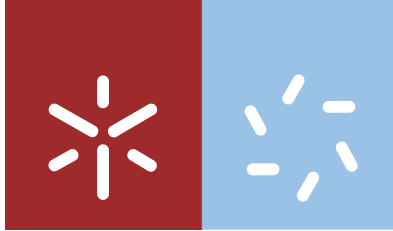


**Universidade do Minho**  
Escola de Ciências

Marco Araújo Lima

**Perigosidade radiológica no ambiente  
construído: avaliação da contribuição da  
radiação gama dos materiais geológicos**



**Universidade do Minho**  
Escola de Ciências

Marco Araújo Lima

**Perigosidade radiológica no ambiente  
construído: avaliação da contribuição da  
radiação gama dos materiais geológicos**

Dissertação de Mestrado  
Mestrado em Ordenamento e Valorização de Recursos Geológicos

Trabalho realizado sob a orientação do  
**Doutor Carlos Alberto Simões Alves**  
e do  
**Doutor Jorge Sanjurjo Sánchez**

outubro de 2014

## DECLARAÇÃO

Nome: Marco Araújo Lima

Endereço electrónico: Lima22546@gmail.com

Número do Bilhete de Identidade: 13356909

Título dissertação: **Perigosidade radiológica no ambiente construído: avaliação da contribuição da radiação gama dos materiais geológicos.**

Orientadores:

Doutor Carlos Alberto Simões Alves

Doutor Jorge Sanjurjo Sánchez

Ano de conclusão:

2014

Designação do Mestrado: Mestrado em Ordenamento e Valorização de Recursos Geológicos.

É AUTORIZADA A REPRODUÇÃO INTEGRAL DESTA DISSERTAÇÃO APENAS PARA EFEITOS DE INVESTIGAÇÃO, MEDIANTE DECLARAÇÃO ESCRITA DO INTERESSADO, QUE A TAL SE COMPROMETE;

Universidade do Minho, \_\_\_/\_\_\_/\_\_\_\_\_

Assinatura: \_\_\_\_\_

## **AGRADECIMENTOS**

A realização desta dissertação só foi possível graças à orientação, apoio e incentivo de várias pessoas e instituições às quais, expresso os meus sinceros agradecimentos.

Ao Doutor Jorge Sanjurjo Sánchez, meu co-orientador, pelos seus valiosos conhecimentos, esclarecimentos, correcções, sugestões, e pela permanente disponibilidade manifestada no acompanhamento deste trabalho, apesar da distância geográfica. À Universidade da Coruña por ter disponibilizado as condições analíticas (de laboratório e campo) sem as quais, esta dissertação nunca poderia ter sido realizada.

Ao Doutor Carlos Alberto Simões Alves, meu orientador, quero manifestar o meu profundo reconhecimento pelo seu contributo fundamental na elaboração desta dissertação, pela sua permanente disponibilidade, ensinamentos, correcções, sugestões, apoio e orientação no rumo a seguir ao longo deste trabalho.

Ao Centro de Investigação Geológica, Ordenamento e Valorização de Recursos da Universidade do Minho. Esta unidade de investigação é apoiada por financiamentos de Fundos Nacionais (Orçamento Geral da República Portuguesa) através do PEst-OE/CTE/UI0697/2011 e do PEst-OE/CTE/UI0697/2014 da Fundação para a Ciência e a Tecnologia.

Ao Centro de Materiais da Universidade do Porto (CEMUP), onde foram realizados os estudos de microscopia eletrónica de varrimento, com equipamentos financiados no âmbito do "Programa Nacional de Re-equipamento Científico" da Fundação para a Ciência e a Tecnologia e integrados na Rede Nacional de Microscopia Eletrónica)."

Ao Senhor Saúl Sendas pela obtenção das lâminas polidas, e constante disponibilidade.

Por fim, mas não menos importantes, a todos os meus familiares e amigos pela sua motivação, e colegas de mestrado pelas informações sempre actuais.



## **Perigosidade radiológica no ambiente construído: avaliação da contribuição da radiação gama dos materiais geológicos.**

### **RESUMO**

O presente trabalho incide na radiação gama resultante de materiais de construção, associada aos radionuclídeos naturais do potássio ( $^{40}\text{K}$ ), das séries do urânio ( $^{238}\text{U}$  e  $^{235}\text{U}$ ) e do tório ( $^{232}\text{Th}$ ). Foram colhidas amostras de rochas, com diferentes estados de alteração, em terrenos do granito de Braga, para análises de radionuclídeos, e realizadas várias medições de campo, de espectros da radiação gama (utilizando um espectrómetro portátil) no ambiente natural (terrenos do granito de Braga) e, sobretudo, no ambiente construído da cidade de Braga (no interior e exterior de edificações do centro histórico e arredores, em terrenos dos granitos de Braga e do Sameiro, e em terrenos de metassedimentos do Silúrico). As análises laboratoriais das amostras mostram valores mais elevados de K e U no termo menos alterado, e valores mais elevados de Th nas amostras mais alteradas. Os resultados permitiram avaliar índices de atividade para materiais de construção, a dose efetiva externa e parâmetros relacionados com a dose interna. As amostras mais alteradas apresentam resultados indicadores de uma maior perigosidade de radiação gama. As medições de campo no maciço rochoso do granito de Braga sugerem um aumento da radiação gama nas zonas mais alteradas, associadas com estruturas tectónicas. No ambiente construído obtiveram-se resultados variáveis sendo que, a situação de maior contraste interior/exterior (potencialmente indicadora de uma maior contribuição dos materiais de construção), foi encontrada em edificações construídas com rochas graníticas, e situadas em terrenos metassedimentares. Os resultados das amostras de granito de Braga indicam que este granito, em geral, não será objeto de preocupação nas formas mais comuns de utilização atual (nomeadamente revestimentos superficiais), mas merecerá um estudo mais detalhado quando utilizado como unidade de alvenaria (situação comum nos edifícios históricos). Esta hipótese é apoiada pelos resultados das medições no campo, as quais indicam que o aumento da dose no interior das edificações em relação à dose no exterior das mesmas é, sobretudo, importante no caso de contraste geológico, entre o ambiente natural (terrenos metassedimentares) e o ambiente construído (utilização de granitos como unidade de alvenaria). Estes resultados poderão ter interesse do ponto de vista da valorização da utilização dos materiais geológicos.



## **Radiological hazard in the built environment: assessment of the contribution to gamma radiation from geological materials.**

### **ABSTRACT**

This work focuses on the gamma radiation resulting building materials, associated with the natural radionuclides of potassium ( $^{40}\text{K}$ ), the uranium series ( $^{238}\text{U}$  and  $^{235}\text{U}$ ) and thorium chain ( $^{232}\text{Th}$ ). Rock samples of the Braga granite, with different weathering degrees, were collected for radionuclides analysis, and several field measurements of spectra gamma radiation were made (with a portable spectrometer) in the natural environment (in terrains of the Braga granite) and, mostly, in the built environment in the town of Braga (inside and outside the buildings of the historic center and outskirts of the town, in terrains of the Braga and Sameiro granites and of Silurian metasediments). The laboratory tests from the samples show higher values of K and U in the less weathered term, and higher values of Th in the most weathered samples. The results allowed us to access activity indices for building materials, the external effective dose and parameters related to internal dose. The more weathered samples showed results indicating a greater gamma radiation hazard. The field measurements in rock masses of the Braga granite suggest an increase of gamma radiation in the weathered zones, associated with tectonic structures. Measurements in the built environment gave variable results and the situation of higher indoor/outdoor contrast (potentially indicating a higher contribution from building materials) was found in structures built with granite rocks and located in metasedimentary terrains. Results from the samples of granite Braga indicate that, this granite is generally not a concern in the most common forms of current use (including surface coatings), but deserves a more detailed study when used in bulk amounts (as happens commonly in historical buildings). This hypothesis is also supported by results from field measurements indicating that the increase in indoor dose in relation to outdoor dose is especially important, in the case of geological contrasts between the natural environment (metasedimentary terrains), and the built environment (structures built with granites in bulk amounts). These results might be of interest for the valorisation of geologic materials.





## ÍNDICE

<b>AGRADECIMENTOS</b>	iii
<b>RESUMO</b>	v
<b>ABSTRAC</b>	vii
<b>ÍNDICE</b>	ix
<b>LISTA DE FIGURAS</b>	xiii
<b>LISTA DE TABELAS</b>	xxi

<b>1. INTRODUÇÃO</b>	<b>1</b>
1.1. Objetivos	2
1.2. Radioatividade básica	2
1.3. Geoquímica dos radionuclídeos	4
1.3.1. Urânio	4
1.3.2. Tório	7
1.3.3. Potássio	7
1.4. Distribuição dos radionuclídeos nas rochas	8
1.4.1. Influência dos processos geológicos na distribuição dos radioelementos	10
1.5. Séries de decaimento radioativo	10
1.5.1. Estados de equilíbrio	11
1.5.2. Estados de desequilíbrio	12
1.5.2.1. Série do urânio	12
1.5.2.2. Série do tório	15
1.6. Radioatividade natural em materiais de construção	17
1.6.1. Dose efetiva	19
1.6.2. Lei de radiação Finlandesa	19
1.6.3. Guias de segurança de radiação para a radiação natural	20
1.6.4. Diretiva Europeia de Normas de Segurança Básica (BSS)	21
1.6.5. Princípios de proteção de radiação	23
1.6.6. Critério de dose efetiva para controlo ou isenção de materiais de construção	24
1.7. Índices de atividade	24
1.7.1. Aplicações	26

1.8. Avaliação da dose gama externa	27
1.8.1. Avaliação direta	28
1.8.2. Avaliação indireta	29
1.9. Legislação Nacional Portuguesa	29
<b>2. ENQUADRAMENTO DA ÁREA DE ESTUDO</b>	<b>30</b>
2.1. Enquadramento geológico	30
2.2. Geologia e geocronologia	30
2.3. Petrografia e mineralogia	33
2.4. Geoquímica	35
2.5. Radiação gama natural	36
<b>3. MATERIAIS E MÉTODOS</b>	<b>40</b>
3.1. Amostras de rochas para estudos laboratoriais	40
3.2. Medições de campo	42
3.3. Técnicas	44
3.3.1. Absorção de água	44
3.3.2. Microscópio Electrónico de Varrimento (MEV)	45
3.3.3. Espectrometria – $\gamma$	45
3.3.4. ICP-MS	46
3.3.5. Índices de concentração de atividade	46
3.3.6. Método de atividade do rádio equivalente ( $Ra_{eq}$ )	48
3.3.7. Dose equivalente anual gonadal (AGED)	49
3.3.8. Índices de perigo externo e interno ( $H_{ex}$ e $H_{in}$ )	50
3.4. Avaliação indireta da taxa de dose gama externa absorvida	51
3.5. Dose efetiva externa	57
3.6. Dose interna	58
<b>4. ESTUDOS LABORATORIAIS DAS AMOSTRAS DE GRANITO</b>	<b>60</b>
4.1. Características petrográficas do granito	60
4.1.1. Microscopia	60
4.2. Comparação entre o granito de Braga VS. o granito em estudo	60

4.2.1. Características petrográficas	60
4.2.2. Elementos traço e elementos de Terras-Raras	62
4.3. Amostras de granito com diferentes graus de alteração	63
4.3.1. Absorção de água	63
4.3.2. Estudos microscópicos	64
4.3.3. Análise por espectrometria – $\gamma$	68
4.3.4. Método de ICP-MS	77
4.3.5. Mobilidade geoquímica	78
4.3.6. Rácios	82
4.4. Índices de atividade para materiais de construção	83
4.4.1. Método do rádio equivalente ( $Ra_{eq}$ )	83
4.4.2. Índices gama ( $I_\gamma$ )	86
4.4.3. Dose equivalente anual gonadal (AGED)	88
4.4.4. Índices de perigo externo e interno ( $H_{ex}$ e $H_{in}$ )	89
4.4.5. Comparação de índices	91
4.5. Estimativa da taxa de dose gama absorvida	94
4.5.1. Estimativa da taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior	95
4.5.2. Estimativa da taxa de dose gama absorvida em excesso no ar interior	98
4.6. Doses efetivas externas	99
4.7. Dose interna	104
<b>5. MEDIÇÕES DE CAMPO</b>	<b>107</b>
5.1. Comparação de dose medida e dose calculada	111
5.2. Medições no local de colheita das amostras de granito (L0)	114
5.3. Medições no ambiente construído (L1 - L7)	117
<b>6. CONCLUSÕES</b>	<b>126</b>
<b>7. BIBLIOGRAFIA</b>	<b>131</b>



## LISTA DE FIGURAS

**Figura 1-1** - Variação nos conteúdos médios de K, U e Th, para rochas ígneas, com o aumento da acidez (conteúdo em Si), (retirado de Dickson & Scott, 1997)

**Figura 1-2** - Série de decaimento do  $^{238}\text{U}$ , de acordo com o "Chart of Nuclides". Os isótopos finais de chumbo estão representados por uma caixa preta, os nuclídeos de longa-vida ( $T_{1/2} > 1$  ano) por uma caixa cinzenta. Os modos preferenciais de decaimento e a cadeia de decaimento resultante estão indicados por uma seta dupla, (retirado de IAEA, 2003).

**Figura 1-3** - Série de decaimento do  $^{232}\text{Th}$ , de acordo com o "Chart of Nuclides". Os isótopos finais de chumbo estão representados por uma caixa preta, os nuclídeos de longa-vida ( $T_{1/2} > 1$  ano) por uma caixa cinzenta. Os modos preferenciais de decaimento e a cadeia de decaimento resultante estão indicados por uma seta dupla, (retirado de IAEA, 2003).

**Figura 2-1** - Distribuição dos granitóides sin a pós orogénicos Hercínicos no NW de Portugal (Dias *et al.*, 2001; a partir de Ferreira *et al.*, 1987, modificado). A- "Sulco Carbonífero Dúrico-Beirão" shear zone; B- Zona de cisalhamento Vigo-Régua; C- Zona de cisalhamento Moncorvo-Bemposta; D- Zona de cisalhamento Traguntia-Penalva do Castelo; I - Falha Gerês-Lovios; II – Falha Régua-Verin; III – Falha da Vilariça; D3 – última fase de deformação dúctil.

**Figura 2-2** – Geologia simplificada do sector NW de Portugal (adaptado da Carta Geológica de Portugal, folha 5-D Braga, na escala 1: 50 000, Ferreira *et al.*, 2000).

**Figura 2-3** - Extrato da Carta de Radiação Gama Natural, na escala 1: 200 000, folha 1 Porto (Torres, coord., 1997).

**Figura 3-1** – Ilustração dos aspetos de campo da meteorização do granito de Braga: a) visão geral; b) pormenor de a). Pode ser vista a tonalidade cinzenta do granito considerado pouco alterado (sem evidências de amarelecimento, em a), o início da meteorização ao longo das diáclases e, na porção superior (nomeadamente em b), a típica disjunção esferoidal com granito apresentando um amarelecimento generalizado.

**Figura 3-2** - (a) Equipamento usado para a realização das medições de radiação gama no campo; (b) detalhe do equipamento em (a).

**Figura 3-3** – (a) Exemplo de espectro de medição de radiação gama; (b) detalhe de (a). CPS – contagens por segundo; keV – quilo electrões volt.

**Figura 3-4** - Projeção dos fatores de referência (em Bq/kg), encontrados em Markkanen (1995) para o cálculo de valores de índice de concentração de atividades em função do uso previsto para os materiais, apresentados na Tabela 3-1.

**Figura 3-5** - Projeção das doses relativas a 1% K, 1 ppm U e 1 ppm Th com base nos fatores indicados em IAEA (2003) para a transformação de teores ponderais em Bq/kg e nos fatores de transformação de Bq/kg, para nGy/h, apresentados nas Tabelas 3-3 e 3-4.

**Figura 3-6** - Coeficientes de transformação de atividade específica em taxa de dose absorvida para o  $^{226}\text{Ra}$  considerando uma pilha de material com uma determinada área exposta. A utilização da escala logarítmica permite a comparação de proporções.

**Figura 4-1** - Gráfico de barras, comparativo das composições modais, em %, entre o granito de Braga (de acordo com os dados de Dias *et al.* (1992) e o granito do local de amostragem.

**Figura 4-2** - Gráfico de correlação entre os teores, em ppm, dos elementos traço e da soma dos elementos de Terras-Raras, da amostra 1 e do granito de Braga.

**Figura 4-3** - Estudos MEV (Microscópio Eletrônico de Varrimento) referentes à amostra 1. (A) - fases primárias presentes na matriz 1, onde são visíveis inclusões de monazite na biotite (B) - cristal de monazite; (C) - Imagem do espectro de Raios-X, referente à monazite, apresentada em B.

**Figura 4-4** - (A) Estudos MEV (Microscópio Eletrônico de Varrimento) de um cristal de Plagioclase, na amostra 2 com produtos de alteração em fissuras; (B) Espectro de Raios-X, referente ao produto de alteração indicado em (A).

**Figura 4-5** - Estudos MEV da amostra 5, (A) matriz com evidência para as fraturas intergranulares; (B) plagioclase e produtos de alteração; (C) espectro da plagioclase; (D) e (E) - espectros dos produtos de alteração.

**Figura 4-6** - Gráfico de dispersão da atividade específica do  $^{238}\text{U}$  e do  $^{232}\text{Th}$ , nas 5 amostras de granito analisadas, em função dos valores de absorção de água ( $A_w$ ).

**Figura 4-7** - Gráfico de dispersão da atividade específica do  $^{40}\text{K}$ , em Bq/kg, nas cinco amostras de granito analisadas, com diferentes graus de alteração.

**Figura 4-8** - Valores de atividade específica do  $^{40}\text{K}$ , associada à variação da %  $\text{K}_2\text{O}$ , considerando os valores médios, mais ou menos dois desvios padrão, usando os fatores de conversão de teor ponderal, em %, para atividade específica do  $^{40}\text{K}$ , em Bq/kg, presentes em IAEA (2003). Para a amostra 1, foram utilizados os valores de atividade específica do  $^{40}\text{K}$ , mais ou menos o erro associado, em Bq/kg, obtidos através da técnica de espectrometria -  $\gamma$ .

**Figura 4-9** - Correlação entre as medições de atividade específica, em Bq/kg, do  $^{238}\text{U}$  (a) e do  $^{232}\text{Th}$  (b), obtidas através dos métodos de espectrometria -  $\gamma$  e ICP-MS.

**Figura 4-10** – Gráfico de correlação entre a estimativa de massa volúmica do esqueleto sólido ( $\rho_s'$ ), em  $\text{g}/\text{cm}^3$  e a absorção de água ( $A_b$ ). Foram utilizados os dados relativos à porosidade às 48 horas ( $N_{48}$ ) e massa volúmica aparente ( $\rho_a$ ), de provetes de granito do porto com diferentes graus de alteração, presentes em Begonha e Sequeira Braga (2002).

**Figura 4-11** - Comparação de teores de Th e U, em ppm, na composição granítica média e nas amostras de granito estudadas. As linhas diagonais correspondem ao rácio Th/U. A primeira fácies, a preto, corresponde à composição granítica média, e a segunda fácies diz respeito à fácies dos granitos em estudo, com diferentes graus de alteração. São observadas diferentes tendências em relação ao rácio Th/U, nas diferentes fácies. Os valores utilizados dizem respeito ao rácio (1), apresentado na Tabela 4-16. Modelo do gráfico retirado de Cuney *et al.* 1990.

