North of the Patos Lineament is found the largest and most diverse and complex crustal architecture in this region with large extensions of Archean and Paleoproterozoic terranes and Brasiliano domains (Médio Coreáú, Ceará and Central Brazil) [13].

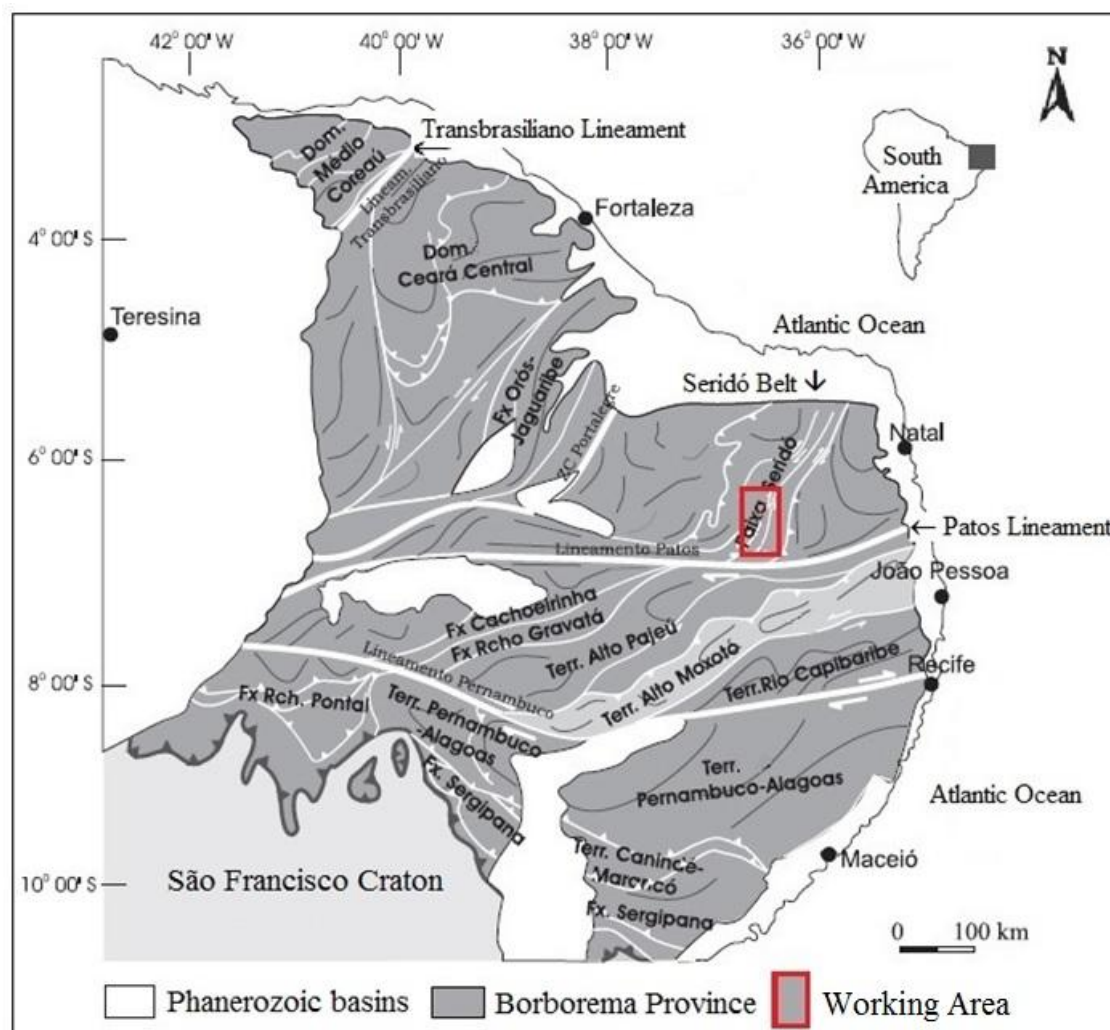


Figure 2: Tectonic subdivision of the Borborema Province, with the location of the working area (red square) in the Seridó Belt. Modified after [12].

The basement of the Borborema Pegmatitic Province was mainly consolidated in the paleoproterozoic (Rhyacian and Orosirian periods) and reworked during the Brasiliano events. The mobile belts agglutinate, surround and rework the Archean cores [6].

The pegmatitic area is located in the Seridó Belt which is well known for its many pegmatites which intruded the Seridó Group along a major NE-trending shear zone during a post-

Brasiliano extensional event (550–500 Ma). This group is divided into three formations, which are from bottom to top: the Jucurutu, the Equador, and the Seridó formations [3]. In the working area of this investigation only outcrop the Equador and Seridó formations.

In the literature, the number of pegmatites in the Borborema Pegmatitic Province varies between 400 and 5000 [4]. They are embedded in micaschists, quartzites and gneisses of the Seridó Group and a minority in the gneisses and migmatites of the gneiss-migmatite basement complex [11]. They are mainly exploited for gems and metallic ores in coproduction of ornamental quartz and feldspar for the ceramic and cement industry. Frequently, radioactive ores are extracted in the garimpos, illegal mines, with dangerous and insalubrious working conditions (Fig. 3). A brief introduction to geology and mineralogy of the Parelhas pegmatites was given in [9].

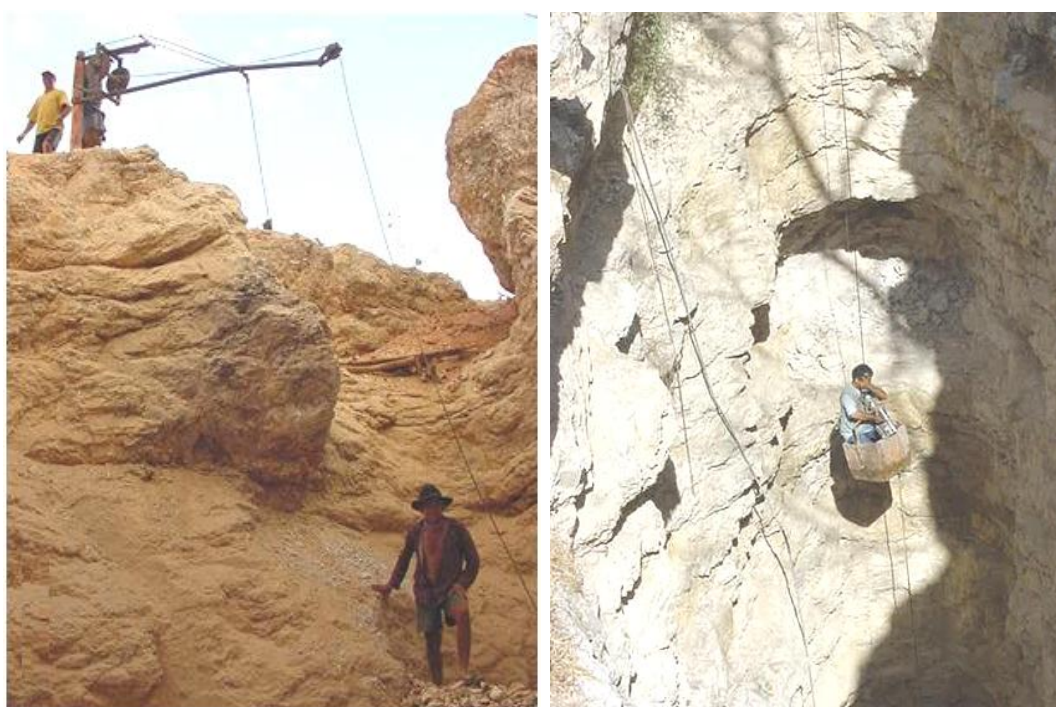


Figure 3: Working conditions: Ore elevation point of the garimpo Malhada Vermelha (left). Mining transportation system (in buckets) of the garimpo Alto dos Mamões (right).