**Figura 4-12** - Representação gráfica dos valores de actividade do  $Ra_{eq}$  (mais ou menos erros associados), em Bq/kg, para as cinco amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração.

**Figura 4-13** - Correlação da atividade do rádio equivalente ( $Ra_{eq}$ ) vs. o teor de elementos traço selecionados, obtidos pelo método de ICP-MS e de estimativas de %K calculadas a partir dos resultados de atividade do  $^{40}\text{K}$ .

**Figura 4-14** - Representação gráfica dos valores do  $I_1$  para materiais de construção, nas cinco amostras de granito com diferentes graus de alteração em função dos valores de absorção de água.

**Figura 4-15** - Representação gráfica dos valores do  $I_2$  para ruas e parques infantis, nas cinco amostras de granito com diferentes graus de alteração.

**Figura 4-16** - Representação gráfica dos valores do  $I_3$  para materiais de construção, nas cinco amostras de granito com diferentes graus de alteração em função dos valores de absorção de água.

**Figura 4-17** - Representação gráfica dos valores de  $AGED$ , em  $\mu\text{Sv}/\text{ano}$ , para as cinco amostras de granito estudadas.

**Figura 4-18** - Representação gráfica dos valores de  $H_{ex}$  para as amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração.

**Figura 4-19** - Representação gráfica dos valores de  $H_{in}$  para as amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração.

**Figura 4-20** – Comparações emparelhadas dos resultados dos diferentes índices ( $I_\gamma$ ,  $Ra_{eq}$ ,  $AGED$ ,  $H_{ex}$  e o  $H_{in}$ ) nas amostras de granito estudadas com diferentes graus de alteração.



**Figura 4-21** - Valores médios de taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior, nas cinco amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração. Valores calculados usando os factores de conversão de actividade específica, em Bq/kg, para taxa dose gama absorvida no ar exterior, em pGy/h, indicados por Markkanen (1995). Aos valores de taxa de dose gama absorvida no ar exterior, dos materiais de construção, foram removidas as contribuições de fundo, acima referidas.

**Figura 4-22** – Gráfico ternário das contribuições médias relativas, em %, dos elementos U, Th e K, para a taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior, para as amostras de granito estudadas (1, 2, 3, 4 e 5) e para os valores médios indicados para solos derivados de rochas intrusivas indicados em Amaral (2000).

**Figura 4-23** - Taxa de dose gama absorvida em excesso no ar interior, em nGy/h, nas cinco amostras de granito estudado, com diferentes graus de alteração. Valores calculados usando os fatores de conversão de atividade específica, em Bq/kg, para dose gama absorvida no ar exterior, em pGy/h, indicados por Markkanen (1995). Aos valores de taxa de dose gama absorvida no ar interior, foram removidas as contribuições de fundo natural, acima referidas (e indicadas neste gráfico).

**Figura 4-24** – Valores de taxas de dose efetivas em excesso no ar exterior, devido à contribuição do materiais no exterior, para as cinco amostras do granito estudadas, com diferentes graus de alteração. Valores calculados utilizando os valores médios da taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior, presentes na Figura 4-21, considerando um fator de ocupação no exterior de 0,2, e um fator de conversão de 0,7, de dose gama absorvida (nGy), para dose efectiva (nSv), indicados em UNSCEAR (2010).

**Figura 4-25** - Valores de taxas de dose efetivas em excesso no interior, para as cinco amostras do granito estudadas, com diferentes graus de alteração. Linha horizontal, a preto, mais espessa, diz respeito ao valor máximo de dose efetiva anual, de 1 mSv/a, indicado por Markkanen (1995). Valores calculados utilizando os valores médios da taxa de dose gama absorvida em excesso no ar interior, presentes na Figura 4-23, considerando um fator de ocupação no interior de 0,8, e um fator de conversão de 0,7, de dose gama absorvida (nGy), para dose efectiva (nSv), indicados em UNSCEAR (2010).

**Figura 4-26** - Número de horas necessário para alcançar o valor máximo de dose efetiva em excesso no exterior de 0,1 mSv indicado por Markkanen, (1995), para materiais utilizados em ruas e parques infantis, e em aterros. Valores censurados na parte superior a 5000 horas. Linhas horizontais, a preto, contínua e a tracejado, dizem respeito à média do número de horas, consideradas por Markkanen (1995), de ocupação de ruas e parques infantis (500 horas por ano) e de aterros (150 horas por ano).

Foi considerado um factor de conversão de 0,7, de dose gama absorvida (nGy), para dose efetiva (nSv), indicados em UNSCEAR, (2010).

**Figura 4-27** - Número de horas necessárias para atingir o valor máximo de dose efetiva em excesso no interior, de 1 mSv/a, indicado por Markkanen (1995). Valores censurados na parte superior a 12000 horas. Linha horizontal mais espessa, diz respeito à média do número de horas presente num ano (8766 horas), e linha horizontal, a tracejado diz respeito à média do número de horas num ano (7000 horas), considerando um fator de ocupação de 0,8, indicado por Markkanen (1995). Foi considerado um factor de conversão de 0,7, de dose gama absorvida (nGy), para dose efetiva (nSv), indicados no UNSCEAR, (2010).

**Figura 5-1** – Resultados da dose total medida “in situ” vs. dose total calculada através das estimativas espectrométricas da % K, ppm de eU e ppm de eTh, utilizando os fatores de conversão de conteúdo para atividade específica, em Bq/kg, indicados no IAEA (2003), e os fatores de atividade específica, em Bq/kg, para taxa de dose absorvida, em nGy/h, indicados em UNSCEAR (2010), admitindo uma distribuição uniforme de radionuclídeos nos solos. Medições de dose total “in situ” realizadas em 2014 em L0, com recurso a um espectrómetro de raios gama, GRF-200/BL, (círculos); e na região Amarante, com recurso a espectrómetro de raios gama Exploranium GR130G, equipado com detetor de NaI (quadrados), tendo os dados, sido retirados de Martins *et al.* (2010).

**Figura 5-2** - Resultados da dose total medida, “in situ” realizadas em 2013 em várias estruturas da cidade de Braga (L1 a L7) vs. dose total calculada através das estimativas espectrométricas da % K, ppm de eU e ppm de eTh, utilizando os fatores de conversão de conteúdo para atividade específica, em Bq/kg, indicados em IAEA (2003), e os fatores de atividade específica, em Bq/kg, para taxa de dose absorvida, em nGy/h, indicados em UNSCEAR (2010), admitindo uma distribuição uniforme de radionuclídeos nos solos.

**Figura 5-3** - Representação das estimativas espectrométricas da % K, ppm de eU e ppm de eTh, para cada uma das sete medições (1 a 7) realizados em L0.

**Figura 5-4** – Contribuições relativas dos diferentes radionuclídeos, para a dose total em nGy/h, das medições laboratoriais em amostras colhidas em L0 e das medições de campo neste mesmo local. Contribuições calculadas utilizando os fatores de conversão de conteúdo para atividade específica, em Bq/kg, indicados no IAEA (2003), e os fatores de atividade específica, em Bq/kg, para taxa de dose absorvida, em nGy/h, indicados em UNSCEAR (2010), admitindo uma distribuição uniforme de radionuclídeos nos solos.

**Figura 5-5** - Comparação das medições de taxa de dose gama absorvida, realizadas no exterior e no interior, nos mesmos locais, um metro acima de qualquer superfície. Os dados são apresentados na forma  $\log$  (taxa de dose absorvida), para que o leitor consiga comparar facilmente a relação interior = exterior  $\times 1,2$ , somando  $0,8 = \log(1,2)$ .

**Figura 5-6** - Gráfico ternário das contribuições para a taxa de dose absorvida, através das estimativas de K, U e Th, usando os fatores de conversão presentes em IAEA (2003) e em UNSCEAR (2010), para os solos, nas medições exteriores (+) e interiores (círculos). O “X” grande corresponde à contribuição média dos solos derivados de rochas intrusivas, indicados em Amaral *et al.* (2000).

**Figura 5-7** - Gráfico dos rácios calculados através da estimativa dos conteúdos de nuclídeos obtidos através da espectrometria de raios gama “in situ”, medições exteriores (triângulos), medições interiores (quadrados), “X” grande corresponde aos rácios da composição de solos derivados de rochas intrusivas, apresentados por Amaral *et al.* (2000).

**Figura 5-8** – Valores de taxa de dose gama absorvida no ar interior, em nGy/h, nos diferentes andares do locais L2 e L3, respetivamente.

**Figura 5-9** - Teores de K(%), U (ppm) e Th (ppm) estimados por medição espectrométrica no campo para o Local L2 nos andares 0 (rés-do-chão) a 3.

**Figura 5-10** - Teores de K(%), U (ppm) e Th (ppm) estimados por medição espectrométrica no campo para o Local L3 nos andares 0 (rés-do-chão) a 5.

**Figura 5-11** – Diagrama ternário das contribuições relativas, em nGy/h, dos diferentes radionuclídeos (K, U e Th) para medições em diferentes andares de L2 e L3 (sendo consideradas as medições afastadas de qualquer superfície). Os números indicados correspondem aos números da Tabela 5-3. Para cada um destes locais o número inferior corresponde ao rés-do-chão (L2\_8 e L3\_2) e os números seguintes indicam andares seguintes. Contribuições calculadas a partir das estimativas espectrométricas da % K, e ppm de U e Th, utilizando os fatores de conversão de conteúdo, para atividade específica, em Bq/kg, indicados em IAEA (2003), e os fatores de conversão de atividade específica, em Bq/kg, para dose absorvida, em nGy/h, indicados em UNSCEAR (2010).

**Figura 5-12** - Número de horas necessárias para atingir o valor máximo de dose absorvida proposta por Markkanen, (1995), de 1 mSv/a (valores censurados na parte superior a 12000 horas) para as taxas de dose absorvidas no interior, e removendo os valores do exterior (contribuição em excesso). Linhas horizontais mais espessas correspondem ao número médio de horas presente num ano e ao número resultante de utilizar um fator de ocupação igual a 0,8 (Markkanen 1995). Valores calculados, removendo aos valores relativos ao interior, em terrenos graníticos (L1-L6), a média crustal de dose

absorvida indicada por Markkanen, (1995), dado que os valores exteriores são superiores à média crustal. Para os terrenos metassedimentares, foi considerada uma medição realizada no exterior, um metro acima de qualquer superfície e subtraído o valor de radiação cósmica gama (33 nGy/h), sendo obtido o valor de 49,9 nGy/h, abaixo da média crustal indicada por Markkanen (1995). Foi considerado um fator de conversão de 0,7 entre taxa de dose absorvida (nGy/h) e dose efetiva (nSv/h).



## LISTA DE TABELAS

**Tabela 1-1** – Isótopos naturais de urânio (retirado de IAEA, 2013).

**Tabela 1-2** – Isótopos naturais de tório (retirado de IAEA, 2003).

**Tabela 1-3** - Valores do Índice gama ( $I_\gamma$ ), em mSv/a, sugeridos pela Comissão Europeia (EC, 1999).

**Tabela 2-1** - Características petrográficas dos granitóides de Braga (NW, Portugal). As composições modais, em percentagem (%), foram estimadas a partir da rocha total e da composição química dos minerais, (retirado de Dias *et al.*, 1992).

**Tabela 2-2** - Composições químicas médias dos diferentes granitóides de Braga (NW, Portugal) (Desvios padrão em *itálico*). Dados obtidos por ICP (C.R.P.G). Elementos principais (%) e elementos traço (ppm);  $Fe_2O_3t$ : ferro total;  $\Sigma$  TR: Soma dos elementos de Terras-Raras (TR), (adaptado de Dias *et al.*, 1992).

**Tabela 2-3** - Contribuições para a dose total, de cada elemento, para os três tipos de solos (nGy/h). Retirado de Amaral (2000).

**Tabela 2-4** – Contribuições médias relativas, e respectivos desvios padrão, em %, dos elementos das diferentes séries, para a taxa de dose gama absorvida no ar exterior, para cada tipo de solo, (retirado de Amaral, 2000).

**Tabela 3-1** - Fatores de referência (atividade específica em Bq/kg) utilizados como denominadores no cálculo do índice de concentração de atividade indicado na equação [3-2], (adaptado de Markkanen, 1995).

**Tabela 3-2** – Limites recomendados, em Bq/kg, para o  $Ra_{eq}$  em materiais de construção, (retirado de Sonkawadea, 2008).

**Tabela 3-3** - Fatores de conversão de atividade específica (Bq/kg) para taxa de dose absorvida (nG/h) no ar exterior, admitindo uma distribuição uniforme de radionuclídeos no solo, (retirados de UNSCEAR, 2000 e de Markkanen, 1995).

**Tabela 3-4** - Fatores de conversão de atividade específica (Bq/kg) para taxa de dose absorvida (nGy/h) no ar interior, considerando um quarto modelo.

**Tabela 3-5** - Efeito das características do quarto na dose absorvida de acordo com o estudo de Risica *et al.* (2001) baseado no modelo de quarto padrão de Markkanen (1995) com dimensões (m) iguais a 4 x 5 x 2,8, espessuras de teto, chão e parede iguais a 0,2 m e materiais com densidade igual a 2320 kg/m<sup>3</sup> (referido nesta tabela por QPM) com exceção da avaliação do efeito da presença de abertura (ver

nota de fim de tabela). Algumas das variações indicadas são estimadas a partir dos gráficos apresentadas em Risica *et al.* (2001).

**Tabela 3-6** - Tempo de exposição, fatores de ocupação e limites de dose efetiva por ano, referidos em Markkanen (1995).

**Tabela 3-7** – Coeficientes de transformação de atividade em dose específica, em  $\mu\text{Sv/Bq}$ , (adaptado de Markkanen, 1995).  $^{238}\text{U}^{++}$ :  $^{238}\text{U}$  e os seus descendentes, admitindo equilíbrio secular.  $^{232}\text{Th}^{+}$ :  $^{232}\text{Th}$  e os seus descendentes, admitindo equilíbrio secular.  $^{235}\text{U}^{+}$ :  $^{235}\text{U}$  e os seus descendentes, admitindo equilíbrio secular, referidos em Markkanen (1995).

**Tabela 3-8** - Parâmetros para o armazenamento de quantidades moderadas dentro de casa, referidos em EC 112 (2002).

**Tabela 4-1**- Características petrográficas do granito do local de amostragem (amostra menos alterada) e do granito de Braga. As composições modais, em percentagem (%), do granito de Braga (retiradas de Dias *et al.*, 1992) foram estimadas a partir da rocha total e da composição química dos minerais. As composições modais, em percentagem (%), do granito do local de amostragem, foram retiradas do relatório inédito acima referido.

**Tabela 4-2** - Médias dos teores dos elementos traço e soma dos valores dos elementos de Terras-Raras (TR), em ppm, referentes à amostra 1 (obtidos neste estudo), e ao granito de Braga. Teores dos elementos traço e TR, da amostra 1 e do granito de Braga, obtidos através da técnica de ICP-MS. Os dados do granito de Braga foram retirados de Dias *et al.* (1992). DP – Desvio padrão.

**Tabela 4-3** - Percentagem de absorção de água à pressão atmosférica ( $A_v$ ). Número da amostra corresponde à ordenação no campo, de acordo com a avaliação macroscópica do grau de alteração (número crescente da amostra corresponde ao aumento do grau de alteração).

**Tabela 4-4** - Atividades específicas (e respetivos erros, entre parênteses), em Bq/kg, dos elementos radioativos  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ , e respetivos isótopos-filho, resultantes das suas séries de decaimento radioativo, das 5 amostras de granito com diferentes graus de alteração.

**Tabela 4-5** - Atividades específicas, e respetivos erros, em Bq/kg, dos elementos pertencentes à série de decaimento do  $^{238}\text{U}$ , nas diferentes amostras analisadas.

**Tabela 4-6** - Atividades específicas, e respetivos erros, em Bq/kg, dos elementos pertencentes à série de decaimento do  $^{232}\text{Th}$ , nas diferentes amostras analisadas.

**Tabela 4-7** - Rácios de atividade específica entre os diferentes elementos-filho e o elemento-pai, da série de decaimento do  $^{238}\text{U}$ , nas diferentes amostras analisadas.

**Tabela 4-8** - Rádios de atividade específica entre os diferentes elementos-filho e o elemento-pai, da série de decaimento do  $^{232}\text{Th}$ , nas diferentes amostras analisadas.

**Tabela 4-9** – Atividades específicas (e respectivos erros), em Bq/kg, dos isótopos radioativos  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$ , nas 5 amostras de granito estudadas.

**Tabela 4-10** - Fatores de conversão dos radionúcleos de teor ponderal para atividade específica, em Bq/kg, (retirado de IAEA, 2003).

**Tabela 4-11**- Teores de U e Th, em ppm, calculados através dos fatores de conversão presentes em IAEA (2003) e as atividades específicas obtidas por espectrometria -  $\gamma$ , nas cinco amostras de granito analisadas, com diferentes graus de alteração.

**Tabela 4-12** - Percentagem (%) de K, calculada através dos fatores de conversão de teores ponderais, presentes em IAEA (2003), e a atividade específica do  $^{40}\text{K}$ , em Bq/kg obtida para as cinco amostras de granito analisadas, através do método de espectrometria -  $\gamma$ .

**Tabela 4-13** - Atividades específicas médias, do  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$ , em Bq/kg, nas amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração e de outros trabalhos conduzidos a nível nacional e mundial.

**Tabela 4-14** – Teores, em ppm, das concentrações de U e Th nas amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração.

**Tabela 4-15** – Atividade específica (mais ou menos erros associados), em Bq/kg, dos radioelementos  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ , obtidas por espectrometria -  $\gamma$  e calculadas a partir dos resultados do ICP-MS, utilizando os fatores indicados em IAEA (2003).

**Tabela 4-16** - Rádios Th/U, em ppm, relativos às amostras do granito em estudo. Rácio (1), calculado usando os dados de atividade específica, em Bq/kg, obtidos por espectrometria -  $\gamma$  e os fatores de conversão de atividade específica, em Bq/kg, para conteúdo, em ppm, presentes em IAEA (1998); Rácio (2) calculado usando os valores de conteúdo, em ppm, obtidos através do método de ICP-MS.

**Tabela 4-17** - Valores médios estimados para os  $I_{\gamma}$ ,  $Ra_{eq}$ ,  $AGED$ ,  $H_{ext}$ ,  $H_{int}$ ,  $H_{R\%}$  nas cinco amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração.

**Tabela 4-18** – Contribuições médias relativas em %, dos elementos das diferentes séries, para a taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior, das amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração. Valores calculados usando os fatores de conversão de atividade específica, em Bq/kg, para dose gama absorvida no ar exterior, em pGy/h, indicados por Markkanen (1995).



**Tabela 4-19** – Valores de dose efetiva interna por ingestão e inalação, em mSv/a, calculados usando os fatores de conversão indicados em Markkanen (1995) e os outros parâmetros, indicados em EC 122 (2002).

**Tabela 5-1** - Medições no local L0 (ambiente natural onde foram colhidas as amostras de granito com diferentes graus de alteração, utilizadas nos estudos laboratoriais do capítulo 4). A comparação da alteração é baseada na avaliação de campo. Todas as medições foram realizadas no exterior com a sonda em contacto com a superfície.

**Tabela 5-2** - Pontos de medição no local 1 (arredores do centro da cidade de Braga, terrenos do granito do Sameiro). P: número do ponto. Exp.: exposição corresponde a exterior (Ext.) ou interior (int.). Ds: separação em relação às superfícies em que 0 representa uma medição com o sensor em contacto com uma superfície e 1 representa medições com o sensor afastado das superfícies.