The pegmatites of the Borborema Pegmatitic Province are classified in two types related to relative ages and to tectonic events. The first group of older pegmatites (pre F3) shows a high degree of deformation. The second group has a younger age, late tectonic or post F3 deformation phase. This group of pegmatites of Neoproterozoic age is probably genetically related to granites of the same age [5].

This investigation is based on the pegmatites' subdivision in four tectonic groups [1, 11]:

- 1) Pegmatites concordant with the principal foliation (S2) and deformed by F3 folds;
- 2) pegmatites which cut the principal foliation (S2) and the intrafolial F2 folds and are folded by F3 folds;

- 3) pegmatites which cut the F3 folds;
- 4) pegmatites which cut the principal foliation (S2) and F2 folds and follow the axial plane of F3 folds.

These four structurally different pegmatites are here named Type I, Type II, Type III, and Type IV.

2. RESULTS

2.1. Geochemical Signature of the Coltan from Parelhas Pegmatites

Columbite is defined by an atomic ratio $\text{Nb/Ta} > 1$ and Tantalite by $\text{Nb/Ta} < 1$, respectively. Pure columbite and tantalite are unknown in nature; they are theoretical end members of a solid solution series, the columbite group (see section 2.2.1). Therefore its members are also called Columbite-Group Minerals, symbol CGM [19].

The relation $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ represents the columbite-tantalite composition in the following graphs. For preliminary study, the oxides were transformed to their molar percentages [9, 10], where the separation between columbite/tantalite on the X-axis is at the value 1 ($\text{Nb/Ta mol\%}$). The diagrams of this work are based on their oxides in weight percentage, $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$. Therefore the separation between columbite/tantalite is now at $x = 0.6015$ ($\text{Nb}_2\text{O}_5 \text{ mol}/\text{Ta}_2\text{O}_5 \text{ mol} = 265.82/441.90$).

The correlation of the tectonic classification [1, 11] and structural data of the pegmatite types I, II, III, and IV (Fig. 4, 6, 8, 10) with the chemical data of their coltan samples (Fig. 5, 7, 9, 11) resulted in the here presented structural-chemical characterization, the geochemical signature (fingerprint). Modeling of the geochemical data of their coltan samples with variation diagrams of $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ vs. U/Th revealed the same pattern with four trends (Figures 5, 7, 9, 11) like the coltan ore of the previously studied commercial batches (Fig. 1).

To illustrate this correlation, we here present for each pegmatite type two detailed geological maps (Fig. 4, 6, 8, 10) together with the corresponding elemental ratio diagram of its coltan samples (Fig. 5, 7, 9, 11). All these four diagrams are plotted in the same scale as Fig. 1 for comparison.

2.1.1. Type I pegmatites – concordant with the principal foliation (S2) and deformed by F3 folds

Nine samples of coltan minerals from two different Type I pegmatites were analyzed. These pegmatites are generally homogeneous. Semiprecious stones and metallic minerals are small; uraninite is absent. The pegmatites are allocated inside the schist's foliation like sills (Fig. 4).

The coltan minerals of Type I are rich in Ta and their ratios U/Th are very low. The samples plot nearly parallel to the x-axis in a slightly negative trend (Fig. 5).

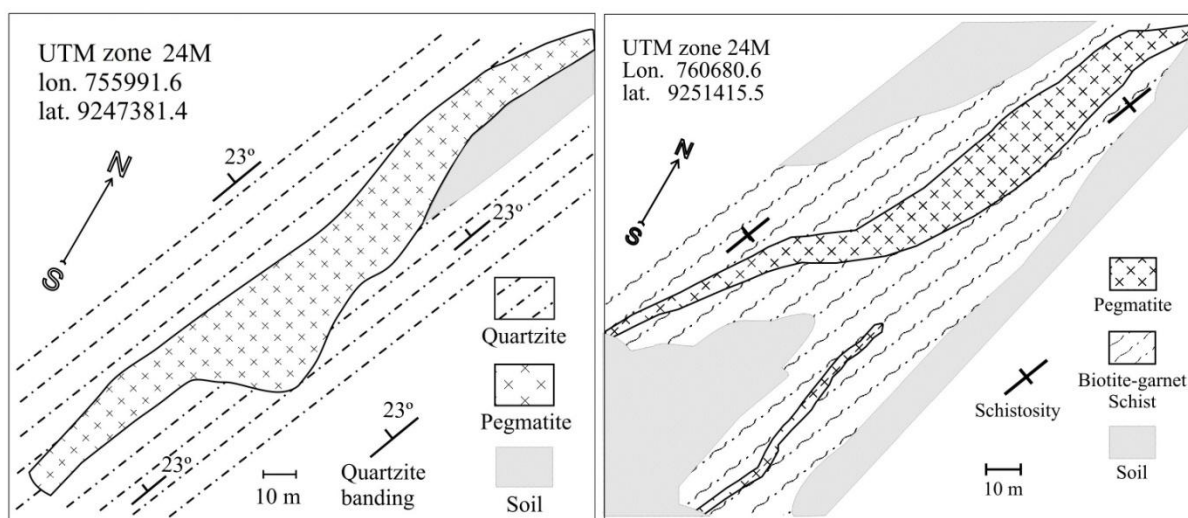


Figure 4: Detailed maps of Type I pegmatites: Alto da Mata (left) and Alto de Antônio Porfírio (right).

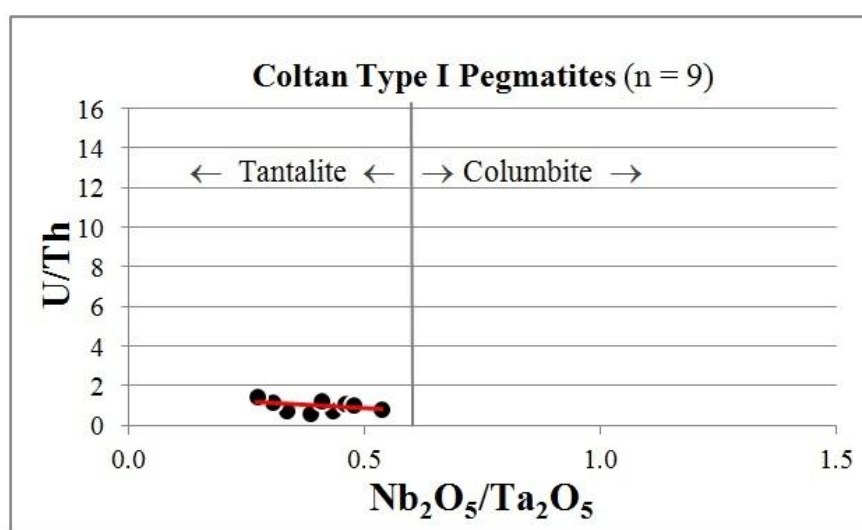


Figure 5: Variation of U/Th in coltan samples of Type I pegmatites.