**Tabela 5-3** - Pontos de medição nos locais 2-6 (zona central da cidade de Braga, terrenos do granito de Braga). L: local. P: número do ponto. Exp.: exposição corresponde a exterior (Ext.) ou interior (int.). Ds: separação em relação às superfícies em que 0 representa uma medição com o sensor em contacto com uma superfície e 1 representa medições com o sensor afastado das superfícies.

**Tabela 5-4** - Pontos de medição no local 7 (arredores do centro da cidade de Braga, terrenos metassedimentares do Silúrico). P: número do ponto. Exp.: exposição corresponde a exterior (Ext.) ou interior (int.). Ds: separação em relação às superfícies em que 0 representa uma medição com o sensor em contacto com uma superfície e 1 representa medições com o sensor afastado das superfícies.

## 1. INTRODUÇÃO

A exposição dos seres humanos à radiação ionizante a partir de fontes naturais é uma característica contínua e incontornável da vida na Terra. Existem dois principais contribuintes para as exposições de radiação natural: partículas de raios cósmicos de alta energia incidentes na atmosfera da Terra e nuclídeos radioativos originados na crosta Terrestre, estando presentes em todo o ambiente, incluindo no próprio corpo humano. Ambas as exposições, internas e externas, para os seres humanos, surgem a partir destas fontes (UNSCEAR, 2000).

O tema estruturante da presente dissertação será a radiação gama natural resultante da presença de isótopos radioativos em materiais de construção, nomeadamente em termos de dose externa (as considerações sobre a dose interna serão limitadas à discussão de alguns indicadores estimados a partir da análise química dos materiais). De facto, os materiais de construção contêm várias quantidades de nuclídeos radioativos naturais. Os materiais derivados de rochas e solos contêm principalmente radionuclídeos naturais da série do urânio ( $^{238}\text{U}$ ), e do tório ( $^{232}\text{Th}$ ), e o isótopo radioativo de potássio ( $^{40}\text{K}$ ). Na série do urânio, o segmento da cadeia de decaimento a partir do rádio ( $^{226}\text{Ra}$ ) é radiologicamente o mais importante e, sendo assim, a referência é muitas vezes feita a rádio em vez de urânio. Estas considerações são formuladas em contexto geológico alargado (incluindo aspetos geoquímicos e geofísicos) e deixam de lado os aspetos epidemiológicos, nomeadamente a discussão sobre a avaliação dos reais efeitos das doses consideradas.

No restante deste primeiro capítulo serão apresentados os objetivos da dissertação e os conceitos de base necessários para a discussão dos resultados, incluindo disposições legais eventualmente relevantes.

No capítulo seguinte será apresentado o enquadramento da área de estudo.

O capítulo 3 apresentará uma descrição dos materiais e métodos utilizados, que incluem estudos laboratoriais de materiais de pedra e medições de campo no ambiente natural e no ambiente construído.

As análises laboratoriais de amostras de pedra e a estimativa de vários parâmetros relacionados com a radiação gama ocupam o capítulo seguinte.

Os dados de campo (ambiente natural e ambiente construído) serão analisados no capítulo 5.

Como é habitual o último capítulo da dissertação apresenta as conclusões deste estudo assim como propostas para trabalhos futuros.

## 1.1. Objectivos

Para esta dissertação de mestrado consideram-se essencialmente os seguintes objetivos:

- Compilação de informação sobre as disposições legais em relação aos níveis de radioatividade admissíveis em habitações;
- Revisão de modelos relativos às relações entre radiação gama, características dos materiais e características das construções;
- Discussão de estudos laboratoriais sobre amostras de granito e de medições de campo em função dos modelos revistos no ponto anterior e tendo em vista a avaliação da perigosidade associada com a radiação gama

## 1.2. Radioatividade básica

Toda a matéria existente no universo é constituída por átomos. Átomos são partículas de massa, com menor dimensão, e com propriedades químicas distintas. Um átomo consiste num núcleo rodeado por electrões. O núcleo é composto por protões (com carga positiva) e neutrões (sem carga). O diferente arranjo entre protões, neutrões e eletrões atribui aos átomos, propriedades físico-químicas bem definidas, que permitem identificar cada um deles como um elemento químico. O número de protões presentes no elemento X é o número atómico (Z). A soma do número de protões e de neutrões é o número de massa (A) de um átomo. Átomos de um elemento com o mesmo número atómico, mas diferentes números de massa são denominados isótopos. Os isótopos são representados pelo seu símbolo químico e o seu número de massa da seguinte forma –  ${}^AX$ . Os isótopos têm propriedades químicas idênticas, mas diferentes propriedades físicas. Átomos com números de protões e neutrões idênticos são chamados de nuclídeos (IAEA, 2003).

A instabilidade dos núcleos atómicos de alguns isótopos está associada a um excesso de energia acumulada, que tende a ser libertada sob a forma de radiações. Neste processo – denominado decaimento ou desintegração -, o átomo liberta o excedente de energia de modo a formar núcleos mais estáveis de um isótopo diferente. A radiação emitida pode ser energia puramente eletromagnética – denominada radiação nuclear -, ou conter ainda partículas saídas do núcleo do átomo. Nuclídeos com estas características são chamados radionuclídeos.

A lei do decaimento radioativo expressa a diminuição do número de átomos de um radionuclídeo com o tempo (IAEA, 2003):

$$N_t = N_0 e^{-\lambda t} \quad [\text{eq. 1-1}]$$

$N_t$  = número de átomos presentes após o tempo  $t$  (s);

$N_0$  = número de átomos presentes no tempo  $t(0)$ ;

$\lambda$  = constante de decaimento de um radionuclídeo ( $s^{-1}$ );

A constante relacionada, a meia-vida  $T_{1/2}$  (s), é o tempo necessário para metade dos radionuclídeos decaírem:

$$T_{1/2} = \frac{0.693}{\lambda} \quad [\text{eq. 1-2}]$$

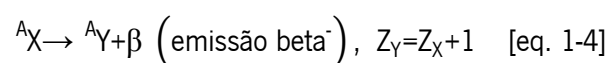
O produto de  $\lambda N$  representa a atividade (Bq) de um radionuclídeo. O decaimento radioativo é independente de outras condições físicas.

De acordo com o IAEA (2003), existem vários tipos de decaimento radioativo:

- O decaimento do tipo Alfa é caracterizado pela emissão de uma partícula alfa, que consiste em dois prótons e dois neutrões



- O decaimento do tipo Beta negativo (Beta<sup>-</sup>) é realizado pela emissão de uma partícula beta idêntica a um eletrão, carregado negativamente. O decaimento Beta positivo (Beta<sup>+</sup>) é menos frequente, e é acompanhado pela emissão de um positrão carregado positivamente.



- A captura eletrônica ocorre através da absorção de um elétron orbital de um átomo, pelo núcleo atômico. A substituição da posição deixada de vaga pelo elétron é seguida pela emissão de uma radiação característica (radiação de baixa energia).



- A fissão espontânea ocorre através da divisão de átomos pesados, em dois fragmentos e a posterior libertação de neutrões e energia. O decaimento de um radionuclídeo, geralmente deixa o núcleo recém-formado, num estado excitado de energia, e a energia excedente é irradiada sob a forma de raios gama.

Alguns radionuclídeos apresentam mais do que um modo de decaimento. Por exemplo, 66 % da desintegração do  ${}^{212}\text{Bi}$  corresponde à emissão de partículas beta para  ${}^{212}\text{Po}$ , e 34 % corresponde à emissão de partículas alfa para  ${}^{208}\text{Tl}$ . No entanto, independentemente do tipo de radiação, o tempo de meia-vida observado é sempre o mesmo (IAEA, 2003).

### **1.3. Geoquímica dos radionuclídeos**

Nesta secção são apresentados alguns conceitos relativos aos elementos cujos isótopos serão analisados, nomeadamente em termos de distribuição e comportamento geoquímico, apresentando também as séries de decaimento radioativo envolvidas.

#### **1.3.1. Urânio**

O urânio, de símbolo químico U, é um metal branco-prateado de densidade muito elevada (18,95 kg/dm<sup>3</sup>). É um elemento do grupo dos actínídeos, de número atômico 92 e massa atômica 238,0289. Os actínídeos caracterizam-se por serem radioativos, e só os quatro primeiros membros ocorrem naturalmente (Actínio, Tório, Protactínio e Urânio). De entre estes elementos, o U e o Th são os mais abundantes, resultado do longo período de meia-vida dos seus isótopos mais estáveis (Prazeres, 2011).

A crosta continental representa uma massa e um volume muito pequenos em comparação com a restante constituição do planeta (< 1%), mas concentra o essencial do U existente na Terra, ou seja, 46 a 77 %. Um estudo de Cuney e colaboradores de 1992, citado por Prazeres (2011) afirma que, a fusão parcial será o principal mecanismo de transferência de U para a crosta terrestre, e que conduziu à individualização do manto e da crosta. O urânio é um constituinte menor da crosta terrestre (aproximadamente 3 ppm).

O urânio como vários elementos de grande raio iônico, dificilmente encaixa na estrutura dos silicatos mais comuns das rochas (elementos incompatíveis), e desta forma tende a ser fortemente enriquecido nos líquidos magmáticos. De facto, a abundância em U no manto empobrecido abaixo da crosta oceânica é cerca de 0,05 ppm, o que, quando comparado com os teores na crosta, mostra que o U perdido pelo manto infra-oceânico empobrecido é maioritariamente transferido para a crosta oceânica e desta para a continental nas zonas de subducção (Plant *et al.*, 1999). Um estudo de Cuney e colaboradores de 1992, citado por Prazeres (2011) afirma que, o U aumenta a sua solubilidade nos magmas em condições oxidantes e com o aumento da temperatura, bem como o excesso de álcalis e cálcio em relação ao alumínio. Assim, os magmas peralcalinos, de alta temperatura, apresentam as solubilidades de urânio mais elevadas, enquanto a solubilidade é mais baixa nos magmas paraluminosos resultantes da fusão crustal, logo, a mais baixa temperatura. Contudo, para gerar granitos peraluminosos ricos em urânio é necessário que a fonte do melt seja enriquecida em urânio, ou este tenderá a ficar nos minerais acessórios, e não no melt. Podem então dar-se enriquecimentos importantes nas fases finais da cristalização fraccionada, em pegmatitos ou por fusão parcial de rochas sedimentares ou ígneas ácidas da crosta, já por si comparativamente ricas em U, originando, por exemplo, os leucogranitos peraluminosos ricos em mineralizações de U da cadeia varisca médio-europeia. Kyser e Cuney (2008), apontam para concentrações médias de 0,3 ppm em rochas basálticas, de 3,8 ppm nos granitos, de 3,7 ppm em xistos, de 2,2 ppm em carbonatos e podendo ir até 300 ppm em rochas fosfatadas.

Os dois estados de oxidação mais comuns para o urânio são o  $U^{6+}$  ou o  $U^{4+}$  (apesar da existência das valências  $U^{3+}$  e  $U^{5+}$ ), quer em solução aquosa, quer na estrutura dos minerais de U mais comuns. O  $U^{6+}$  é altamente reativo e solúvel em soluções aquosas, enquanto o  $U^{4+}$  é relativamente insolúvel. O  $U^{4+}$  ocorre tipicamente em meio redutor e o  $U^{6+}$  em meio oxidante.

Em solução, e em ambiente de baixa temperatura, o  $U^{4+}$  é altamente imóvel, precipitando e encontrando-se geralmente em minerais insolúveis sob condições redutoras. Os minerais formados por

$U^{4+}$  são geralmente de cor negra, sendo a uraninite ( $UO_{2+x}$ ) – um óxido de urânio pertencente ao sistema cúbico - o principal mineral deste grupo. A pechblenda corresponde à variedade colomórfica da uraninite e é o principal mineral de U explorado. Ainda nesta configuração, os óxidos de U podem sofrer alguma hidratação e passar à forma  $UO_{3n}H_2O$ , adquirindo tonalidades desde o negro ao amarelo e sendo assim apelidados de gumites. Outros exemplos de minerais de U tetravalente são a uraninite ( $UO_2$ ), a coffinite ( $U(SiO_4)$ ), a ningyoite ( $U_{1-x}Ca_{1-x}TR_{2x}(PO_4)$ ), branerite ( $UTiO_6$ ), e outros, com diferentes incorporações de diversos elementos (Prazeres, 2011).

Reciprocamente, a oxidação para o  $U^{6+}$ , resulta na formação do ião uranilo ( $UO_2^{2+}$ ), altamente móvel, a partir do qual se formam a grande maioria das 150 espécies minerais conhecidas com U na estrutura (Dill *et al.*, 2010). Adicionalmente e de acordo com Prazeres (2011), Langmuir, afirma num trabalho de 1978, que o ião uranilo forma complexos com aniões como  $CO_3^{2-}$ ,  $SO_4^{2-}$  e o  $PO_4^{3-}$  para formar várias espécies solúveis e mover-se em solução. Entre os oxianiões que formam complexos com o uranilo ( $UO_2^{2+}$ ), estão os silicatos, fosfatos, vanadatos, carbonatos, arsenatos e molibdenatos. Assim, dependendo do pH e da composição da solução, pode formar-se uma vasta variedade de complexos de uranilo que podem ser particularmente importantes na determinação da especiação e concentração em solução.

Neste estado, e em rochas cristalinas, o urânio é incorporado em minerais acessórios como o xenótimo (6630 ppm), o zircão (1367 ppm), a monazite (820 ppm), a esfena e a allanite, não estando prontamente acessível para solução e disponível para processos de mineralização secundária. Dos principais portadores de U, apenas o zircão e a monazite são estáveis durante a alteração das rochas. O urânio nos principais minerais constituintes da rocha encontra-se mais susceptível à lixiviação.

O urânio pode ainda estar presente, em quantidades vestigiais em outros minerais constituintes das rochas, ao longo dos contornos dos grãos, ou em microfracturas, possivelmente sob a forma de óxidos e/ou silicatos de U (Dickson & Scott, 1997).

O urânio é libertado pela desagregação dos minerais durante a sua alteração, podendo ficar retido em óxidos de ferro autogénicos, em minerais de argila ou precipitando, em condições redutoras, formando depósitos uraníferos, perante condições favoráveis (Dickson & Scott, 1997).

A complexação do  $U^{4+}$  com a matéria orgânica é um processo comum, que conduz à formação de complexos orgânicos estáveis, aumentando assim a sua solubilidade (Prazeres, 2011) A mobilidade do  $U^{6+}$  é modificada pela adsorção a hidróxidos de ferro, minerais de argila, colóides e pela redução a

minerais insolúveis portadores de  $U^{4+}$ , quando a água encontra ambientes redutores, como zonas de material carbonáceo ou pirite (Dickson & Scott, 1997).

### **1.3.2. Tório**

IAEA (2003) referem um trabalho de 1980 de Langmuir & Herman, onde estes autores afirmaram que, sendo um componente menor da crosta Terrestre (12 ppm), o tório é um elemento aproximadamente três a quatro vezes mais abundante do que o urânio nas rochas crustais, isto porque é menos susceptível à mobilização em ambientes supergênicos. A solubilidade dos complexos de Th é geralmente baixa, excepto em soluções ácidas. Também em IAEA (2003), citam uma publicação de 1988 de Chopin referindo que, no entanto, compostos orgânicos (como por exemplo, ácidos húmicos) podem aumentar a solubilidade do Th em condições de pH neutras

Ocorrendo predominantemente no estado de valência  $Th^{4+}$ , pode estar presente nos principais minerais constituintes das rochas como a monazite, torianite ( $ThO_2$ ) e na torite ( $ThSiO_4$ ), entre outros (Gascoyne, 1992); ou como um elemento traço em fosfatos, em óxidos e em silicatos, como na allanite, no xenótimo e no zircão em níveis superiores a 1000 ppm, ou em quantidades vestigiais noutros minerais constituintes das rochas.

Os principais minerais portadores de tório, estáveis durante a alteração das rochas, são a monazite e o zircão, podendo ser acumulado em depósitos de areias pesadas. O tório é libertado pela desagregação dos minerais durante o processo de alteração dos mesmos, podendo ficar retido em óxidos-hidróxidos de Fe ou Ti e em argilas. Tal como o urânio, o tório também pode ser transportado adsorvido em argilas colóidais e em óxidos de ferro.

### **1.3.3. Potássio**

O potássio é um componente maior da crosta Terrestre (2,35 %). É um elemento alcalino e apresenta uma química simples. Os principais minerais portadores de K nas rochas são os feldspatos K (principalmente a ortoclase e a microclina, com 13 % de K) e as micas (biotite e moscovite, com tipicamente 8% de K). O potássio está ausente nos minerais máficos. Consequentemente o K é relativamente alto em rochas félsicas (como os granitos,), baixo em basaltos máficos e muito baixo em dunitos e peridotitos (Dickson & Scott, 1997). A alteração dos minerais portadores de K determina o

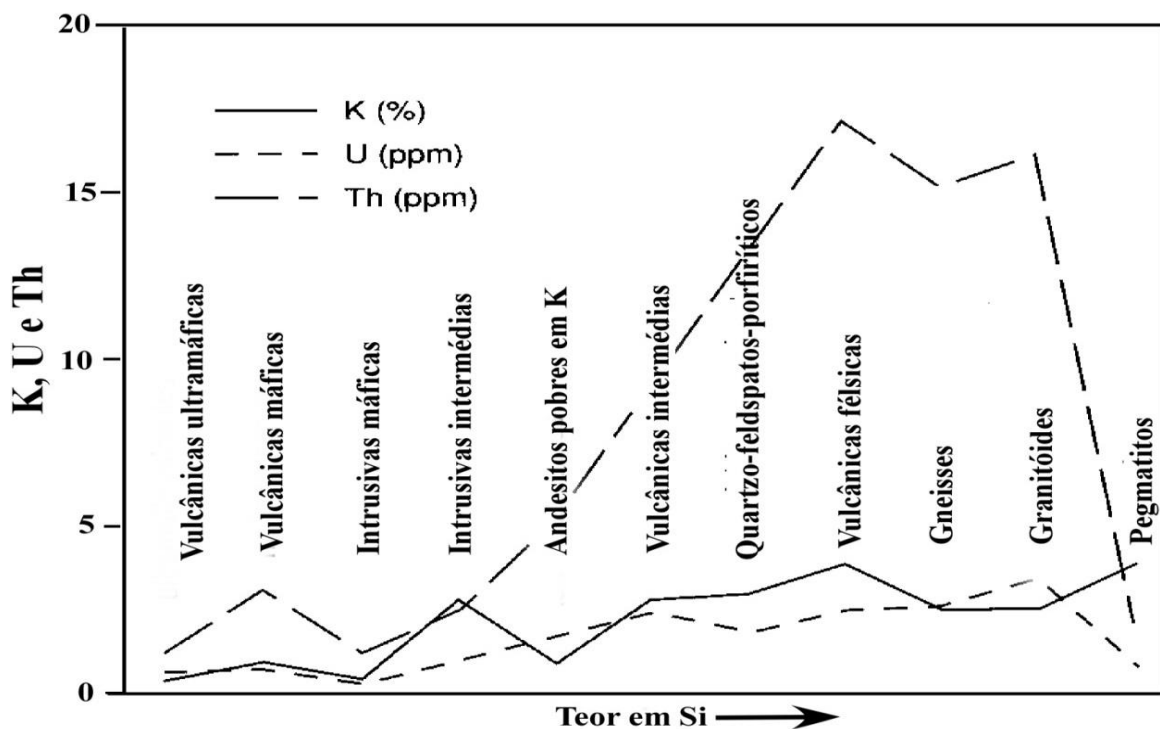


conteúdo dos radioelementos nas rochas e nos solos alterados. Durante o processo de alteração os principais minerais portadores de K são destruídos na seguinte ordem biotite, feldspato K e moscovite. O potássio libertado durante este processo pode ser incorporado na formação de novos minerais portadores de K como a illite, ou adsorvido em menores quantidades em argilas como, por exemplo, a montmorillonite, sob condições específicas. A captação eficiente de K pelas argilas está refletida nas baixas concentrações de K na água do mar (380 ppm).