The main characteristic for the coltan minerals of Type I pegmatites is a slightly negative trend line with small variation of U/Th from 0.61 to 1.45 only and $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ ranging from 0.27 to 0.54. So, the fingerprint of Type I is the low ratio $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ characterizing a composition of tantalite (atomic Nb/Ta < 1) with nearly no variation for U/Th (Fig. 5).

2.1.2. Type II pegmatites – cut the principal foliation (S2) and the intrafolial F2 folds and are folded by the F3 folds

11 samples of coltan minerals from two different Type II pegmatites were analyzed. Generally, such pegmatites are homogeneous. They settle as an *in situ* molten piece of the

enclosing rock in a more or less rounded outcrop that follows and cuts the schist's foliation (Fig. 6). Some parts intrude *lit par lit* the enclosing rocks.

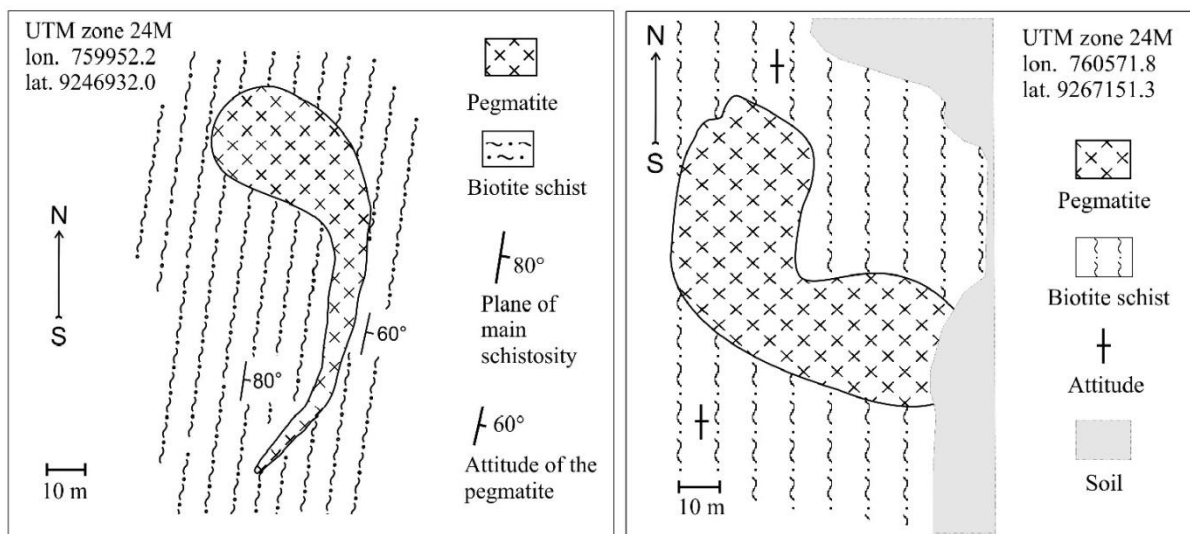


Figure 6: Detailed maps of Type II pegmatites: Alto Malhada Vermelha (left) and Alto da Boa Vista (right).

Like in Type I pegmatites, in Type II pegmatites semiprecious stones and metallic minerals are small and uraninite was not found.

Characteristic for the coltan minerals of Type II pegmatites (Fig. 7) is the trend line nearly parallel to the x-axis like Type I (Fig. 5), but with a higher $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ ratio ranging from 0.82 to 1.20. The U/Th ratio is also very low, but the trend line slightly positive. So, the fingerprint of Type II is a composition of columbite with nearly no variation for the very low ratio U/Th.

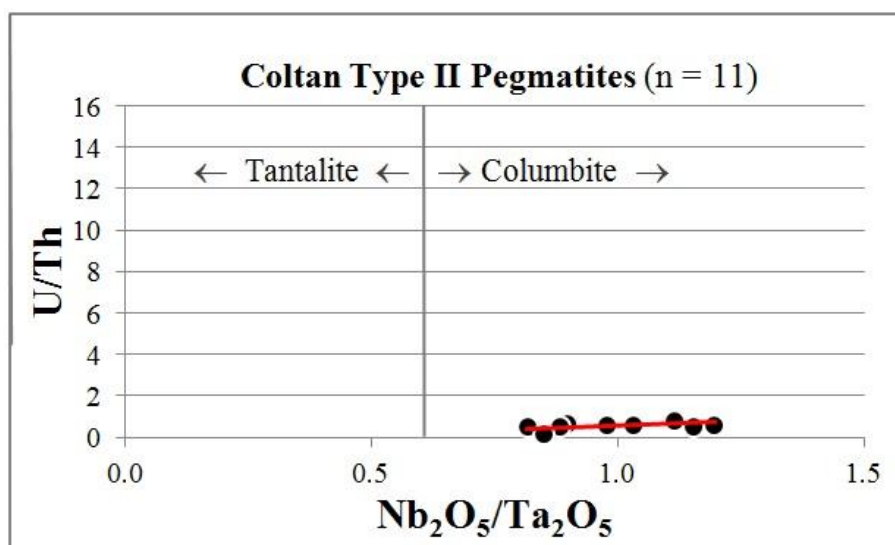


Figure 7: Variation of U/Th in coltan samples of Type II pegmatites.

2.1.3. Type III pegmatites – cut the F3 folds

13 samples of coltan minerals from two different Type III pegmatites were analyzed. Type III pegmatites are intersecting the schist's foliation like dykes running in two different directions: NW-SE and SW-NE (Fig. 8). They are generally heterogeneous showing small quartz nuclei. Gems and semiprecious stones and metallic minerals may appear like megacrystals and in jewelry quality. Uraninite was identified and sampled.

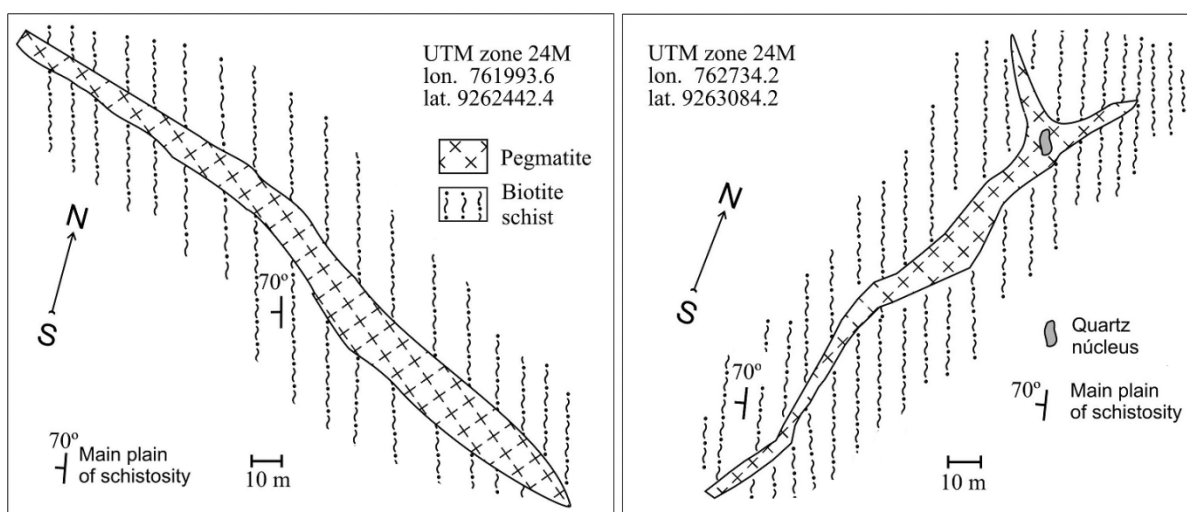


Figure 8: Detailed maps of Type III pegmatites: Alto Pé da Serra (left) and Alto País da Lua (right).