#### 1.4. Distribuição dos radionuclídeos nas rochas

Os radioelementos naturais urânio e tório são elementos litófilos, amplamente distribuídos nas rochas da crosta, concentrando-se preferencialmente em rochas ácidas ígneas, quando comparadas com variedades intermédias, básicas e ultrabásicas.

O conteúdo médio de radioelementos em rochas ígneas mostra (Figura 1-1), uma tendência para o aumento dos teores em radioelementos, com o aumento dos teores em sílica, isto é, rochas félsicas possuem teores mais elevados em radioelementos do que rochas ultrabásicas e máficas. O Th mostra um aumento muito maior do que o U (Figura 1-1-), e o rácio Th/U pode ser usado para investigar o grau de diferenciação entre as rochas ígneas. (Dickson & Scott, 1997).



**Figura 1-1** - Variação nos conteúdos médios de K, U e Th, para rochas ígneas, com o aumento da acidez (conteúdo em Si), (retirado de Dickson & Scott, 1997)

Em geral, os granitos são mundialmente reconhecidos por apresentarem valores elevados de U e Th, devido às características do magma genético e movimentos tectônicos associados ao seu ambiente de geração. Rochas geradas na crosta são geralmente mais enriquecidas em radioelementos, relativamente àquelas formadas no manto, como consequência de processos como a fusão parcial do magma e a cristalização fracionada, os quais concentram os radioelementos na fase líquida, enriquecida em sílica (Moura *et al.*, 2011).

A quantidade de urânio que pode ser mobilizado de um granitóide é determinada pelos seus minerais portadores. Em muitos granitos, estes são minerais acessórios (zircão, esfena, e xenótimo), que podem conter até cerca de 85 % do urânio total. Apenas uma pequena parte do urânio presente no granito está nos principais minerais constituintes do granito, embora uma quantidade significativa possa estar distribuída ao longo dos limites dos grãos e em microfracturas. A mobilização do urânio do granito ou dentro do granito aparenta ocorrer no início do ciclo de alteração. O seu comportamento pode ser muito variável quando comparado com o K e o Th, os quais se comportam mais uniformemente (Dickson & Scott, 1997).

A perda de K pelo granito é geralmente controlada pela alteração do feldspato K. Sendo assim o conteúdo em K pode aumentar durante estágios iniciais de alteração como resultado da remoção dos minerais mais facilmente alterados (plagioclase, e minerais máficos). Os fenocristais de feldspato K são relativamente resistentes à alteração, podendo estar presentes em solos residuais, resultando no enriquecimento em K (Dickson & Scott, 1997).

As rochas formadas nos últimos estádios de implementação ígnea, como pegmatitos e aplitos, quando as temperaturas estão a descer, retêm altos valores de K, mas apresentam baixos conteúdos de U e Th (Dickson & Scott, 1997).

As rochas alcalinas (K ou Na  $\gg$  Ca) são mais enriquecidas em Th do que em U, e os depósitos de Th são mais prováveis de se localizarem neste grupo de rochas magmáticas (Dickson & Scott, 1997).

Rochas ultrabásicas como os dunitos, possuem teores muito baixos de urânio (0,02 ppm), os quais aumentam progressivamente com a cristalização fracionada para uma média de 4 ppm, nos casos dos granitos (Dickson & Scott, 1997).

Dados disponíveis para as rochas metamórficas (por exemplo, rochas gnáissicas derivadas do granito, e anfibolitos derivados de doleritos), mostram que o metamorfismo não afeta o conteúdo em radioelementos (Dickson & Scott, 1997). O conteúdo em U e Th diminui com o grau de metamorfismo

de fácies epidoto-anfibolíticas, para a fácies granulítica. O rácio Th/U muda em favor do urânio com o aumento da temperatura e pressão (Heier, 1975).

As rochas sedimentares apresentam geralmente um conteúdo em radioelementos que reflecte a rocha-mãe geradora. Sendo assim, sedimentos imaturos, derivados de fontes graníticas, podem apresentar um conteúdo elevado em radioelementos, porém sedimentos mais antigos, compostos essencialmente por quartzo, devem apresentar valores muito baixos de radioelementos (Dickson & Scott, 1997).

No entanto, dentro de qualquer tipo de rocha, existe um amplo intervalo de valores. Devido ao vasto leque dentro de cada classe de rocha, não é possível uma classificação do tipo de rocha, através do seu conteúdo em radioelementos (Dickson & Scott, 1997).

#### **1.4.1. Influência dos processos geológicos na distribuição dos radioelementos**

Processos geológicos associados a zonas de cisalhamento podem provocar o enriquecimento ou empobrecimento em radioelementos nas rochas, dependendo se o cisalhamento for frágil ou dúctil. O histórico de cristalização, e os processos de alteração hidrotermal também podem afetar a distribuição dos radionuclídeos em rochas ígneas (Sroor *et al.*, 2002). A formação de microbrechas em rochas sujeitas a processos de deformação dúctil-frágil poderá criar caminhos através dos quais, os fluidos enriquecidos em radionuclídeos se movem e subsequentemente se depositam nas rochas hospedeiras (Moura *et al.*, 2011).

#### **1.5. Séries de decaimento radioativo**

Enquanto muitos elementos que ocorrem naturalmente possuem isótopos radioativos, apenas o potássio (K), e as séries de decaimento do urânio (U) e do tório (Th), possuem radioisótopos capazes de produzir raios gama com energia e intensidade suficientes, de forma a serem medidos pela espectrometria de raios gama (IAEA, 2003).

O decaimento radioativo ocorre muitas vezes, sob a forma de uma série (ou cadeia), com certo número de produtos-filho, também radioativos, e termina num isótopo estável. Resumidamente, uma cadeia de decaimento radioativo consiste num nuclide-pai, o qual possui um tempo de meia-vida ( $t_{1/2}$ )

superior à idade do universo, uma série de decaimentos  $\alpha$  e  $\beta$ , e finalmente um isótopo estável de Pb (IAEA, 2003).

Como a massa dos sucessivos isótopos-filho é alterada apenas por quatro unidades e o decaimento do tipo  $\beta$  raramente provoca alterações na massa, podemos referir-nos à série de decaimento do Tório como a série  $4n$  ( $^{232}\text{Th}$  ao  $^{208}\text{Pb}$ ); à série do Urânio como a série  $4n+2$  ( $^{238}\text{U}$  ao  $^{206}\text{Pb}$ ); à série do Actínio como a série  $4n+3$  ( $^{235}\text{U}$  ao  $^{207}\text{Pb}$ ). Vários nuclídeos apresentam um decaimento em ramos (quer  $\alpha$  ou  $\beta$ ), (IAEA, 2003).

### 1.5.1. Estados de equilíbrio

Numa rocha geoquimicamente imperturbada, os minerais portadores de urânio e tório contêm os nuclídeos pais e filhos num estado de equilíbrio. Dependendo da relação entre meias-vidas, todos os membros da série de decaimento estão directa ou indirectamente em equilíbrio secular com o nuclídeo-pai,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ , ou o  $^{232}\text{Th}$ .

De facto, num sistema fechado, e começando com uma quantidade específica de um elemento-pai, o número de átomos de um elemento-filho e a sua atividade, aumenta gradualmente, até que o equilíbrio radioativo da série de desintegração seja alcançado.

Neste ponto, as atividades de todos os radionuclídeos da série são idênticas. Sendo assim, a medição da concentração de um elemento-filho pode ser usada para estimar a concentração de qualquer outro elemento, na série de decaimento. Em condições de equilíbrio, esta relação pode ser expressa da seguinte forma:

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \lambda_3 N_3 = \dots = \lambda_i N_i \quad [\text{eq. 1-6}]$$

Se uma série de decaimento com um isótopo-pai de longa-vida não for perturbada durante um período de tempo 8 vezes superior ao período de meia-vida do isótopo-filho com maior tempo de meia-vida, considera-se que cada membro da série de decaimento, estará a decair à mesma taxa. Nesta altura, considera-se que a série está em equilíbrio radioativo.

## 1.5.2. Estados de desequilíbrio

Numa série de decaimento, o desequilíbrio ocorre quando, um ou mais produtos de decaimento são completa ou parcialmente removidos ou adicionados ao sistema. O Tório, na natureza, raramente ocorre fora de equilíbrio, e não há problemas de desequilíbrio com o potássio. No entanto, na série de decaimento do urânio, o desequilíbrio é comum, podendo ocorrer em várias posições na série de decaimento do  $^{238}\text{U}$ .

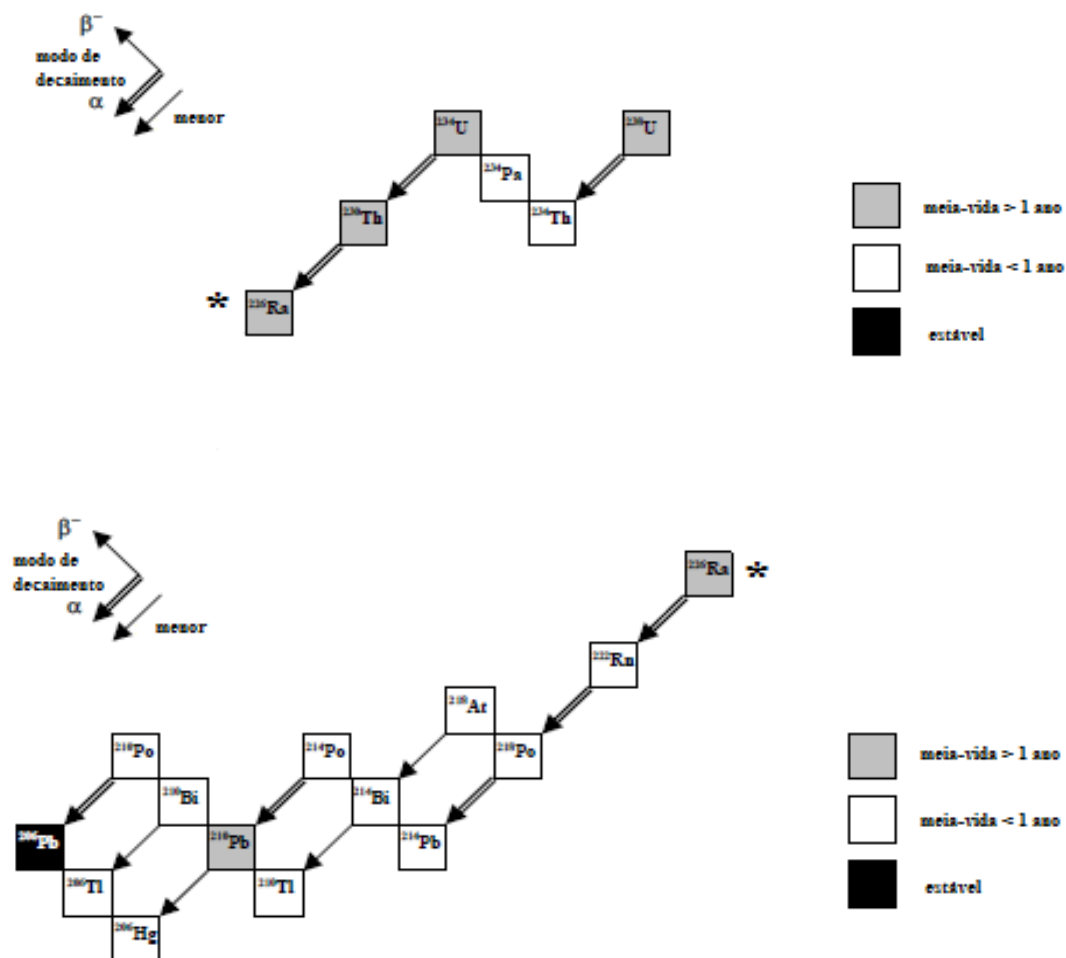
### 1.5.2.1. Série do urânio

O U existe na natureza sob a forma de três isótopos, em quantidades relativas diferentes:  $^{238}\text{U}$  (99,28 %),  $^{235}\text{U}$  (0,71 %) e  $^{234}\text{U}$  (0,0055 %), (Tabela 1-1). Os isótopos  $^{238}\text{U}$  e  $^{235}\text{U}$  são os pais de duas cadeias de decaimento, em que os produtos finais estáveis produzidos são o  $^{206}\text{Pb}$  e  $^{207}\text{Pb}$ , respetivamente. Já o  $^{234}\text{U}$  integra a cadeia de decaimento do  $^{238}\text{U}$  (Prazeres, 2011).

**Tabela 1-1** – Isótopos naturais de urânio (retirado de IAEA, 2013).

	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{238}\text{U}$
Fracção de abundância natural	0,0057 %	0,7200 %	99,2743 %
Meia-vida ( $T_{1/2}$ )	$2,47 \times 10^5$ anos	$7,038 \times 10^8$ anos	$4,468 \times 10^9$ anos

Para a série de decaimento do U (Figura 1-2) é necessário um período de 1,5 milhões de anos, e nesta altura, considera-se que a série está em equilíbrio radioativo. O próprio urânio não emite raios gama durante o seu decaimento, e os raios gama mais energéticos emitidos pelos seus isótopos-filho, provêm do  $^{214}\text{Bi}$ , o qual ocorre tardiamente na série de decaimento. Sendo assim, são necessários longos períodos para que os raios gama indiquem precisamente o conteúdo de U no solo. Entre o  $^{238}\text{U}$  e o  $^{214}\text{Bi}$ , existem isótopos de longa-vida como  $^{230}\text{Th}$  ( $t_{1/2}=75\ 000$  anos),  $^{226}\text{Ra}$  ( $t_{1/2}=1\ 600$  anos), e o  $^{222}\text{Rn}$  ( $t_{1/2}=3,8$  dias), e todos eles possuem propriedades químicas e físicas diferentes do urânio. Movimentos diferenciais do U e dos seus isótopos-filho podem levar à separação U e do seu isótopo-filho emissor de raios gama,  $^{214}\text{Bi}$ . Neste caso a série está num estado de desequilíbrio e o teor de U não pode ser determinado com precisão por métodos de raios gama (Dickson & Scott, 1997).



**Figura 1-2** - Série de decaimento do  $^{238}\text{U}$ , de acordo com o “Chart of Nuclides”. Os isótopos finais de chumbo estão representados por uma caixa preta, os nuclídeos de longa-vida ( $T_{1/2} > 1$  ano) por uma caixa cinzenta. Os modos preferenciais de decaimento e a cadeia de decaimento resultante estão indicados por uma seta dupla, (retirado de IAEA, 2003).

O ião tetravalente de urânio ( $\text{U}^{4+}$ ) entra na estrutura de muitos minerais, dispersando prontamente. Existe uma substituição limitada de  $\text{U}^{4+}$  pelo  $\text{Ca}^{2+}$  na apatite e na fluorite, para cátions tetravalentes como o Zr e o W, e para cátions quintovalentes como o Nb e o Ta (discrepâncias de tamanho), mas existe um isomorfismo extenso com o  $\text{Th}^{4+}$ , devido a similaridades na carga e no raio iônico. Como o Th ocorre essencialmente no estado tetravalente ( $\text{Th}^{4+}$ ), este é um factor de consequência especial, para o desequilíbrio da cadeia de decaimento do U (Dill, 2010).

O desequilíbrio da série do urânio na natureza é uma fonte importante de erro, na espectrometria de raios gama, podendo estragar a exploração de U. A ocorrência de desvios na cadeia de decaimento

normal é causada por processos físicos, tais como a fuga de radão (isótopo-filho gasoso). A medição do  $^{214}\text{Bi}$  e do  $^{214}\text{Pb}$  como o produto final da cadeia de decaimento e o cálculo do conteúdo em  $^{238}\text{U}$  baseado no isótopo de  $^{214}\text{Bi}$ , produz um conteúdo mais baixo do que o conteúdo real, (Dill, 2010). Processos químicos também têm um impacto sobre o equilíbrio, pois as solubilidades químicas variáveis de cada produto-filho, podem provocar desequilíbrios ( $^{234}\text{Th}$  e o  $^{226}\text{Ra}$  são menos solúveis do que o radionuclídeo-pai,  $^{238}\text{U}$ ), (Dill, 2010). Isto pode causar uma separação destes elementos, devido à lixiviação diferencial.

Dependendo do tempo de meia-vida dos radioisótopos envolvidos, pode demorar dias, semanas ou mesmo milhões de anos até que o equilíbrio seja restabelecido.

As estimativas de concentração de urânio são, portanto, geralmente expressas como “urânio equivalente” (eU), sendo que estas estimativas são baseadas na suposição de condições de equilíbrio.

#### $^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$

No estado de equilíbrio secular (i.e.  $^{238}\lambda \ ^{238}\text{N} = ^{234}\lambda \ ^{234}\text{N}$ ) o rácio de abundância do  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  é inversamente proporcional às suas constantes de decaimento ou proporcional às meias-vidas =  $5.48 \times 10^{-5}$ , enquanto o rácio de atividade  $^{234}\text{A}/^{238}\text{A} = 1$  (IAEA, 2003).

O  $^{234}\text{U}$  é preferencialmente lixiviado da rocha, isto porque durante o decaimento do  $^{238}\text{U}$ , a ligação entre o  $^{234}\text{Th}$  (e os isótopos-filho subsequentes  $^{234}\text{Pa}$  e  $^{234}\text{U}$ ) e a matriz do cristal é quebrada, sendo que o átomo de  $^{234}\text{U}$  encontra-se mais liberto para entrar na solução, do que os átomos de  $^{238}\text{U}$  remanescentes. No entanto, o  $^{238}\text{U}$  pode ser lixiviado preferencialmente em relação ao  $^{234}\text{U}$  (IAEA, 2003).

#### $^{226}\text{Ra}$ e $^{222}\text{Rn}$

De acordo com Dickson, numa publicação de 1990, citada por Dickson & Scott (1997), o rádio é um metal alcalino-terroso e mostra um comportamento semelhante ao do Bário (Ba). O rádio pode ser mobilizado na maioria das águas subterrâneas, particularmente naquelas com salinidade bastante elevada. A sua mobilidade está restrita pela co-precipitação com sulfatos de bário, óxidos ou sulfatos de Fe-Mn, ou através da adsorção pela matéria orgânica. A geoquímica do rádio (Ra) também deve ser

considerada, pois os isótopos de Ra são membros de longa-vida em ambas as séries de decaimento do U e do Th e a mobilidade do Ra pode ser uma fonte de desequilíbrio em ambas as séries (IAEA, 2003).

O  $^{226}\text{Ra}$  é o isótopo-filho do  $^{230}\text{Th}$ , o qual, durante o decaimento  $\alpha$  do  $^{230}\text{Th}$ , pelas suas características geoquímicas, pode ser facilmente lixiviado da matriz da rocha.

O  $^{222}\text{Rn}$  é um gás nobre ( $t_{1/2}$  de 3.84 dias), pertencente à série de decaimento do  $^{238}\text{U}$ , que é continuamente produzido nas rochas e nos minerais através do decaimento  $\alpha$  do  $^{226}\text{Ra}$ . A fracção de radão que escapa das rochas e dos minerais, relativamente aquele produzido por estes, depende de fatores tais como a porosidade, a área de superfície total dos sólidos, da concentração e distribuição de  $^{238}\text{U}$  ( $^{226}\text{Ra}$ ) presente (Nuccetelli & Risica, 2008).

Sendo um gás nobre, o  $^{222}\text{Rn}$  não é absorvido pelos sólidos. Como um gás inerte algum do radão é emanado para os poros dos grãos e posterior ele migra do local de geração (solos, rochas e minerais) para a fase de fluido circundante, como o ar (atmosfera) ou água. De facto o  $^{222}\text{Rn}$  é altamente solúvel em água, contrariamente ao  $^{226}\text{Ra}$ . Já na atmosfera este subsequentemente decai, originando o  $^{210}\text{Pb}$ , um isótopo-filho com um tempo de vida curto (IAEA, 2003).

### 1.5.2.2. Série do tório

Como o U, o Th não emite raios gama durante o seu decaimento, sendo, no entanto o pai de uma série de decaimento que termina no isótopo estável  $^{206}\text{Pb}$ . Os raios gama mais energéticos emitidos pelos seus isótopos-filho provêm do  $^{208}\text{Tl}$ . O curto tempo de meia-vida dos isótopos-filho da série de decaimento do Th resulta em que sejam apenas necessários 40 anos, aproximadamente, para que seja estabelecido o equilíbrio na série. Sendo assim, geralmente, a actividade gama é uma boa medição do conteúdo em Th (Dickson & Scott, 1997).

**Tabela 1-2** – Isótopos naturais de tório (retirado de IAEA, 2003).

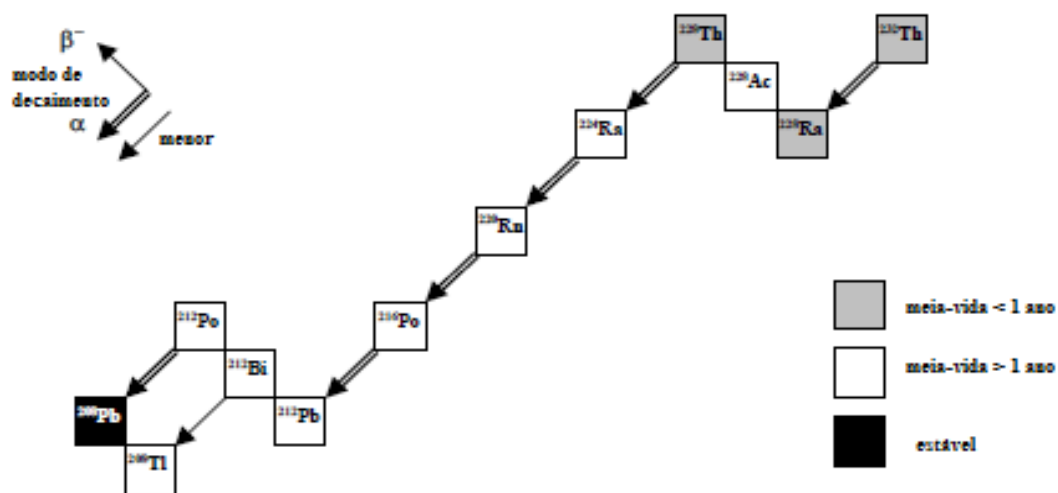
	$^{230}\text{Th}$	$^{232}\text{Th}$
<b>Fracção de abundância natural</b>		100 %
<b>Meia-vida (<math>T_{1/2}</math>)</b>	$7.5 \times 10^4$ anos	$1.4010 \times 10^{10}$ anos
<b>Cosntante de decaimento (<math>\lambda</math>)</b>	$2.93 \times 10^{-13} \text{ s}^{-1}$	$1.5678 \times 10^{-18} \text{ s}^{-1}$



A abundância e aplicação do membro de longa-vida, o  $^{230}\text{Th}$ , pertencente à série do  $^{238}\text{U}$ , filho do  $^{234}\text{U}$ , foi discutida acima. O par relativo ao nuclídeo-pai, o  $^{232}\text{Th}$  e o nuclídeo filho  $^{228}\text{Ra}$  apresenta um papel importante no estudo da interacção água-rocha. Importante é a diferença química entre o Th e o Ra, sendo que o primeiro é muito menos solúvel do que o último. Espera-se que o rácio de actividade seja = 1 em condições de equilíbrio; poderá ser < 1 se os minerais da rocha perderam  $^{228}\text{Ra}$  após a energia de recuo do  $^{232}\text{Th}$ , ou se os sedimentos estão a acumular  $^{228}\text{Ra}$ ; e > 1 se ocorrer uma captação de  $^{228}\text{Ra}$  por uma água circundante. Aplicações hidrológicas diretas do  $^{232}\text{Th}$  são improváveis, devido à extrema baixa solubilidade do Th em água (IAEA, 2003).

O isótopo natural de radão  $^{220}\text{Rn}$  é um membro da série de decaimento do  $^{232}\text{Th}$  (Figura 1-3). Enquanto o  $^{222}\text{Rn}$  ( $T_{1/2} = 3.82$  dias) pode migrar uma distância significativa, os níveis de  $^{220}\text{Rn}$  ( $T_{1/2} = 56$  segundos) são extremamente dependentes da distância à fonte. A exposição ao  $^{220}\text{Rn}$  apenas é significativa nas caves, em camas posicionadas perto da parede, num canto da sala, ou quando o local de dormida é diretamente no chão (Steinhäusler, 1996; Veiga *et al.*, 2006).

O Tório também é geralmente expresso como “tório equivalente” (eTh), embora a série de decaimento radioativo do tório, seja quase sempre em equilíbrio.



**Figura 1-3** - Série de decaimento do  $^{232}\text{Th}$ , de acordo com o “Chart of Nuclides”. Os isótopos finais de chumbo estão representados por uma caixa preta, os nuclídeos de longa-vida ( $T_{1/2} > 1$  ano) por uma caixa cinzenta. Os modos preferenciais de decaimento e a cadeia de decaimento resultante estão indicados por uma seta dupla, (retirado de IAEA, 2003).

## 1.6. Radioatividade natural em materiais de construção

A exposição pública à radiação está dividida em duas grandes classes: exposição a fontes naturais de radiação e exposição a fontes antropogénicas. A exposição dos seres humanos à radiação ionizante a partir de fontes naturais é uma característica contínua e incontornável da vida na Terra. Existem dois principais contribuintes para as exposições de radiação natural: partículas de raios cósmicos de alta energia incidentes na atmosfera da Terra (radiação cósmica), e nuclídeos radioativos originados na crosta terrestre, estando presentes em todo o ambiente, incluindo o próprio corpo humano (radiação Terrestre), (UNSCEAR, 2000).

A radiação cósmica pode ser dividida em diferentes grupos, de acordo com a sua origem, tipo de energia, e a densidade de fluxo das partículas. No entanto, apenas os tipos mais importantes para a exposição humana sejam tidos em conta: radiação cósmica galáctica, radiação cósmica solar e radiação proveniente dos cinturões de radiação Terrestres (cinturões de radiação de Van Allen). Para além do “efeito de escudo” fornecido pelo campo magnético Terrestre, a vida na Terra encontra-se blindada contra esta radiação por uma camada de ar com aproximadamente  $10\,000\text{ kg/m}^2$ , o que é comparável a uma camada de água com 10 metros de espessura. Como resultado, ao nível do mar, a radiação cósmica é responsável por cerca de 10% da taxa de dose total de radiação natural, à qual os Humanos sempre estiveram expostos. Estes raios cósmicos interagem com os núcleos dos constituintes atmosféricos, e produzem uma cascata de interações e produtos de reação secundários (UNSCEAR, 2008, anexo B).

Existem duas fontes possíveis de radiação ionizante para os seres humanos: uma fonte externa, resultante da radiação gama, e uma fonte interna resultante da ingestão de água e de partículas, e inalação de gases e partículas.

A principal contribuição para a exposição externa provém de radionuclídeos, emissores de radiação gama, presentes nos solos e rochas Terrestres em quantidades vestigiais (UNSCEAR, 2008, anexo B). Em termos de dose, apenas os radionuclídeos e os seus produtos de decaimento, com um tempo de meia-vida comparável à idade da Terra (radionuclídeos primordiais –  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$  e o  $^{232}\text{Th}$ ), existem em quantidades suficientes, de forma a contribuírem significativamente para a exposição da população. Após o seu decaimento, estes radionuclídeos produzem um campo de radiação externa, à qual todos os seres humanos estão expostos (UNSCEAR, 2000, anexo A).

Existem dois processos principais que contribuem para a exposição interna, o termo geral usado para descrever exposições que envolvam o consumo de radionuclídeos pelo corpo humano. Os dois processos são a inalação de ar contaminado e a ingestão de alimentos e/ou água contaminada. Uma contribuição muito importante para a exposição por inalação é feita pelo radão ( $^{222}\text{Rn}$  e  $^{220}\text{Rn}$ ) e seus produtos de decaimento. Este gás é emanado a partir do solo e/ou materiais de construção, podendo concentrar-se em espaços interiores. A exposição por ingestão ocorre quando os radionuclídeos presentes no ambiente entram nas cadeias alimentares (UNSCEAR, 2000, anexo A).

Todos os materiais de construção contêm várias quantidades de nuclídeos radioativos naturais. Os materiais derivados da rocha e do solo contêm principalmente radionuclídeos naturais das séries do urânio ( $^{238}\text{U}$ ) e do tório ( $^{232}\text{Th}$ ), e o isótopo radioativo do potássio ( $^{40}\text{K}$ ). Na série do urânio, o segmento da cadeia de decaimento a partir do rádio ( $^{226}\text{Ra}$ ), é radiologicamente o mais importante e, por conseguinte, a referência é frequentemente feita ao rádio em vez de urânio. As concentrações médias mundiais de rádio, tório e potássio na crosta terrestre são cerca de 40 Bq/kg, 40 Bq/kg e 400 Bq/kg, respetivamente, (EC, 1999).

Os materiais de construção podem contribuir para ambas as doses externas (através da radiação gama direta emitida pelas superfícies dos materiais), e internas. A exposição interna é causada pela inalação de radão ( $^{222}\text{Rn}$ ), torão ( $^{220}\text{Rn}$ ) e os seus produtos de decaimento de curta duração. O radão é parte da série de decaimento radioativo do urânio, que está presente nos materiais de construção. O radão é um gás inerte, pelo que, pode mover-se livremente através de meios porosos, como os materiais de construção, embora, normalmente apenas uma fração da que é produzida no material, atinge a superfície e entra no ar interior. A fonte mais importante de radão interior é o solo subjacente, mas em alguns casos e em alguns Estados Membros, também os materiais de construção podem ser uma fonte importante. Na maior parte dos casos, a grande parte de radão interior, nos andares superiores de um edifício é originada pelos materiais de construção. O excesso típico de concentração de radão interior devido aos materiais de construção varia entre 10 – 20 Bq/m<sup>3</sup>, mas em algumas zonas e em casos raros estes valores podem exceder os 1000 Bq/m<sup>3</sup>, (EC, 1999).

Os materiais de construção são a fonte mais importante de tório interior. No entanto, as concentrações de tório são geralmente baixas. Somente quando os materiais de construção contêm altas concentrações de tório, é que o tório interior pode ser uma fonte importante de exposição, (EC, 1999).

### **1.6.1. Dose efetiva**

Para estimar as doses efetivas anuais, devem ser tomadas em consideração (a) o coeficiente de conversão de dose absorvida no ar para a dose efetiva e (b) o fator de ocupação do interior. Os valores numéricos médios destes parâmetros variam com a idade da população e o clima no local considerado. No relatório UNSCEAR (1993), foi utilizado o valor 0,7 Sv/Gy, como o coeficiente de conversão de dose absorvida no ar para dose efetiva recebida pelos adultos (UNSCEAR, 2000, anexo B). O valor de 0,8 continua a ser utilizado como o fator de ocupação do interior, o que implica que a população passa 20 % do seu tempo no exterior, em média, em todo o mundo (UNSCEAR, 2000, anexo A). Isto significa que a fração de tempo passado no interior e no exterior é de 0,8 e 0,2, respetivamente (UNSCEAR, 2000, anexo B). A estimativa de 80 % do tempo gasto no interior é considerada baixa para os países industrializados em climas temperados, e alta para os países agrícolas em climas quentes (UNSCEAR, 2000, anexo A). Cálculos mais recentes, utilizando os códigos de radiação de transporte de Monte Carlo indicam que, para bebés e crianças, devem ser utilizados fatores de conversão mais elevados, 0,9 Sv/Gy para bebés e 0,8 Sv/Gy para crianças. Os componentes da dose efetiva anual (DEA) são determinados da seguinte forma:

$$\text{DEA exterior} = \text{Taxa de dose absorvida no ar exterior (nGy/h)} \times 0.2 \times 0.7 \text{ Sv/Gy} \quad [\text{eq. 1-7}]$$

$$\text{DEA interior} = \text{Taxa de dose absorvida no ar interior (nGy/h)} \times 0.8 \times 0.7 \text{ Sv/Gy} \quad [\text{eq. 1-8}]$$

A média mundial resultante da dose efetiva anual é de 0,48 mSv, com os resultados para cada país estando, geralmente entre 0,3 e 0,6 mSv. Para os bebés e crianças, os valores são cerca de 30 % e 10 % mais elevado, em proporção direta com o aumento do valor do coeficiente de conversão (UNSCEAR, 2000, anexo B).

### **1.6.2. Lei de radiação Finlandesa**

A Legislação de radiação Finlandesa (592/91) foi revista em 1992, tendo em conta as recomendações do ICRP, 1990. Práticas que causam exposições ocupacionais ou públicas à radiação natural foram consideradas. (Markkanen, 1995).

Esta lei (592/91) afirma que as práticas de radiação englobam ações ou circunstâncias em que a exposição de uma pessoa à radiação natural, causa ou possa causar riscos à saúde. As práticas de radiação compreendem a produção, o comércio ou a manipulação de materiais com radioatividade natural elevada, causando um excesso de exposição significativa, ao público em geral ou trabalhadores. (Markkanen, 1995).

O Radão no local de trabalho, a exposição ocupacional a outras fontes de radiação natural e a exposição pública a fontes como, a água para uso doméstico, com elevada radioatividade natural, fornecida pelas companhias de água, são abrangidos no âmbito da Lei de radiação. O radão nas habitações não se inclui no âmbito da Lei de Radiação. (Markkanen, 1995).

O Ministério dos Assuntos Sociais e Saúde Finlandês emitiu disposições distintas sobre os limites máximos para as concentrações de radão em casas (944/92). Assim, o limite superior para os edifícios existentes é de 400 Bq/m<sup>3</sup> e de 200 Bq/m<sup>3</sup> para as novas construções. (Markkanen, 1995).

De acordo com a Lei de Radiação, aquando a utilização de recursos naturais que contêm materiais radioativos, a parte responsável deve assegurar que os resíduos radioativos não colocam quaisquer perigos para a saúde e ambiente durante as operações, incluindo as suas fases finais (Markkanen, 1995).

### **1.6.3. Guias de segurança de radiação para a radiação natural**

Com base nas recomendações do ICRP (1990), os limites anuais de dose foram adicionados ao decreto de radiação (1512/91). A Lei de Radiação autoriza a STUK (Finnish Radiation and Nuclear Safety Authority) a emitir restrições de dose inferiores em casos individuais para manter a exposição à radiação tão baixa quanto razoavelmente possível. A STUK também está autorizada a fornecer orientações gerais sobre a forma de atingir o nível de segurança prescrito pela Lei de Radiação (Markkanen, 1995).

Nesta base, a STUK emitiu guias gerais (Safety Guides) que estabelecem requisitos de segurança para diferentes práticas que provocam um excesso de exposição à radiação natural. Os requisitos de segurança, expressos em doses máximas anuais, baseiam-se em avaliações a nível nacional, afetando apenas um pequeno número de empresas a nível nacional. (Markkanen, 1995).

O radão nos locais de trabalho é a fonte mais significativa de exposição ocupacional a fontes de radiação natural na Finlândia. O limite superior para a concentração de radão em locais de trabalho foi

emitido na ST – guide 1.2 “Application of Maximum Radiation Exposure Values and Monitoring of Radiation Exposure”. O limite de 400 Bq/m<sup>3</sup> é a concentração média anual durante as horas de trabalho, num emprego com horário normal de trabalho. Se forem trabalhadas menos de 600 horas por ano, podem ser aceites níveis de concentração de radão superiores (Markkanen, 1995).

Se a concentração de radão, no local de trabalho exceder os 400 Bq/m<sup>3</sup>, o empregador deve tomar medidas para reduzi-la. Se, apesar dos esforços, a concentração de radão não poder ser reduzida abaixo dos 400 Bq/m<sup>3</sup>, o trabalho é classificado como trabalho de radiação. Nos trabalhos de radiação, as exposições ao radão pelos trabalhadores devem ser registradas e monitorizadas. A concentração máxima de radão em trabalhos de radiação é de 3200 Bq/m<sup>3</sup> (Markkanen, 1995).

O ST-guide 12.1 “Radiation Safety in Mining and Underground Excavation” define os limites máximos para a exposição ao radão em minas e em escavações subterrâneas. Os limites são os mesmos que os dos outros locais de trabalho, sendo obrigatória a monitorização regular nestes locais de trabalho (Markkanen, 1995).

#### **1.6.4. Diretiva Europeia de Normas de Segurança Básica (BSS)**

Em 1999, a European Basic Safety Standards Directive (BSS) estabeleceu um quadro para controlar a exposição a fontes naturais de radiação, decorrentes de atividades laborais. O título VII da diretiva aplica-se a atividades laborais nas quais a presença de fontes naturais de radiação resulta num aumento significativo de exposição dos trabalhadores ou de membros do público. Os Estados Membros devem assim identificar as atividades de trabalho que podem ser motivos de preocupação (EC, 1999).

A diretiva BSS não se aplica à exposição ao radão em habitações ou ao nível natural de radiação, i.e, à exposição na superfície devida aos radionuclídeos presentes na “crusta Terrestre inalterada”. O termo “crusta Terrestre inalterada” significa uma crosta Terrestre onde não existem pedreiras e onde não é realizado qualquer tipo de mineração (subterrânea ou a céu-aberto). Atividades de escavação ou recarga, como parte integrante de trabalhos de construção, não são considerados processos de perturbação de crosta terrestre (EC, 1999).

A Recomendação da Comissão sobre o Radão presente nas habitações apresenta um nível de conceção de exposição ao radão em construções futuras. O nível de conceção corresponde a uma concentração média anual de radão de 200 Bq/m<sup>3</sup>. O nível de conceção deve ser usado para ajudar as

autoridades competentes no estabelecimento de regulamentos, normas, ou códigos de práticas de construção para circunstâncias nas quais, o nível de conceção poderá ser ultrapassado (EC, 1999).