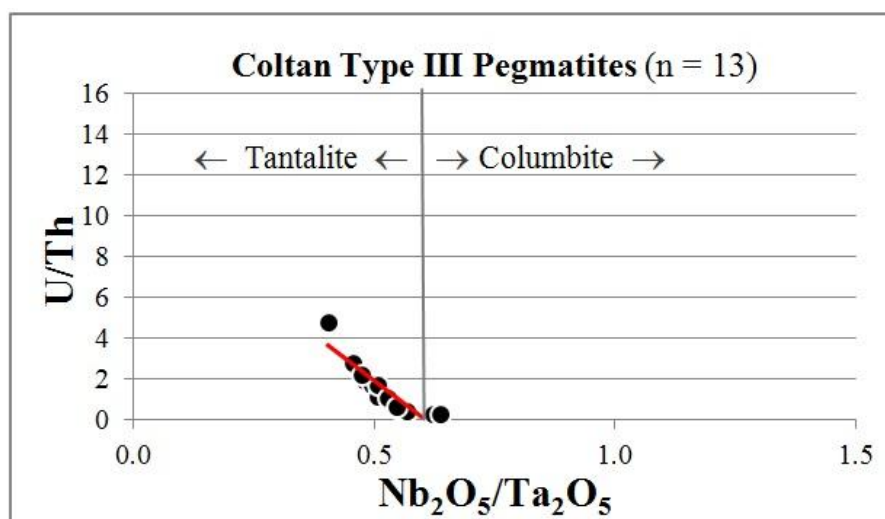


Figure 9: Variation of U/Th in coltan samples of Type III pegmatites.

Coltan samples of Type III (Fig. 9) show a high relative enrichment in U and relative depletion in Th in comparison to Type I and II (Figures 5 and 7). This behavior cannot be a result of weathering, once it is known that U is more mobile than Th in environmental conditions. So, such high U/Th ratios surely indicate a younger age of such pegmatites in

comparison to Types I and II.

The trend line slope is steep what may indicate a continuous series between Th-rich to Th-poor coltan minerals. The fingerprint for Type III is a composition of mainly tantalite ($\text{Nb}/\text{Ta} < 1$) with steep negative trend, a variation of U/Th from 0.32 to 4.84, and $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ ranging from 0.40 to 0.63.

2.1.4. Type IV pegmatites – cut the principal foliation (S2) and the F2 folds and follow the axial plane of F3 folds

At three different sites of Type IV pegmatites 11 samples of coltan minerals were collected and analyzed. Type IV pegmatites intrude orthogonally to the schist's foliation like dykes,

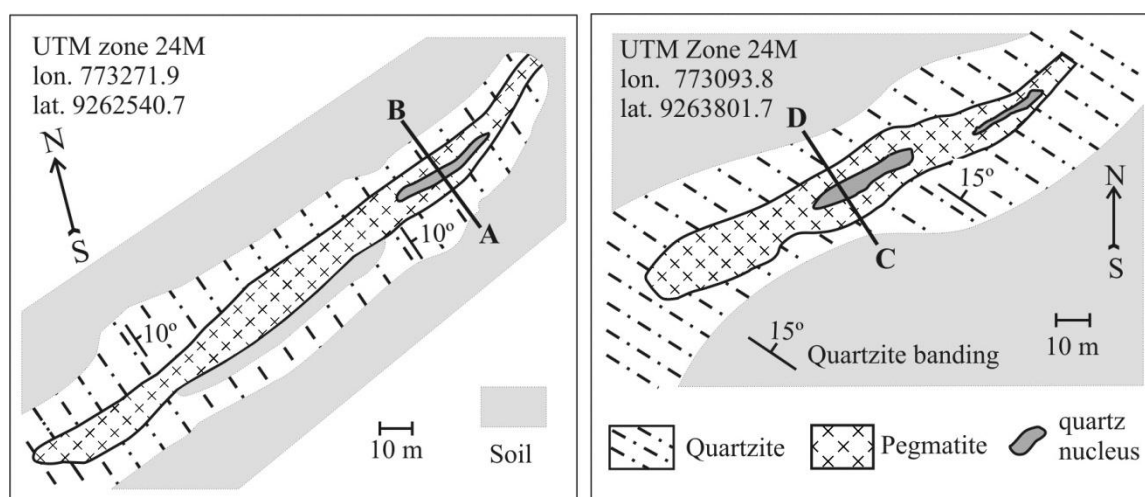


Figure 10: Detailed maps of Type IV pegmatites: Alto Trigueiro I (left) and Alto Trigueiro III (right). A-B and C-D are profile lines of Fig. 13 and Fig. 14.

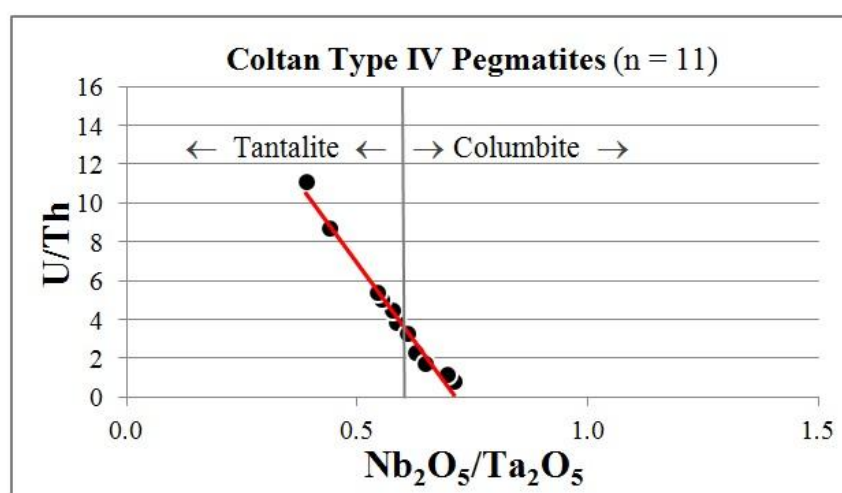


Figure 11: Variation of U/Th in coltan samples of Type IV pegmatites.

but they are always running SW-NE (Fig. 10). They are normally heterogeneous showing the largest quartz nuclei. Gems appear as megacrystals and in jewelry quality, coltan minerals occur at pegmatite contacts with the wall-rock and uraninite was identified and sampled.

The coltan samples of Type IV pegmatites (Fig. 11) are slightly richer in Ta than in Nb and the U/Th ratio reaches the highest value of all four types. The samples plot in a steep negative trend. The fingerprint for Type IV (Fig. 11) is a composition of tantalite to columbite and, similar to Type III (Fig. 9) a negative trend, but with a steeper slope, U/Th reaching higher values (0.79 - 11.10) and $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ varying from 0.39 to 0.71.

2.2. Environmental Radiation

2.2.1. Radioactive minerals of the pegmatites

The investigation on the pegmatites of Parelhas revealed the presence of a broad variation of strongly radioactive uranium minerals like uraninite, curite, paraschoepite, metatorbernite, kasolite and others of the uranophane-group, as well as radioactive coltan minerals together with not identified secondary radioactive minerals, so-called “gummite” [19]. “Gummite” is a generic term for minerals occurring as alteration products of uraninite and other minerals with U (e.g. silicates, phosphates, oxides) [2,19]. Normally they occur as mixtures of fine grained radioactive minerals with brilliant colors or powderlike in shades of green, yellow, gray and brown, sometimes cubic shaped pseudomorphic after uraninite (octahedrons).

Uraninite is black and very heavy (D -10.95) [18]. In the pegmatites of the Parelhas region, it occurs as octahedral crystals (cubic) or as collomorphic “pitchblende” in the pegmatites. Crystalline uraninite was observed in the mines of Alto Quintos do Meio, Alto do Trigueiro II and III. In the garimpo Alto do Trigueiro IV only “gummite” pseudomorphs after uraninite were observed. In the garimpos Alto do Trigueiro II and III uraninite and coltan were observed in the middle of a cluster of muscovite, feldspar and quartz, and in Alto Quintos do Meio as inclusion in morion quartz and feldspars.

An important substitute of U is Th, another gamma emitter. Uraninite (UO_2) forms a series with thorianite (ThO_2) [2]. Thorianite is much less common in pegmatites than uraninite. Very high concentrations of these strongly radioactive elements in the coltan samples may be caused by inclusions of uraninite, thorianite and the above described secondary minerals after uraninite. Inclusions of uraninite were described in samples of compositions from columbite(Fe) to columbite(Mn) in the garimpo Alto do Trigueiro I [3], a Type IV pegmatite. Unfortunately, there are not many data on thorium contents of coltan in the literature.

Columbite and Tantalite are dark brown to black-brown. Both have the same crystal symmetry (orthorhombic), but rarely form good crystals. Tantalite is much denser (D 8.2) than columbite (D 6.3). In pegmatites of the Parelhas region they generally occur as fine grained masses together with uraninite and secondary minerals.

The chemical composition of the columbite-group minerals, CGM, is commonly presented in the “columbite quadrilateral” that depicts changes in the Fe/Mn and Nb/Ta ratios. Preponderance of either Fe or Mn is noted by a suffix, for example, manganotantalite is tantalite(Mn) and ferrocolumbite columbite(Fe). With increasing fractionation of pegmatites, CGM are enriched in Ta and Mn. Typically, CGM contain traces of As, Bi, Sn, W, Ti, Hf, Sc,

REE, V, Pb, Zn, Zr, Th and U. In concentrates, as mentioned above, the latter may enforce radiation protection measures [19].

Other generally radioactive Nb- and Ta-minerals, for example the tantalum-rich pyrochlore-group minerals are common alteration phases replacing primary tantalum minerals [14]. In this particular study, were identified only the minerals mentioned in the first paragraph of this section and coltan by X-ray diffractometry. It is possible that the commercialized coltan ore concentrates are not pure columbite-tantalite and may contain small amounts of other minerals. This is also a reason to use the name “coltan” for this paper instead the mineralogical term CGM.

2.2.2. Scintillometric gamma radiation profiles of the pegmatites

Several gamma radiation profiles (CPS) of pegmatites walls, enclosing rocks, soil and *in situ* trapped water were executed in order to identify environmental and labor risks. A few of these profiles are presented below, two were published previously [10].

All vertical measurements confirmed the first survey's result that the walls of the excavations present high radiation levels only punctually. Along the same profile they vary, for example, in the garimpo Alto Quintos do Meio, from a minimum of 10 to a maximum of 14500 CPS, due to the irregular distribution of radioactive minerals (Fig. 12 left).

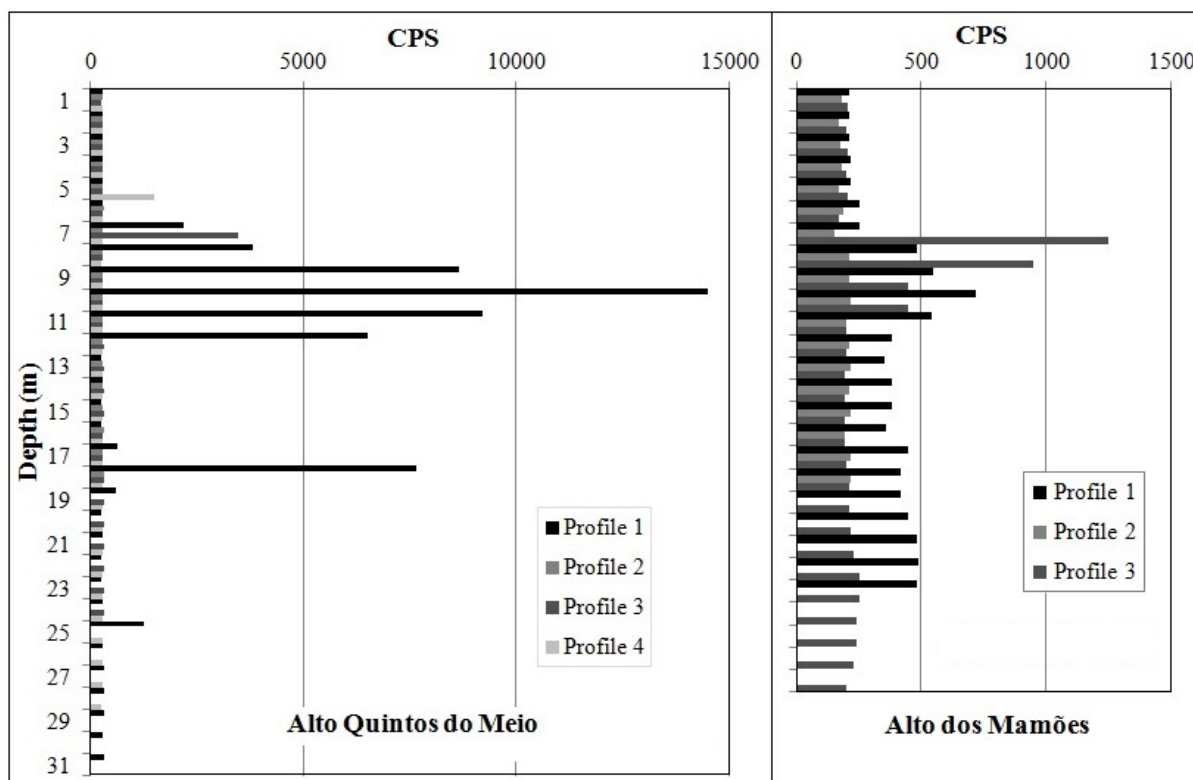


Figure 12: Vertical scintillometric profiles along the walls of the garimpos Alto Quintos do Meio (left, four profiles) and Alto dos Mamões (right, three profiles). Note the different scales of the X-axes: CPS of the left graph is more than 10 times higher than on the right graph! The scale for the Y-axes (m) are the same for both profiles.

For vertical profiles along the excavation walls zero point was randomly chosen on the upper surface of the wall, and measured within intervals of five meters between the profiles.

It is important to remember that measurements of radiation on rocks only refer to the first centimeters of the rock surface, because any massy body is absorbing its own radiation depending on its density. Therefore measurements were taken directly on the walls surface and not, as usually, at a distance of one meter.