Entre as atividades identificadas no BSS como potencialmente preocupantes são aquelas “que levam à produção de resíduos que contêm radionuclídeos naturais causadores de um aumento significativo da exposição, de membros do público...”. Tais materiais podem incluir cinzas de carvão originárias de centrais elétricas, produtos de gesso e determinadas escórias que são produzidas em grandes volumes e que potencialmente podem ser utilizadas como materiais de construção (EC, 1999).

A Diretiva dos Produtos de Construção estabelece os requisitos essenciais para os trabalhos de construção. Os trabalhos de construção devem ser concebidos e realizados de forma a que a emissão de radiações perigosas, não represente uma ameaça para a saúde dos ocupantes ou vizinhos. No entanto, cabe aos Estados Membros a responsabilidade de assegurar que os trabalhos de construção nos seus territórios sejam concebidos e realizados de forma a não pôr em risco a segurança dos cidadãos. Estas provisões nacionais influenciam os produtos de construção e a forma como estes são utilizados nos trabalhos de construção (EC, 1999).

Na prática, podem aplicar-se diferentes considerações radiológicas ao uso de materiais naturais e de subprodutos como materiais de construção. Até certo ponto, esta distinção é apropriada, particularmente onde antigas práticas de construção de edifícios estão em causa. No entanto, seria incongruente, a aplicação de critérios muito diferentes sobre a aceitabilidade de materiais alternativos, que contêm níveis semelhantes de radionuclídeos naturais. Estas diferenças são minimizadas no esquema de controlo aqui proposto (EC, 1999).

Alguns Estados Membros já estabeleceram normas específicas sobre a radioatividade em materiais de construção. Enquanto transpõem a Diretiva da BSS para a legislação nacional, alguns Estados Membros devem considerar o estabelecimento de regras específicas. É desejável que os controlos sejam suficientemente uniformes, de modo a permitir a circulação de materiais de construção na União Europeia (EC, 1999).

Os objetivos destas recomendações é fornecer uma orientação no sentido de definir os controlos na radioatividade de materiais de construção. Esta orientação não se destina a ser aplicada a edifícios existentes (EC, 1999).

Entenda-se como “materiais de construção” qualquer material que é produzido para ser incorporado de uma forma permanente em edifícios (EC, 1999).

### **1.6.5. Princípios de proteção de radiação**

O objetivo de estabelecer os limites sobre a radioatividade de materiais de construção é limitar a exposição à radiação devido a materiais com níveis potenciados ou elevados de radionuclídeos naturais. As doses para os membros do público devem ser mantidas tão baixo quanto razoavelmente possível. No entanto, como pequenas exposições a materiais de construção são ubíquas o controlo deve ser baseado em níveis de exposição que estão acima dos níveis típicos de exposições e suas variações normais (EC, 1999).

As concentrações dos radionuclídeos naturais em materiais de construção variam significativamente entre e dentro dos Estados Membros. Poderá ser necessário realizar investigações de forma a determinar as atividades em vários materiais de construção, em que estas informações não estejam disponíveis a partir de pesquisas anteriores (EC, 1999).

Todos os materiais de construção contêm alguma radioatividade natural associada. Exposições pequenas e inevitáveis precisam ser isentas de todos os controlos possíveis. Uma isenção uniforme na União Europeia permitiria a livre circulação dos materiais de construção dentro desta (EC, 1999).

Restringir o uso de certos materiais de construção pode ter consequências ambientais e sociais a nível local e nacional. Tais consequências, juntamente com níveis nacionais de radioatividade em materiais de construção, devem ser avaliadas e consideradas no estabelecimento de regulamentos vinculativos (EC, 1999).

A quantidade de rádio (Ra) em materiais de construção deve ser restrita a um nível, onde é improvável que este seja uma das principais causas para que o limite máximo da conceção para o radão interior introduzido na Recomendação da Comissão seja excedido ( $200 \text{ Bq/m}^3$ ) (EC, 1999).

Doses individuais excepcionalmente elevadas devem ser restritas. Na União Europeia, doses gama efetivas devido a materiais construção, superiores a  $1 \text{ mSv/a}$ , são muito excecionais e dificilmente podem ser ignoradas do ponto de vista da proteção contra radiações. Quando as doses gama efetivas estão limitadas a níveis abaixo de  $1 \text{ mSv/a}$ , as concentrações de  $^{226}\text{Ra}$ , nos materiais de construção, estão limitadas, na prática, a níveis não susceptíveis de causar concentrações de radão interior, capazes de exceder o nível de conceção da Recomendação da Comissão de  $200 \text{ Bq/m}^3$  (EC, 1999).



### **1.6.6. Critério de dose efetiva para controlo ou isenção de materiais de construção**

No seguimento da secção 1.6.4., relativa à directiva BSS, a Diretiva n.º 96/29/EURATOM, estabelece uma série de critérios específicos aplicados à exposição dos membros do público às radiações ionizantes de origem artificial, bem como aos trabalhadores profissionalmente expostos e aprendizes. Os controlos de radioatividade de materiais de construção podem ser baseados nos critérios e princípios radiológicos seguidamente apresentados.

Os controlos devem ser baseados segundo um critério de dose efetiva, o qual é estabelecido considerando as circunstâncias nacionais gerais. Dentro da União Europeia, doses efetivas superiores a 1 mSv/a devem ser tidas em conta segundo o ponto vista da proteção contra radiações. Doses efetivas mais elevadas poderão ser aceites apenas em casos muito excecionais em materiais utilizados localmente. Os controlos podem ser baseados segundo um critério de dose efetiva mais baixa, se for considerado, que esta é desejável e que não levará a controlos indesejáveis. Sendo assim, recomenda-se que os controlos devam basear-se numa dose efetiva no intervalo entre 0,3 – 1 mSv/a. Esta é a dose gama efetiva em excesso daquela recebida do exterior resultante da contribuição dos materiais de construção (EC,1999).

Os materiais de construção devem ser isentos de todas as restrições relativas à sua radioatividade, se o excesso de radiação gama por eles originada, aumentar a dose efetiva anual recebida por um membro do público em 0,3 mSv/a, no máximo (EC,1999).

Devem ser consideradas limitações separadas para a exalação de radão ou tórão pelos materiais de construção, onde avaliações anteriores mostram que estes materiais podem ser importantes fontes de radão interior ou tórão. Restrições impostas a estas fontes mostra ser uma forma eficiente e rentável para limitar as exposições ao radão interior ou tórão (EC, 1999).

### **1.7. Índices de atividade**

Os índices de atividade são utilizados para avaliar se os requisitos de segurança estão a ser cumpridos. Para materiais de construção, os índices de atividade são calculados com bases nas medições de concentração de atividade do rádio ( $^{226}\text{Ra}$ ), tório ( $^{232}\text{Th}$ ) e potássio ( $^{40}\text{K}$ ). Em casos especiais, são também considerados outros nuclídeos como o cézio ( $^{137}\text{Cs}$ ) em cinzas resultantes de combustão de turfa (Markkanen, 1995).

Os níveis de investigação podem ser derivados para fins de monitorização práticos. Como mais do que um radionuclídeo contribui para a dose, é prático apresentar os níveis de investigação na forma de um índice de concentração de atividade. O índice de concentração atividade deve também ter em conta formas típicas e quantidades nas quais o material é utilizado no edifício. Um exemplo de índice de concentração de atividade indicado pela Comissão Europeia é o índice gama ( $I_\gamma$ ). Este índice não deve exceder os valores abaixo representados (Tabela 1-3), dependendo do critério de dose efetiva, da forma e da quantidade em que o material é utilizado no edifício. Os cálculos apresentados no anexo II do EC 112 (EC, 1999) indicam que o limite deve ser interpretado como 1,0.

**Tabela 1-3** - Valores do Índice gama ( $I_\gamma$ ), em mSv/a, sugeridos pela Comissão Europeia (EC, 1999).

<b>Critério de dose efetiva por ano</b>	<b>0,3</b>	<b>1</b>
<b>Materiais utilizados em unidade de alvenaria* ex: betão</b>	$I \leq 0,5$	$I \leq 1$
<b>Materiais superficiais e outros materiais com utilização restrita: telhas, placas, etc.</b>	$I \leq 2$	$I \leq 6$

\*: corresponde no original a “Materials used in bulk amounts”.

O índice de concentração de atividade deve ser usado apenas como uma ferramenta de triagem para a identificação de materiais que poderão ser um motivo de preocupação. Qualquer decisão real sobre a restrição do uso de um determinado material deve ser baseada numa avaliação de dose em separado. Essa avaliação deverá ser baseada em cenários onde o material em questão é utilizado de uma forma específica. Cenários que resultam em doses máximas improváveis devem ser evitados. Markkanen (1995) defende que estes índices para materiais de construção evitam os casos extremos de emissão de radão uma vez que, na prática, limitam os níveis de  $^{226}\text{Ra}$  a perto de 150 Bq/kg (o autor refere ainda que uma vez que os materiais terão sempre alguma concentração de  $^{232}\text{Th}$  and  $^{40}\text{K}$ , e que será pouco provável que um valor de 1,0 corresponda a uma concentração de  $^{226}\text{Ra}$  igual a 300 Bq/kg).

Numa perspetiva semelhante é definido (ver Righi e Bruzzi, 2006) um índice alfa ( $I_\alpha$ ) a partir da atividade específica do  $^{226}\text{Ra}$ , em que valores superiores a 1 indicam uma situação em que é possível que os materiais promovam um conteúdo em radão superior ao valor de 200 Bq/m<sup>3</sup> de radão e que valores inferiores a 0,5 indicam que é pouco provável que esses materiais contribuam com conteúdo em radão superiores a 200 Bq/m<sup>3</sup>.

No capítulo 3 serão apresentadas as equações dos vários índices que serão calculados no âmbito desta dissertação.

### **1.7.1. Aplicações**

O objetivo do controlo da radiação dos materiais de construção é restringir as doses individuais mais elevadas. Sendo assim, o controlo de dose, utilizado para controlos nacionais deve ser escolhido de maneira que a maioria dos materiais de construção presentes no mercado cumpram os requisitos. Normalmente, são necessárias medições de concentrações de atividades, apenas em casos de uma suspeita específica, em que o critério de dose para controlo possa ser ultrapassado. Os Estados Membros devem exigir, no mínimo, a medição de tipos de materiais que são genericamente suspeitos (EC, 1999).

Quando o valor de referência do índice de concentração de atividade é ultrapassado, devem ser realizadas avaliações adequadas da dose. Normalmente, o produtor ou distribuidor é responsável por garantir e mostrar que um dado material colocado no mercado, satisfaz os requisitos radiológicos estabelecidos por cada Estado Membro. No entanto, de acordo com as circunstâncias nacionais e práticas administrativas, podem ser aplicadas outras abordagens, como por exemplo, o construtor ou arquitecto do edifício ser o responsável por garantir que a nova construção está em conformidade com os requisitos radiológicos estabelecidos por Estado Membro (EC, 1999).

Os materiais devem ser isentos de todos os controlos relativos à sua radioatividade, se for demonstrado que o critério de dose para a isenção não é excedido. Isto pode ser feito comparando os resultados de medições de concentração de atividade com o índice de concentração de atividade, ou, como apropriado, por meio de uma avaliação de dose em função do material. Um material isento deve ser autorizado a entrar no mercado (incluindo importação e exportação dentro da UE) e a ser utilizado para fins de construção, sem quaisquer restrições relacionadas com a sua radioatividade. No caso da exportação dentro da União Europeia, entende-se que o valor do índice de concentração de atividade ou uma declaração de isenção, deva ser incluído nas especificações técnicas do material (EC, 1999).

As medições de concentrações de atividade em materiais de construção devem ser feitas com equipamento apropriado, e que tenha sido submetido e aprovado a uma calibração e a uma garantia de qualidade de programas (EC, 1999).

Os Estados Membros devem assegurar que o aconselhamento e assistência estão disponíveis para os produtores e/ou comerciantes de materiais de construção. Deve também assegurar, conforme apropriado para os arquitetos e construtores, os métodos de avaliação de doses para demonstrar a conformidade como os requisitos radiológicos (EC, 1999).

Quando subprodutos industriais são incorporados em materiais de construção e há razão para suspeitar que estes contenham níveis elevados de radionuclídeos naturais, as concentrações destes nuclídeos no produto final, devem ser medidas ou avaliadas de forma fiável, a partir das atividades de todos os materiais que o compõem. Quando necessário, devem ser considerados outros nuclídeos, para além do  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$ . O critério de dose deverá ser aplicado no produto final (EC, 1999).

Subprodutos industriais são por vezes, utilizados em materiais de construção. Estas práticas podem levar à aplicação de critérios radiológicos mais rigorosos, que foram estabelecidos para a eliminação de resíduos que contenham níveis intrínsecos ou elevados de radionuclídeos naturais. Nestas circunstâncias os Estados Membros devem considerar a introdução de controlos separados, para esse tipo de subprodutos, aquando a entrada na indústria de materiais de construção. O uso de subprodutos industriais que contenham radionuclídeos naturais, em materiais de construção, que podem resultar em índices de concentração de atividade superiores aos valores previstos pela Recomendação da Comissão, deve ser justificado caso a caso pelos Estados Membros. Espera-se que tal justificação inclua critérios não radiológicos (EC, 1999).

Alguns materiais de construção naturais, utilizados tradicionalmente contêm radionuclídeos naturais em níveis tais que, a dose efetiva anual de 1 mSv poderá ser ultrapassada. Alguns destes materiais podem já ter sido usados por décadas ou séculos. Nestes casos, o abandono do uso destes materiais deverá ser analisado, incluindo os custos financeiros e sociais (EC, 1999).

### **1.8. Avaliação da dose gama externa**

Dois métodos de avaliação de exposições externas a radionuclídeos naturais podem ser considerados (UNSCEAR, 2000). O primeiro consiste, simplesmente, em resumir diretamente as taxas de dose gama externas medidas no ar, no interior e no exterior, subtraindo a taxa de dose devida aos raios cósmicos (avaliação direta). O segundo consiste em calcular as taxas de dose gama externas no ar, através de medições das concentrações dos radionuclídeos relevantes no solo (avaliação indireta).

### **1.8.1. Avaliação direta**

Medições diretas da taxa de dose absorvida no ar, no exterior têm sido realizadas nas últimas décadas em muitos países, tendo sido criada uma base de dados que abrange 70 % da população mundial. Vários países foram adicionados desde a avaliação anterior (UNSCEAR, 1993) e vários valores foram revistos com base em novas informações (UNSCEAR, 2000, anexo B). A média ponderada da população é de 59 nGy/h, em comparação com 57 nGy/h na avaliação anterior (UNSCEAR, 1993). Os valores médios variam entre 18 e 93 nGy/h. A gama típica de variabilidade para as taxas de dose absorvidas no ar é de 10 a 200 nGy/h (UNSCEAR, 2000, anexo B). Os valores mais baixos, são encontrados no Chipre, Islândia, Egito, Holanda, Brunei e Reino Unido, todos eles com valores inferiores a 40 nGy/h. A Austrália, Malásia e Portugal apresentam os valores mais elevados, todos superiores a 80 nGy/h (UNSCEAR, 2000, anexo B).

Os rácios exterior/interior variam entre 0,6 e 2,3, com uma média ponderada da população de 1,4. Assim, a exposição no interior é, geralmente, 40 % superior à exposição no exterior. Estes não pretendem refletir as condições reais em locais específicos, mas sim dar uma ideia geral relativa, dos dados gerais recolhidos em diferentes países. Valores inferiores a 1 são encontrados apenas na Tailândia, Estados Unidos da América e na Islândia, onde a construção em madeira é comum. Valores superiores a 2, resultam de valores interiores elevados ( caso da Suécia e de Hong Kong) relativamente aos valores exteriores, ou de valores baixos no exterior (caso da Holanda) relativamente aos interiores (UNSCEAR, 2000, anexo B).

O rácio interior/exterior é muito sensível às propriedades estruturais dos edifícios (materiais e espessura). Os materiais de construção actuam como fontes de radiação e também como escudos contra a radiação do exterior. Em casas de madeira e mais leves, o efeito de fonte de radiação é negligenciável, e as paredes são um escudo ineficiente contra fontes exteriores de radiação, de modo que, é esperado que a taxa de dose absorvida no ar, no interior seja inferior à exterior. Em contraste, em casas maciças feitas de tijolos, betão ou pedra, os raios gama emitidos no exterior são absorvidos eficientemente pelas paredes, e a taxa de dose absorvida no ar, no interior depende, essencialmente, da concentração dos radionuclídeos nos materiais de construção e nos solos exteriores (UNSCEAR, 2008, anexo B). Sob estas circunstâncias, a taxa de dose absorvida no ar, no interior é geralmente elevada, como resultado da mudança da fonte geométrica, com o rácio interior/exterior das taxas de dose absorvida no ar, entre 1 e 2 (UNSCEAR, 2000, anexo A).

### **1.8.2. Avaliação indireta**

Também foram feitas pesquisas para determinar as concentrações de radionuclídeos no solo (UNSCEAR, 2000, anexo A). Estas são as concentrações *in situ*. A atividade de concentração do  $^{40}\text{K}$  no solo é uma ordem grandeza maior do que a de  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ . Na primeira avaliação das concentrações destes radionuclídeos no solo, no Relatório do UNSCEAR (1986), foram sugeridos os valores de 370, 25, e 25 Bq/kg para o  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ , respetivamente. Com base nos níveis mais elevados reportados para a China e Estados Unidos, no Relatório do UNSCEAR (1988), reviu-se os valores para o  $^{238}\text{U}$  e o  $^{232}\text{Th}$ , para 40 Bq/kg. Os valores médios são 400, 35 e 30 Bq/kg, e os valores ponderados para a população são 420, 33, e 45 Bq/kg para o  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ , respetivamente (UNSCEAR, 2000).

Com base nas características físicas dos sistemas radioativos envolvidos podem ser propostos coeficientes de transformação da atividade específica (Bq/kg) de um isótopo para taxa de dose absorvida. A soma das contribuições dos diferentes isótopos permite obter uma estimativa teórica da taxa de dose absorvida que será observada na presença daquele material. Os detalhes sobre os fatores a considerar serão apresentados no capítulo 3 no contexto dos métodos a utilizar.

### **1.9. Legislação Nacional Portuguesa**

O decreto-lei n.º 222/2008, de 17 de Novembro, transpõe para ordenamento jurídico interno os limites de dose previstos na Directiva n.º 96/29/EURATOM, do Conselho, de 13 de Maio, a qual se aplica à exposição dos membros do público às radiações ionizantes de origem artificial, bem como aos trabalhadores profissionalmente expostos e aprendizes, sendo estabelecidos uma série de critérios específicos para a protecção dos mesmos, entre os quais, um limite de segurança máximo de 1 mSv/a, relativamente a dose gama efetiva em excesso.