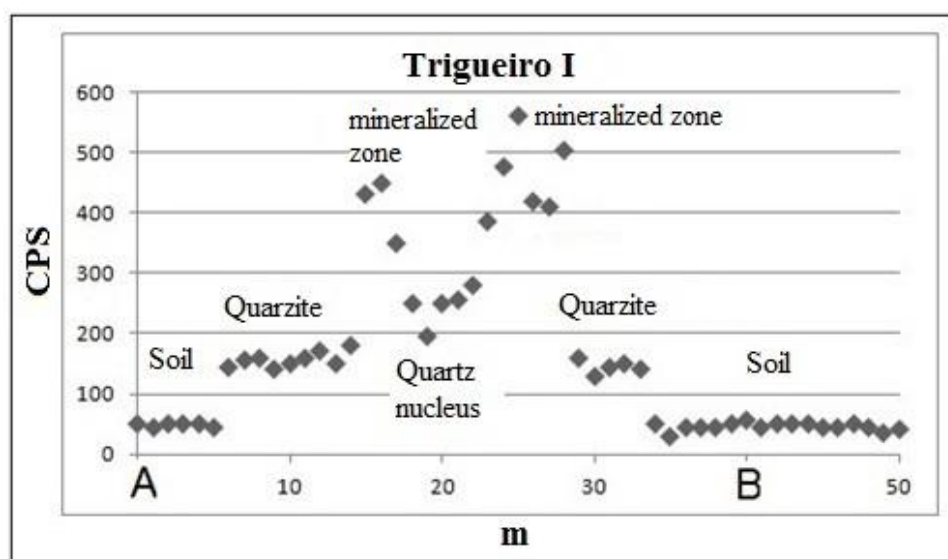


Fig. 13: Horizontal scintillometric profile across the pegmatite Trigueiro I. Profile line A-B see Fig. 10.

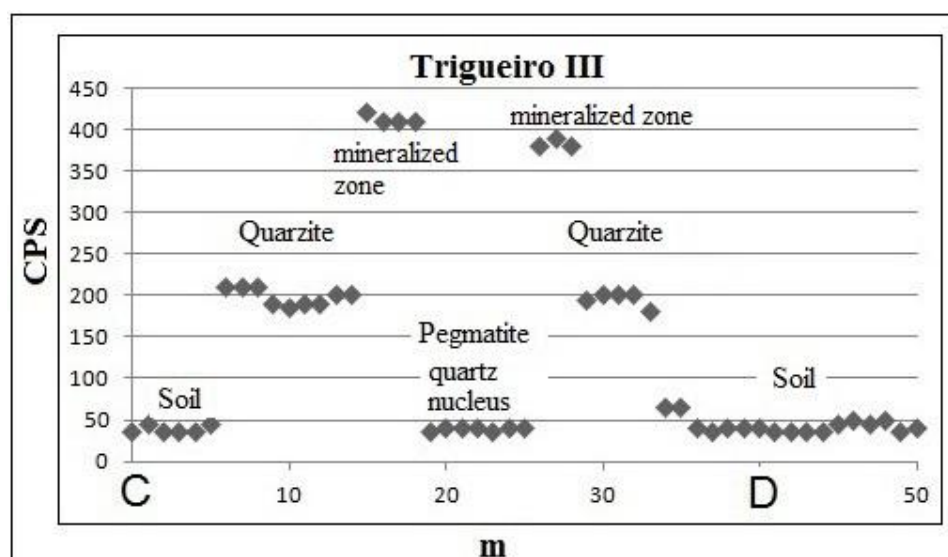


Figure 14: Horizontal scintillometric profile across the pegmatite, Trigueiro III. Profile line C-D see Fig. 10.

The horizontal scintillometric profiles across pegmatites with quartz nuclei (Fig. 13, 14) included soil, enclosing rock, and feldspar zone, which is the mineralized zone. The measurement started after a distance not influenced by radioactivity of the enclosing rocks and in the direction towards the pegmatite's nucleus.

Figures 13 and 14 illustrate that the radiation of the zoned pegmatites is concentrated in the mineralized feldspar zone, with radiation being nearly absent in quartz nuclei. It also reveals that the enclosing rocks contain a very low concentration of radioactive elements. The measurement on the nucleus of the pegmatite Alto do Trigueiro I (Fig. 13) shows a higher counting rate (CPS) than on the soil and enclosing rock. This is a consequence of mass effect of the very close pegmatite walls. On the nucleus of the pegmatite Alto do Trigueiro III (Fig. 14), without this mass effect, the counting rate measured is as low as on the soil like expected.

The scintillometer is able to measure in air and underwater. The radiometric survey included vertical profiles in the water trapped inside the excavations. Underwater profiles were made by first measuring in the air very close to the water surface and then immersing the probe into water with an average distance of two meters from the walls reading at every meter until it touched the bottom. These profiles have a distance of five meters between them (Fig. 14).

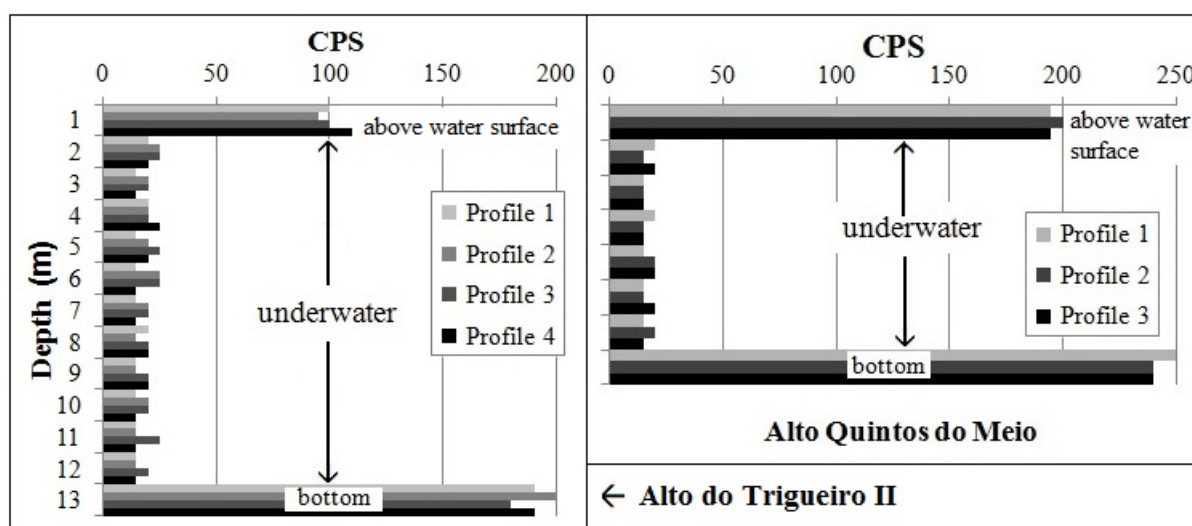


Figure 15: Underwater scintillometric profiles - four in the garimpo Alto do Trigueiro II (left) and three in the garimpo Alto Quintos do Meio II (right, same scale for Y-axis as left graph).

The measurement of gamma radiation in water stored in the excavations (Fig. 15) revealed that there is no gamma emitter solubilized. The reason is probably the low solubilities of U and Th in natural water with a pH ranging from 6.5 - 7.5. Besides this, in this semiarid region these garimpos only sometimes become open reservoirs and the negligible offer of water does not permit water to accumulate for a long time. Thus, U and Th are not solubilized.