## **2. ENQUADRAMENTO DA ÁREA DE ESTUDO**

### **2.1. Enquadramento geológico**

No NW de Portugal ocorre um importante volume de granitóides, que correspondem a sucessivos pulsos magmáticos, principalmente instalados durante a etapa pós-colisional da orogenia varisca (290-321 Ma). A Zona Centro Ibérica (ZCI) que constitui a zona axial do segmento ibérico da Cadeia Varisca, apresenta testemunhos de relevante e diversificada atividade plutónica, particularmente expressiva após o estágio de espessamento crustal sincolisional. Abundam rochas graníticas, por vezes associadas a rochas de composição básica e intermédia, que definem alinhamentos em estreita relação com zonas de cisalhamento (Ferreira *et al.*, 1987). Tratam-se de rochas graníticas caracterizadas por forte variabilidade composicional e de tipologia diversa, desde afinidade aluminopotássica a calcoalcalina e subalcalina (Dias *et al.*, 2010) como é descrito em seguida:

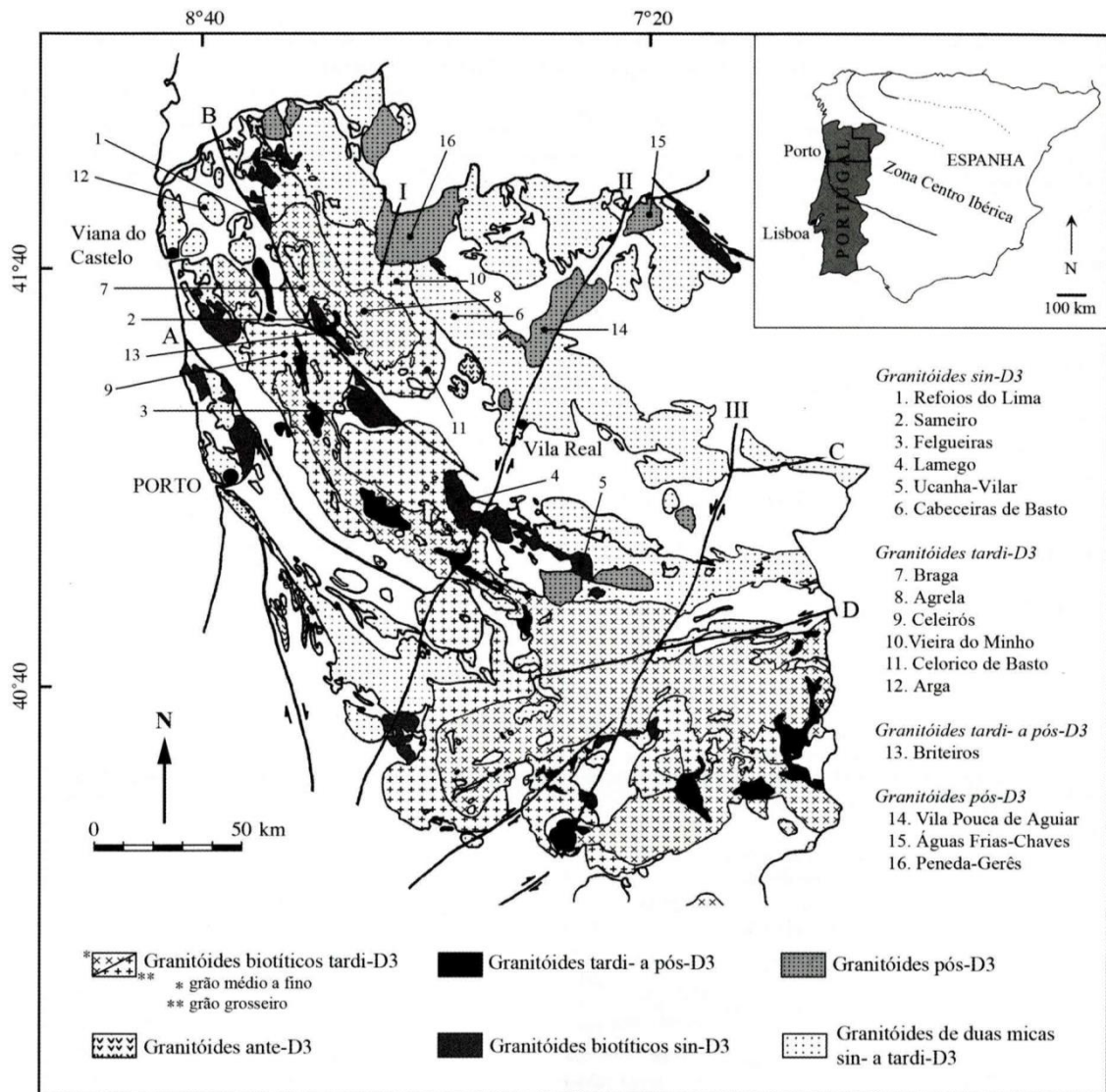
- (1) Granitóides sin-D3, 313-319 Ma: monzogranitos/granodioritos biotíticos, fraca a moderadamente peraluminosos e leucogranitos de duas micas fortemente peraluminosos, com afinidades calco-alcalinas e aluminopotássicas.
- (2) Granitóides tardi-D3, predominam os monzogranitos/granodioritos essencialmente biotíticos, fraca a moderadamente peraluminosos, por vezes associados a rochas de composição básica a intermédia, ocorrendo ainda granitos de duas micas fortemente peraluminosos.
- (3) Granitóides tardi- a pós-D3, cerca de 300 Ma: leucogranitos de duas micas fortemente peraluminosos, com afinidade aluminopotássica.
- (4) Granitóides pós-D3, 290-296 Ma: granitos biotíticos a biotítico-moscovíticos, ligeiramente metaluminosos a peraluminosos, com afinidades subalcalinas ferro-potássicas.

### **2.2. Geologia e geocronologia**

A região de Braga é dominada essencialmente pela ocorrência de rochas graníticas de idade Hercínica com diferentes granularidades, texturas e composição que se distribuem paralelamente à zona de cisalhamento dúctil Vigo-Régua ou à fracturação tardi-hercínica (Figura 2-1). Consideram-se três grupos de acordo com a sua instalação durante as últimas fases de deformação hercínica: (1) granitóides sin-D3, granitos de Gondizalves, Vila Verde e Sameiro; (2) granitóides tardi-D3, complexos

graníticos de Ceilirós, Povia de Lanhoso e Braga; (3) granitóides tardi- e pós-D3, granito de Briteiros (Gomes Vilela, 2009).

A cidade de Braga, aproximadamente 41°32'N 8°25'W, capital do distrito de Braga, localiza-se no Litoral Norte, assenta no Granito de Braga que faz parte do complexo granítico de Braga. A cidade de Braga está inserida na região cartografada pela folha 5-D da Carta Geológica de Portugal, na escala 1/50 000 cuja notícia explicativa (Ferreira *et al.*, 2000) serve de referência à descrição que se segue.



**Figura 2-1** - Distribuição dos granitóides sin a pós orogénicos Hercínicos no NW de Portugal (Dias *et al.*, 2001; a partir de Ferreira *et al.*, 1987, modificado). A- "Sulco Carbonífero Dúrico-Beirão" shear zone; B- Zona de cisalhamento Vigo-Régua; C- Zona de cisalhamento Moncorvo-Bemposta; D- Zona de cisalhamento Traguntia-Penalva do Castelo; I - Falha Gerês-Lovios; II - Falha Régua-Verin; III - Falha da Vilarça; D3 - última fase de deformação dúctil.



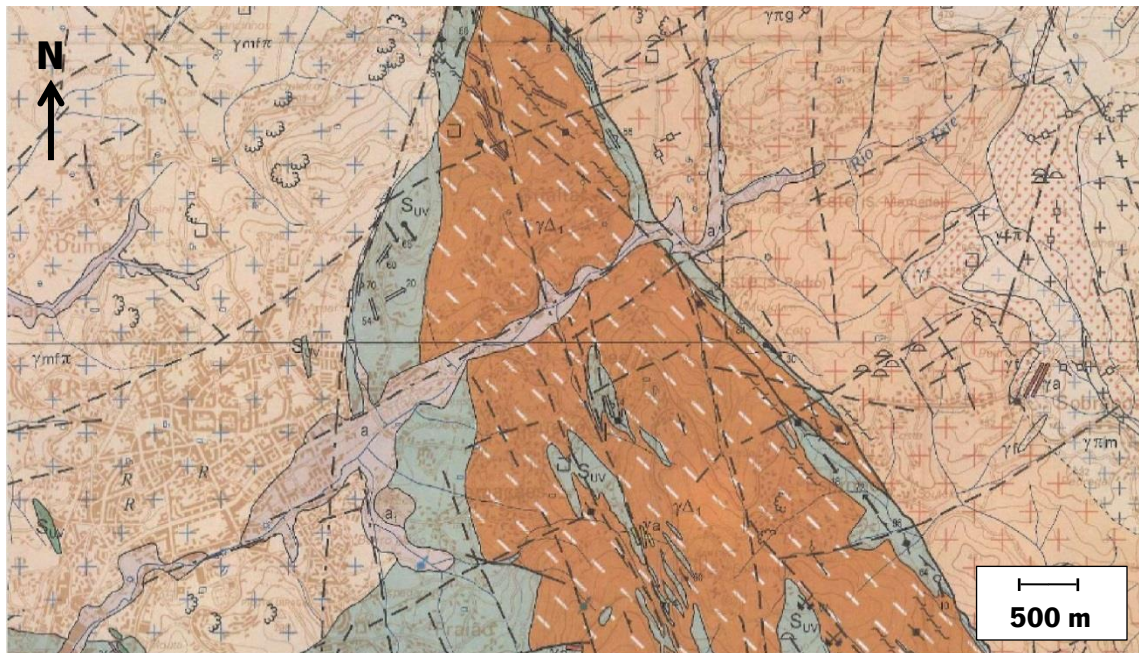
O granito do Sameiro apresenta estruturas magmáticas, marcadas pela orientação dos fenocristais de feldspato potássico e biotite, sendo a presença de enclaves microgranulares máficos dominante (Dias *et al.*, 2002).

O maciço de Braga é compósito, associando duas fácies graníticas distintas (Dias *et al.*, 1992; Dias & Leterrier, 1994): o granito de Braga que inclui abundantes enclaves microgranulares máficos e corpos hectométricos de composição gabróica a granodiorítica (gabronoritos, monzodioritos, quartzo-monzodioritos e granodioritos); o granito de Gonça que contém enclaves micáceos e metassedimentares, sendo rara a ocorrência de enclaves microgranulares máficos. O granito de Braga corresponde a um monzogranito/granodiorito biotítico, com rara moscovite, de grão médio a fino, e tendência porfirítica. Apresenta estruturas magmáticas (orientação preferencial dos fenocristais de feldspato-K e parcial da biotite) em conformidade com a fase F3. O granito de Gonça corresponde a monzogranito, biotítico-moscovítico, de grão fino. O granito de Celeirós é um monzogranito biotítico, porfiróide de grão grosseiro, com raros enclaves microgranulares máficos (Dias *et al.*, 1992; Dias & Leterrier, 1994)

O granito de Briteiros trata-se de um leucogranito de duas micas, de grão fino, que inclui abundantes enclaves micáceos (Dias *et al.*, 2010).

Ocorrem pequenas manchas de rochas metassedimentares do Paleozóico, as mais antigas aflorantes na região, concretamente a Formação Alóctone, denominada Unidade de Vila Nune, representada por xistos e metagrauvaques do Silúrico.

Os depósitos de cobertura correspondem a unidades atribuídas ao Pliocénico (Formação de Prado), ao Quaternário antigo (depósitos de terraços fluviais) e ao actual e Holocénico (depósitos fluviais não actuais e de solifluxão e vertente), (Gomes Vilela, 2009).



**Legenda:**

<p><b>Depósitos de Cobertura</b></p> <p>Actua e Holocénico</p> <ul style="list-style-type: none"> <li><span style="display: inline-block; width: 15px; height: 10px; background-color: #d3d3d3; border: 1px solid black; margin-right: 5px;"></span> Depósitos fluviais actuais</li> <li><span style="display: inline-block; width: 15px; height: 10px; background-color: #e0e0e0; border: 1px solid black; margin-right: 5px;"></span> Depósitos solifluxão e vertente (depósitos de cascalho/blocos e seixos angulosos)</li> </ul> <p><b>Metassedimentos do Paleozóico</b></p> <p>Méiocénico - Silúrio Inferior - Landoveriano</p> <ul style="list-style-type: none"> <li><span style="display: inline-block; width: 15px; height: 10px; background-color: #c0c0c0; border: 1px solid black; margin-right: 5px;"></span> Unidade de Vila Nune</li> <li><span style="display: inline-block; width: 15px; height: 10px; background-color: #a0a0a0; border: 1px solid black; margin-right: 5px;"></span> Micaxistos e migmatitos com níves de turmalinitos *</li> <li><span style="display: inline-block; width: 15px; height: 10px; background-color: #808080; border: 1px solid black; margin-right: 5px;"></span> Tufo vulcânicos (ácidos e intermédios **; intermédios a básicos skarnificados (anfíbolitos)***)</li> </ul> <p><b>Sinais Convencionais</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li><span style="display: inline-block; width: 15px; height: 10px; border: 1px solid black; margin-right: 5px;"></span> Pedreira</li> <li><span style="display: inline-block; width: 15px; border-bottom: 1px solid black; margin-right: 5px;"></span> Limite geológico</li> <li><span style="display: inline-block; width: 15px; border-bottom: 1px dashed black; margin-right: 5px;"></span> Falha / falha provável</li> </ul>	<p><b>Rochas Graníticas Hercínicas</b></p> <p>Tardi a Pós - Tectónicas relat. a F3</p> <ul style="list-style-type: none"> <li><span style="display: inline-block; width: 15px; height: 10px; background-color: #f0e68c; border: 1px solid black; margin-right: 5px;"></span> Leucogranito moscovítico-biotítico, de grão fino (Granito de Briteiros)</li> </ul> <p>Tarditectónicas relat. a F3</p> <p>Complexo granítico de Vila Nune</p> <ul style="list-style-type: none"> <li><span style="display: inline-block; width: 15px; height: 10px; background-color: #f0e68c; border: 1px solid black; margin-right: 5px;"></span> Monzogranito de duas micas, com tendência porfiróide, de grão fino (Granito de Gonça)</li> <li><span style="display: inline-block; width: 15px; height: 10px; background-color: #f0e68c; border: 1px solid black; margin-right: 5px;"></span> Monzogranito biotítico, com rara moscovite, tendência porfiróide, de grão médio a fino (Granito de Braga)</li> </ul> <p>Complexo granítico de Celorós</p> <ul style="list-style-type: none"> <li><span style="display: inline-block; width: 15px; height: 10px; background-color: #f0e68c; border: 1px solid black; margin-right: 5px;"></span> Monzogranito biotítico, com rara moscovite, porfiróide, de grão grosseiro (Granito de Celorós)</li> </ul> <p>Sintectónicas relat. a F3</p> <ul style="list-style-type: none"> <li><span style="display: inline-block; width: 15px; height: 10px; background-color: #d2691e; border: 1px solid black; margin-right: 5px;"></span> Granodiorito - monzogranito, biotítico, porfiróide, de grão médio, orientado com grandes cristais de feldspato potássico (Granito do Sameiro)</li> </ul>
---	---

**Figura 2-2** – Geologia simplificada do sector NW de Portugal (adaptado da Carta Geológica de Portugal, folha 5-D Braga, na escala 1: 50 000, Ferreira *et al.*, 2000).

### 2.3. Petrografia e mineralogia

Foi feita uma compilação dos dados petrográficos e mineralógicos, obtidos para os diferentes granitos referidos no presente trabalho. Os dados, métodos e técnicas anlíticas utilizados, presentes na tabela 2-1, encontram-se referidos em Dias *et al.* (1992).

**Tabela 2-1** - Características petrográficas dos granitóides de Braga (NW, Portugal). As composições modais, em percentagem (%), foram estimadas a partir da rocha total e da composição química dos minerais, (retirado de Dias *et al.*, 1992).

	<b>Sameiro</b>	<b>Celeirós</b>	<b>Braga</b>	<b>Gonça</b>	<b>Briteiros</b>
<b>Quartzo</b>	20,9 – 26,6	25,3 – 32,6	22,1 – 27,6	28,9 – 29,7	31,3 – 33,2
<b>Plagioclase</b>	33,9 – 35,7	21,6 – 29,9	27,8 – 35,8	27,3 – 32,2	24,0 – 29,4
<b>(% mol An)</b>	22,6 – 42,1	18,5 – 37,9	18,8 – 35,6	14,6 – 42,1	9,6 – 12,8
<b>Feldspato K</b>	18,2 – 26,8	28,6 – 32,4	21,8 – 31,2	21,9 – 28,7	21,7 – 25,5
<b>Biotite</b>	14,6 – 17,8	8,8 – 14,2	9,7 – 18,7	6,3 – 10,8	3,4 – 8,9
<b>Moscovite</b>	0 – 1,3	0 – 4,1	0 – 4,0	5,5 – 7,4	8,9 – 12,1
<b>Acessórios</b>	0,7 – 1,1	0,6 – 1,0	1,0 – 1,8	0,6 – 1,0	0,4 – 0,8

O granito do Sameiro apresenta a seguinte associação mineralógica: quartzo (abundância modal 20,9 – 26,6 %), Plagioclase (abundância modal 33,9 – 35,7 %), (% mol An 22,6 – 42,1 %), feldspato K (abundância modal 18,2 – 26,8 %), biotite (abundância modal 14,6 – 17,8 %), moscovite (abundância modal 0 – 1,3 %), acessórios (abundância modal 0,7 – 1,1 %), sendo eles zircão, monazite, apatite, ilmenite, ± allanite (Dias *et al.*, 2002).

O granito de Celeirós apresenta a seguinte associação mineralógica: quartzo (abundância modal 25,3 – 32,6 %), Plagioclase (abundância modal 21,6 – 29,9 %), (% mol An 18,5 – 37,9 %), feldspato K (abundância modal 28,6 – 32,4 %), biotite (abundância modal 8,8 – 14,2 %), moscovite (abundância modal 0 – 4,1 %), acessórios (abundância modal 0,6 – 1 %) (Dias *et al.*, 1992).

O granito de Braga apresenta a seguinte associação mineralógica: quartzo (abundância modal 22,1 – 27,6 %), Plagioclase (abundância modal 27,8 – 35,8 %), (% mol An 18,8 – 35,6 %), feldspato K (abundância modal 21,8 – 31,2 %), biotite (abundância modal 6,3 – 10,8 %), moscovite (abundância modal 5,5 – 7,4 %), acessórios (abundância modal 0,6 – 1 %) sendo eles apatite, zircão, ilmenite, monazite (Dias *et al.*, 2002).

O granito de Gonça apresenta a seguinte associação mineralógica: quartzo (abundância modal 28,9 – 29,7 %), Plagioclase (abundância modal 27,3 – 32,2 %), (% mol An 14,6 – 42,1 %), feldspato K (abundância modal 21,9 – 28,7 %), biotite (abundância modal 6,3 – 10,8 %), moscovite (abundância modal 5,5 – 7,4 %), acessórios (abundância modal 0,6 – 1 %) sendo eles apatite, zircão, ilmenite, monazite ± andalusite ± silimanite (Dias *et al.*, 2002).

O granito de Briteiros apresenta a seguinte associação mineralógica: quartzo (abundância modal 31,3 – 32,3 %), Plagioclase (abundância modal 24 – 29,4 %), (% mol An 9,6 – 12,8 %), feldspato K (abundância modal 21,7 – 25,5 %), biotite (abundância modal 3,4 – 8,9 %), moscovite (abundância modal 8,9 – 12,1 %), acessórios (abundância modal 0,4 – 0,8 %) (Dias *et al.*, 1992).

## 2.4. Geoquímica

Foi efetuada uma compilação de dados químicos (rocha total e fases minerais), obtidos para os granitos referidos no presente trabalho. Os dados, métodos e técnicas analíticas utilizados, presentes na Tabela 2-2, encontram-se referidos em Dias *et al.* (1992).

**Tabela 2-2** - Composições químicas médias dos diferentes granitóides de Braga (NW, Portugal) (Desvios padrão em itálico). Dados obtidos por ICP (C.R.P.G). Elementos principais (%) e elementos traço (ppm); Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: ferro total; Σ TR: Soma dos elementos de Terras-Raras (TR), (adaptado de Dias *et al.*, 1992).