The CPS profiles shown in figures 13, 14, and 15 also indicate that soil and water do not accumulate gamma emitters in this region. U and Th are leached very little and do not concentrate enough to enhance environmental radiation.

2.3. Partition of U, Th, Nb, and Ta in Coltan Minerals

2.3.1. Coltan minerals of the Parelhas pegmatites

As already mentioned at the beginning, in the last years other authors [14, 15, 16] found geochemical signatures for coltan ore, but they used a series of analytical methods in combination (REE distributions, study of polished sections, geochronological dating). It had already been shown the possibility to fingerprint coltan ores using only U, Th, Nb, and Ta ratio distributions [10], and now here is presented more evidence for this new efficient method without high cost and time consuming analytical effort.

The four structurally different types of pegmatites in the Parelhas region can be correlated with four different groups of coltan minerals simply by the variation of U/Th vs. $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$, see section 2.1. Each emplacement event imposed its own elemental ratios. Fig. 16 illustrates how chemical control is evident and results in a characteristic distribution for each of the four pegmatite formation events.

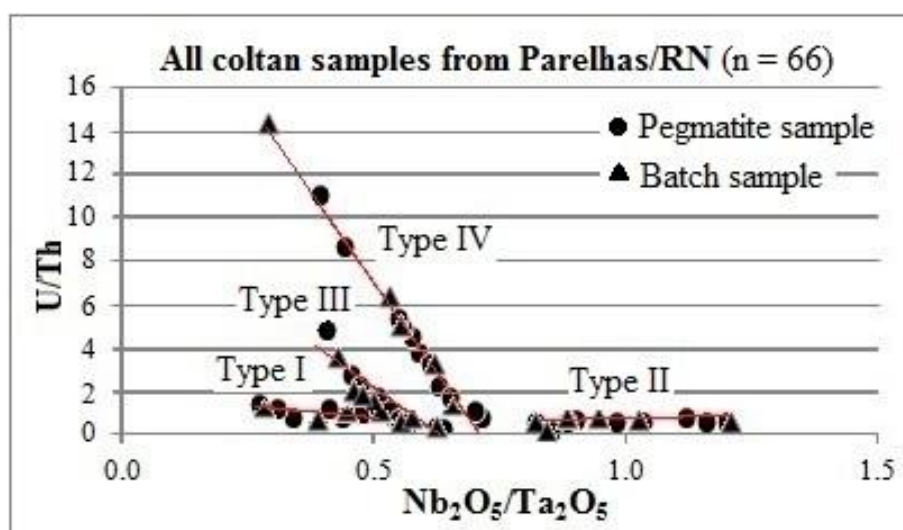


Figure 16: Variation of U/Th in all coltan samples from the Parelhas region: coltan samples from selected pegmatites (●) and coltan ore from commercial batches (▲) with four trend lines. Each trend represents one type of pegmatite, see Figure 1, section 1.1. and Figures 5, 7, 9, and 11, section 2.1.

Even U/Th ratios vs. $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{Ta}_2\text{O}_5$ of randomly sampled commercial batches with origin from Parelhas containing partly weathered coltan ore fit surprisingly well in the same trends like the fresh samples collected at selected pegmatites (Fig. 16). An explanation for this geochemical behavior may be that all four elements, U, Th, Nb, and Ta are not mobile in this environment and the transformation into secondary minerals does not change their elemental relations.

Comparing Fig. 1 with Fig. 16 the formerly supposed trends of the batch samples are remarkably similar with those resulting from modeling the coltan samples from the pegmatites Type I, II, and IV. Only the trend line of Type III is slightly different with less inclination, indicating that more batch samples belong to Type III, formerly included in the

trend, now is known as belonging to Type I. This nicely illustrates how the method works: the origin of those batch samples can now be associated with a particular type of pegmatite.

2.3.2. Coltan ore from Amapá and Rondônia

Coltan batch samples from the Brazilian states of Amapá and Rondônia were exported between 2001 and 2008 and controlled by the CNEN. The analyses of some of these coltan samples were used to test whether the new method serves also to fingerprint other source locations than the Parelhas region in Rio Grande do Norte.

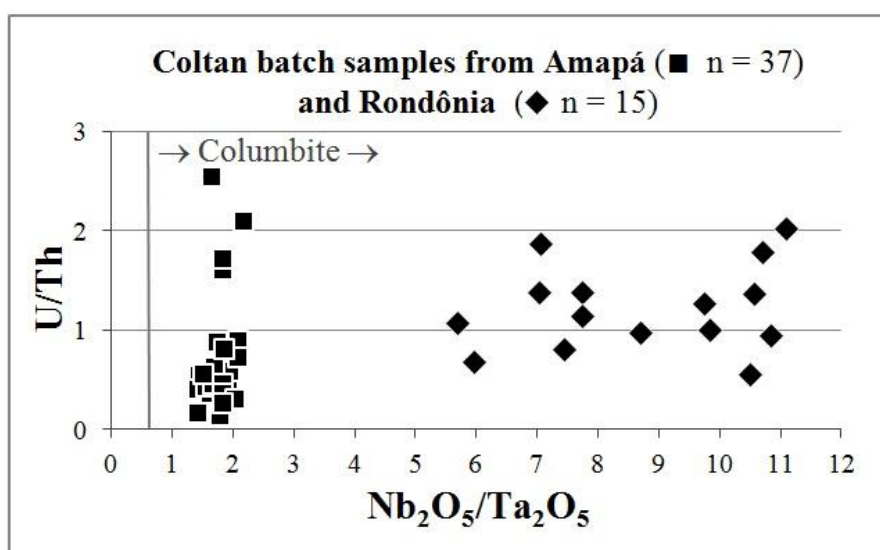


Figure 17: Partition of U/Th in coltan ore of commercial batches with origin from the states of Amapá (■) and Rondônia (◆).

The result is presented in Fig. 17 and reveals that the coltan samples from Amapá differ significantly from those of Rondônia and both also from the Parelhas samples (Fig. 16), the latter with only 1.2 as highest value of Nb₂O₅/Ta₂O₅. All samples from Amapá have higher values than 1.4 of Nb₂O₅/Ta₂O₅, but U/Th does not exceed 2.55, while U/Th of samples from Parelhas reaches 14.5. The samples from Rondônia plot far away from all others with values of Nb₂O₅/Ta₂O₅ ranging from 5.7 to 11.10. They are much richer in Nb₂O₅ than in Ta₂O₅ (columbite) with a variation of U/Th from 0.55 to 2.01.

3. CONCLUSIONS

Ratios of U/Th vs. Nb₂O₅/Ta₂O₅ of coltan samples from selected pegmatites in the region of Parelhas provide geochemical signatures for their origin. These ratios yield four trends corresponding with the four types of pegmatites in this region different in composition, structure and emplacement mechanism. The previously studied commercial batches of coltan ore from the same region (Fig. 1) show exactly the same four geochemical trends (Fig. 16) what is a strong evidence for the same origin. This simple method is able to determine the origin of the coltan ore from the region of Parelhas. For the CNEN it is a useful instrument to

control coltan commerce based on routine analyses.

A test of the new method with commercial batch samples from the Brazilian states of Amapá and Rondônia resulted in two different sample clusters (Fig. 17) both distinct from the field of the samples from Parelhas (Fig. 16). This is an indication that the here presented new method may be also efficient for coltan ores from other provinces.

Future work should refine the method with more samples and investigate whether it can be applied to coltan ores from other pegmatite provinces.

The garimpos of the region are exploited in an archaic, artisan and very insecure way. The detailed measurement of gamma radiation in these mines shows enhanced radioactivity only where radioactive minerals are detected. As the occurrences are punctual and sparse, in general there is no risk of damage for the health of people. The CPS survey indicates that soil and water do not accumulate gamma emitters. Nevertheless, this type of mining in garimpos is of high risk for the mine workers. Other studies are necessary to specify the risk of radioactive exposition for those who stay close to the very radioactive sites for prolonged time or carry and store radioactive minerals without any protection.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors thank the 14th District of the National Department of Mineral Research/RN (DNPM-RN) and the Division of Raw Materials and Minerals (DIMAP-CNEN) for field and logistic support, the Coordination of the Laboratories of Poços de Caldas (COLAB-CNEN) and the Center of Development of Nuclear Technology (CDTN-CNEN), specially for X-Ray Fluorescence and diffractometry analysis, and the Laboratory of X-Ray Fluorescence of the Department of Geology of the Federal University of Rio de Janeiro (UFRJ) for all help and scientific support. The authors are very grateful for the constructive comments of the anonymous scientific reviewer of the INAC 2013.

REFERENCES

1. Agrawal, V. N., "Relations between pegmatite emplacements and tectono-metamorphic events in the Seridó Group, Northeastern Brazil." *Revista Brasileira de Geociências*, **vol. 22 (1)**, pp.43-46 (1992).
2. Anthony, J. W., Bideaux, R. A., Bladh, K. W. and Nichols, M. C. Eds., "Handbook of Mineralogy", Mineralogical Society of America, Chantilly, VA 20151-1110, USA. <http://www.handbookofmineralogy.org/> (last access 10/2013).
3. Baumgartner, R.; Romer, R.L.; Moritz R.; Sallet, R. & Chiaradia, M. "Columbite–Tantalite-Bearing granitic pegmatites from the Seridó belt, Northeastern Brazil: genetic constraints from U–Pb dating and Pb isotopes." *The Canadian Mineralogist*, **Vol. 44**, pp. 69-86 (2006).
4. Benvindo da Luz, A.; Freitas Lins, F.A. Piquet, B.; Costa, M.J. & Coelho, J.M., "Pegmatitos do nordeste: diagnóstico sobre o aproveitamento racional e integrado." *Série Rochas e Minerais Industriais*. CETEM, R.J., pp. 96 (2003).
5. Brito Neves, B.; Van Schmus, W. R.; dos Santos, E.J.; Campos Neto, M. C. & Kozuch, M., "O Evento carirís Velhos na Província Borborema: integração de dados, implicações e perspectivas." *Revista Brasileira de Geociências*, **vol. 25 (4)**, pp.279-296 (1995).

6. CNEN/CPRM “Relatório Final de Sondagem.” *Convênio Projeto Currais Novos* (1974).
7. CNEN-CPRM “Relatório Final – mapas.” *Convênio Projeto Jardim do Seridó*, Min. das Minas e Energia, **vol. I-II** (1975).
8. COLAB - Coordenação do Laboratório de Poços de Caldas. *Manual de Procedimentos Analíticos*. Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN (1983).
9. Costa-de-Moura, J., Silva, L.F., Pereira, V., “Pegmatitos radioativos da Serra da Borborema: mineralogia e geoquímica de radiominerais e de minerais radioativos.” *X Congresso Brasileiro de Geoquímica e II Simpósio de Geoquímica do MERCOSUL*. Porto de Galinhas, Recife, Brazil. CD-ROM abstracts (2005).
10. Costa-de-Moura, J., “Radioactive Pegmatites of the Parelhas Region, Rio Grande do Norte, Northeast Brazil. Preliminary Investigation on Radiominerals and Radioactive Minerals.” *International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2009*. Revista da Associação Brasileira de Energia Nuclear – ABEN, Rio de Janeiro, RJ, Brazil (2009).
11. DNPM/CPRM, “Principais Depósitos Minerais do Brasil.” **Vol. IV**, parte B, capítulo 41, Província Pegmatítica da Borborema – Seridó, Paraíba e Rio Grande do Norte; Brasília, pp. 441-467 (1997).
12. Dos Santos, E. J., Nutman, A. P., Brito Neves, B. B., “Idades SHRIMP U-Pb do Complexo Sertânia: Implicações Sobre a Evolução Tectônica da Zona Transversal, Província Borborema.” *Revista do Instituto de Geociências – Geol. USP Sér. Cient.*, São Paulo, **v. 4**, n. 1, pp.1-12, abril 2004 (2004).
13. Dos Santos, T. J. S.; Fetter A. H.; Neto J. A. N., “Comparisons between the northwestern Borborema Province, NE Brazil, and the southwestern Pan-African Dahomey Belt, SW Central Africa.” *Geological Society, London, Special Publications*; **v. 294**; pp.101-120. doi:10.1144/SP294.6 (2008).
14. Graupner, T.; Melcher, F.; Gäbler, H.E.; Sitnikova; M.; Brätz, H. and Bahr, A., “Rare earth element geochemistry of columbite-group minerals: LA-ICP-MS data”. *Mineralogical Magazine*, August 2010, **vol. 74(4)**, pp.691–713 (2010).
15. Melcher, F., Sitnikova, M.A., Graupner, T., Martin, N., Oberthür, T., Henjes-Kunst, F., Gäbler, E., Gerdes, A., Brätz, H., Davis, D.W. and Dewaele, S., “Fingerprinting of conflict minerals: columbite-tantalite (“coltan”) ores.” *SGA News*, **vol.23**, pp.1-14 (2008).
16. Melcher, F., Graupner, T., Sitnikova, M.A., Henjes-Kunst, F., Oberthür, T., Gäbler, E., Bahr, A., Gerdes, A., Brätz, H. and Rantitsch, G., “Ein Herkunftsnachweis für Niob-Tantalminerale am Beispiel Afrikanischer Selten-Element-Pegmatite”. *Mitteilungen der Österreichischen Mineralogischen Gesellschaft*, **vol. 155**, pp.231-267 (2009).
17. Mineralogy Database,” <http://www.webmineral.com/> (last access 10/2013).
18. Nickel, E.H.& Nichols, M.C. MINERAL Database©, Materials Data Inc. (MDI), 2002-2011 , Data Version 03/2009 MINERAL-LE Distributed by Materials Data, Inc. 1224 Concannon Blvd. Livermore, CA 94550, U.S.A. (2009).
19. Pohl, W.L. “Economic Geology, Principles and Practice: Metals, Minerals, Coal and Hydrocarbons — an Introduction to Formation and Sustainable Exploitation of Mineral Deposits” (book published May 2011), Sample Chapter: Niobium and Tantalum (Update 11 September 2013)”, <http://www.walter-pohl.com/sample.html> (last access 10/2013).
20. Savvin, S. B. “Analytical applications of Arsenazo III-II determination of thorium, uranium, protactinium, neptunium, hafnium and scandium”. *Pergamon Press Ltd, Talanta*, **vol. 11**, pp. 1 to 6. North Ireland (1964).
21. CNEN. “Transporte de Materiais Radioativos”, Resolução CNEN -13/88, D.O.U. de 01/08/88 (1988).