	Sameiro	Celeirós	Braga	Gonça	Briteiros					
<b>SiO<sub>2</sub></b>	66,06	<i>1,32</i>	69,16	<i>1,48</i>	66,52	<i>1,47</i>	69,97	<i>0,53</i>	72,2	<i>0,98</i>
<b>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></b>	15,75	<i>0,44</i>	14,59	<i>0,56</i>	15,17	<i>0,38</i>	14,93	<i>0,19</i>	14,61	<i>0,18</i>
<b>Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub></b>	4,45	<i>0,21</i>	3,49	<i>0,42</i>	4,13	<i>0,49</i>	2,33	<i>0,17</i>	1,68	<i>0,4</i>
<b>MnO</b>	0,07	<i>0</i>	0,04	<i>0,01</i>	0,06	<i>0,01</i>	0,02	<i>0,01</i>	0,01	<i>0,01</i>
<b>MgO</b>	1,18	<i>0,09</i>	0,76	<i>0,15</i>	1,31	<i>0,24</i>	0,66	<i>0,13</i>	0,34	<i>0,13</i>
<b>CaO</b>	2,31	<i>0,14</i>	1,5	<i>0,27</i>	2,16	<i>0,35</i>	1,35	<i>0,15</i>	0,48	<i>0,12</i>
<b>Na<sub>2</sub>O</b>	3,15	<i>0,05</i>	2,94	<i>0,13</i>	3,05	<i>0,09</i>	3,11	<i>0,08</i>	3,02	<i>0,19</i>
<b>K<sub>2</sub>O</b>	4,86	<i>0,37</i>	5,38	<i>0,35</i>	4,94	<i>0,23</i>	4,88	<i>0,24</i>	5,22	<i>0,26</i>
<b>TiO<sub>2</sub></b>	0,58	<i>0,06</i>	0,57	<i>0,12</i>	0,83	<i>0,09</i>	0,43	<i>0,03</i>	0,19	<i>0,08</i>
<b>P<sub>2</sub>O<sub>5</sub></b>	0,31	<i>0,03</i>	0,33	<i>0,06</i>	0,35	<i>0,05</i>	0,29	<i>0,07</i>	0,4	<i>0,03</i>
<b>Total</b>	99,42		99,61		99,42		99,02		99,51	
<b>Ba</b>	1233	<i>204</i>	581	<i>163</i>	758	<i>85</i>	659	<i>71</i>	186	<i>45</i>
<b>Rb</b>	228	<i>11</i>	288	<i>31</i>	281	<i>33</i>	243	<i>28</i>	433	<i>21</i>
<b>Sr</b>	398	<i>46</i>	138	<i>27</i>	238	<i>34</i>	253	<i>60</i>	51	<i>8</i>
<b>Zr</b>	234	<i>15</i>	231	<i>44</i>	265	<i>42</i>	140	<i>24</i>	80	<i>27</i>
<b>Y</b>	30	<i>4</i>	23	<i>3</i>	26	<i>3</i>	10	<i>2</i>	8	<i>3</i>
<b>ΣTR</b>	429,5		234,3		295,4		165,5		110,9	

## 2.5. Radiação gama natural

As rochas apresentam diferentes concentrações em isótopos radioativos naturais, sendo os mais importantes do ponto de vista de radiação gama o  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ . A distribuição destes isótopos determina a taxa de exposição de radiação no solo.

Amaral *et al.* (1992), iniciaram um programa nacional de medições de radiação gama natural. A componente ionizante da radiação cósmica para as latitudes e altitudes Portuguesas foi considerada nos cálculos, e os valores das taxas de dose referem-se unicamente à componente de radiação gama Terrestre. Nos seus resultados, Amaral *et al.* (1992), afirmam que a média aritmética da taxa de dose gama absorvida no ar exterior para o distrito de Braga é de 152,2 nGy/h, com um intervalo entre 95,5 e 226,5 nGy/h; a média aritmética da taxa de dose gama absorvida no ar interior para o distrito de Braga é de 182,6 nGy/h; a dose efectiva anual exterior e interior é de 0,19 e 0,90 mSv/a, respectivamente.

Mais tarde, Amaral (2000) estabeleceu o primeiro Mapa Radiológico para a exposição da população portuguesa, à radiação gama natural. As análises no exterior mostraram que as regiões do norte do país apresentam taxas de exposição superiores às regiões no sul, e uma natureza geológica bastante diferente. Por exemplo, os distritos de Viana do Castelo, Braga, Porto, Viseu e Guarda, inseridos numa área granítica, apresentam taxas de dose bastante superiores, embora com um amplo intervalo entre si, relativamente àquelas medidas em Faro, Santarém e Setúbal, onde a natureza do solo é sedimentar (areias de aluvião e calcários), ou em Beja onde o solo se originou no gabro e no diorito. No mapa Radiológico Português elaborado por Amaral (2000), o concelho de Braga apresenta um taxa de dose superior a 90 nGy/h.

Amaral (2000) concluiu ainda que, para solos de origem intrusiva, as doses avaliadas estão dispersas por um grande intervalo, resultado da diferente composição química das rochas intrusivas, isto é, rochas superstauradas em sílica como o granito, granodiorito, tonalito; ou saturadas como o diorito e o gabro. A razão para estas diferenças reside na cristalização do magma, que começa com um alto ponto de fusão, formando-se silicatos ferromagnesianos e plagioclase cálcica, originando rochas sub-saturadas em sílica. O magma residual, enriquecido em sílica, origina minerais como a monazite e o zircão, que contêm os elementos radioativos naturais.

Os solos de origem metamórfica apresentam uma dose média, inferior à dos solos de origem intrusiva. Porém, as doses avaliadas, apresentam um intervalo semelhante aos solos de origem

intrusiva. A grande maioria dos locais estudados localiza-se no norte de Portugal e o metamorfismo de contacto, foi uma consequência da instalação de granitos, originando corneanas. Os xistos andaluzíticos e as corneanas, presentes em outras regiões resultam de ações dos granodioritos sobre os xistos. Na região do sul, as doses avaliadas são menores, porque o gnaisse metamorfozou os calcários e os dolomitos.

Para os solos de origem sedimentar foi encontrado intervalo pequeno para cada contribuição e a dose média é a menor entre os três tipos de solos estudados. Normalmente, os processos mecânicos não modificam a concentração dos constituintes principais e secundários na rocha. No entanto, os processos químicos podem causar a dissociação mineral e, em seguida, a adsorção de minerais acessórios contendo urânio e tório por minerais de argila, em arenitos e xistos. Os intervalos dos dados medidos e as contribuições de cada elemento, para a taxa de dose total estão representados na Tabela 2-3.

**Tabela 2-3** - Contribuições para a dose total, de cada elemento, para os três tipos de solos (nGy/h). Retirado de Amaral (2000).

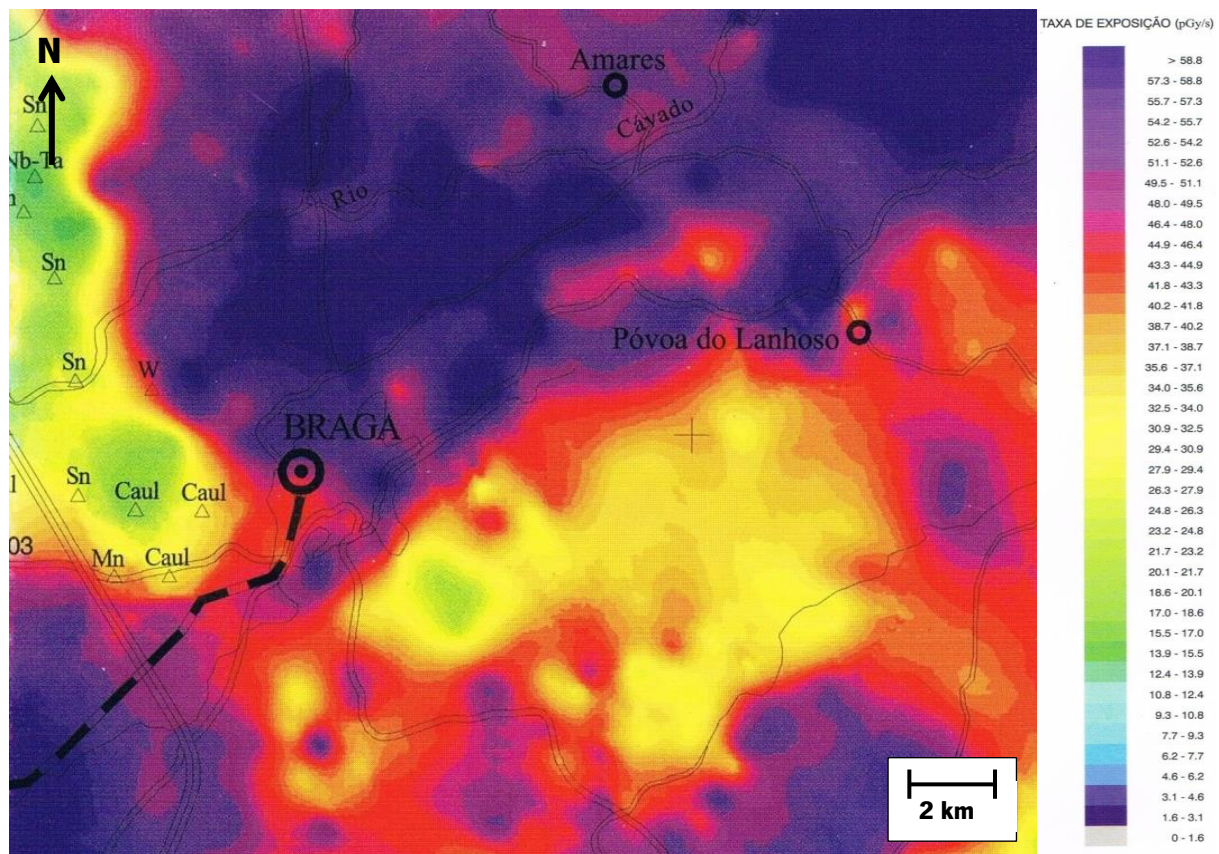
	<b>Tório</b>	<b>Urânio</b>	<b>Potássio</b>	<b>Total</b>
<b>Origem intrusiva</b>				
Média	67	37	43	147
Desvio padrão	29	14	14	50
Intervalo	4 - 132	4 - 64	3 - 69	11 - 241
<b>Origem sedimentar</b>				
Média	12	8	17	38
Desvio padrão	5	2	6	11
Intervalo	5 - 19	6 - 11	10 - 25	21 - 52
<b>Origem metamórfica</b>				
Média	46	25	31	102
Desvio padrão	36	20	11	64
Intervalo	12 - 102	4 - 56	14 - 43	30 - 196

Amaral (2000), afirma também que, em solos de origem intrusiva e metamórfica, existe uma maior contribuição dos elementos da série do tório para a dose absorvida, do que dos elementos da série do urânio e do potássio, os quais têm um peso semelhante em solos intrusivos. Em solos de origem sedimentar a contribuição do  $^{40}\text{K}$  é a mais importante, seguida pela série do tório e do urânio. As contribuições médias relativas, em %, dos elementos das diferentes séries, para a taxa de dose gama absorvida no ar exterior para os diferentes tipos de solo está presente na Tabela 2-4.

**Tabela 2-4** – Contribuições médias relativas, e respectivos desvios padrão, em %, dos elementos das diferentes séries, para a taxa de dose gama absorvida no ar exterior, para cada tipo de solo, (retirado de Amaral, 2000).

Origem do solo	Série do Th	Série do U	K
Intrusivo	45 % ± 7 %	25 % ± 6 %	30 % ± 5 %
Sedimentar	32 % ± 5 %	22 % ± 4 %	46 % ± 5 %
Metamórfico	42 % ± 8 %	22 % ± 9 %	36 % ± 13 %

Em 1997, o Laboratório Nacional de Energia e Geologia, em parceria com a Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA), lançou a Carta de Radiação Gama Natural, na escala 1: 200 000, constituída por quatro folhas (Porto, Trás-os-Montes, Beira Litoral e Alto Alentejo), editada pelo Instituto Geológico e Mineiro (IGM). A folha 1, na escala 1:200 000, correspondente à folha do Porto, está representada na Figura 2-3.



**Figura 2-3** - Extrato da Carta de Radiação Gama Natural, na escala 1: 200 000, folha 1 Porto, Torres *et al.* (1997).

O conhecimento desta grandeza é útil em domínios como: monitorização ambiental, na medida em que a taxa de exposição de radiação apresentada neste mapa, fornece um estado de referência para a identificação de zonas anómalas, e interpretação de observações obtidas em programas de monitorização radioactiva; cartografia geológica, na medida em que a taxa de exposição reflecte variações geológicas, o mapa evidencia algumas formações geológicas localizadas nesta adaptação da folha 1 (Porto); e prospecção mineira pois, os depósitos minerais, sendo concentrações anormalmente elevadas de substâncias úteis, estão geralmente associados a alterações no conteúdo em potássio, urânio e tório nas rochas.

Localizada numa região essencialmente granítica de idade Hercínica, a região de Braga, apresenta um intervalo de taxa de exposição entre 54 nGy/h e valores superiores a 211,68 nGy/h (Figura 2-3). A escala desta não permite uma análise mais detalhada do local de estudo em termos de comparação da radiação gama com as litologias, mas na perspectiva regional os metassedimentos tendem a corresponder a valores mais baixos de radiação gama.



### **3. MATERIAIS E MÉTODOS**

Este capítulo pretende apresentar os objetos de estudo e as técnicas utilizadas. Em termos de organização dos resultados obtidos consideram-se dois grupos: amostras de rocha colhidas no ambiente natural para ensaios laboratoriais e medições de campo realizadas no ambiente natural e no ambiente construído (neste último grupo incluem-se algumas medições em afloramentos remanescentes no ambiente construído). Esta divisão privilegia a separação laboratório/campo sobre a distinção ambiente natural /ambiente construído até porque há alguma sobreposição destes dois últimos.

#### **3.1. Amostras de rocha para estudos laboratoriais**

Para evitar alarmismos injustificados num tema que habitualmente promove preocupações, resultantes de ilações eventualmente exageradas com base num estudo necessariamente limitado em termos de tempo e recursos, não será referido o local preciso de amostragem.

Nos arredores imediatos da cidade de Braga, dentro da mancha cartografada como granito de Braga (Ferreira *et al.*, 2000) foram colhidas amostras de rocha tendo em vista a realização de vários estudos laboratoriais. Este local será referenciado por L0.

Colheram-se cinco amostras de granito com diferentes graus de alteração (essencialmente meteorização). A distinção dos diferentes graus de alteração foi realizada macroscopicamente, tendo em conta a coesão física e a cor.

É por demais conhecido que a meteorização promove uma diminuição da resistência física e esta foi avaliada de forma expedita e manual, escolhendo-se amostras com coesão física suficiente para permitir a realização de ensaios laboratoriais de tipo absorção de água (portanto amostras que não se desagregavam espontaneamente quando submersas em água).

As mudanças cromáticas (neste caso o amarelecimento do granito) também é um aspeto importante, sobretudo na identificação das fases menos alteradas, como é reconhecido em ISRM (1981), onde as mudanças cromáticas ("discolouration") são consideradas na distinção dos graus W1 e W2. Como refere Alves (1997), esta mudança é particularmente acentuada e indicadora das mudanças no meio poroso no caso do granito de Braga, um granito biotítico (o amarelecimento generalizado do granito resultará da alteração da biotite). Assim, considerou-se como termo menos

alterado a amostra acinzentada (correspondente ao que é popularmente designado por "granito azul") onde não foram detectadas evidências de amarelecimento.



**Figura 3-1** – Ilustração dos aspetos de campo da meteorização do granito de Braga: a) visão geral; b) pormenor de a). Pode ser vista a tonalidade cinzenta do granito considerado pouco alterado (sem evidências de amarelecimento em a), o início da meteorização ao longo das diáclases e, na porção superior (nomeadamente em b), a típica disjunção esferoidal com granito apresentando um amarelecimento generalizado.

### 3.2. Medições de campo

As medições de campo incidiram sobre o local onde foram colhidas as amostras de granito de Braga para análise laboratorial (L0) e em sete locais na cidade de Braga e seus arredores imediatos (que serão seguidamente referidos como L1 a L7 e sobre os quais serão apresentadas mais algumas informações). Em termos temporais as medições no local de colheita das amostras para estudos laboratoriais foram feitas posteriormente (2014) às medições nos sete locais com construções (realizada em 2013).

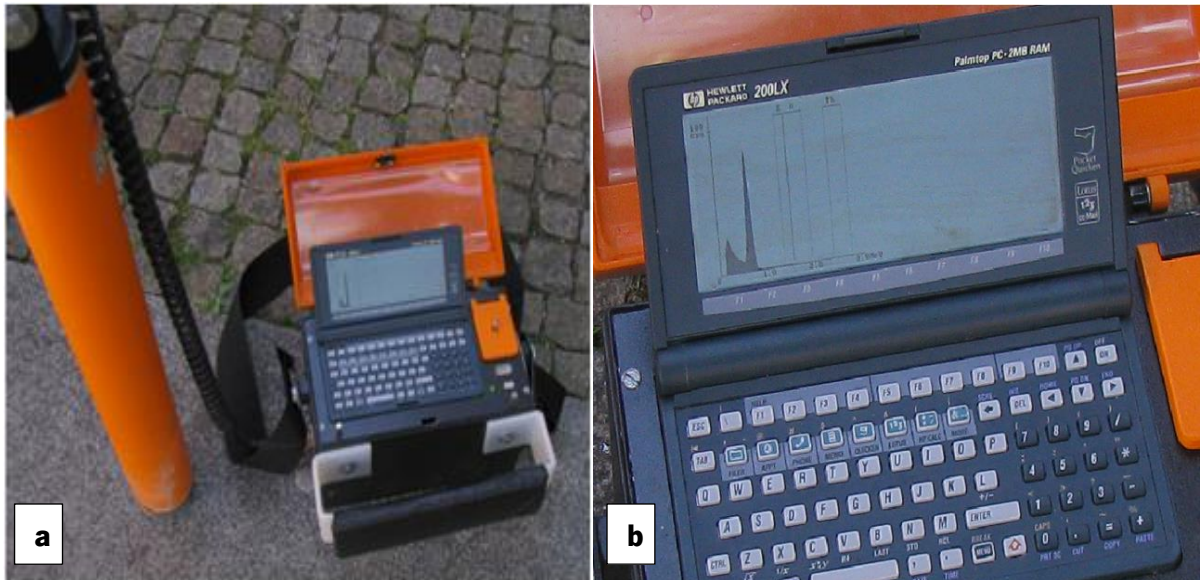
Nos locais L1 a L7 foram feitas medições no interior de construções e no exterior, incluindo medições em contacto directo com superfícies de materiais e de pequenos afloramentos de rochas (granito de Braga e de Sameiro). A descrição mais específica dos pontos das diferentes medições realizadas será apresentada em conjunto com os resultados obtidos no capítulo 5.

L1 localiza-se nas imediações da cidade de Braga, na margem sul do rio Este e em terrenos do granito do Sameiro. Neste local foram realizadas medições exteriores (incluindo medições em contacto com materiais de construção em pavimento e paredes e uma medição num afloramento de granito de Sameiro) e no interior de construções.

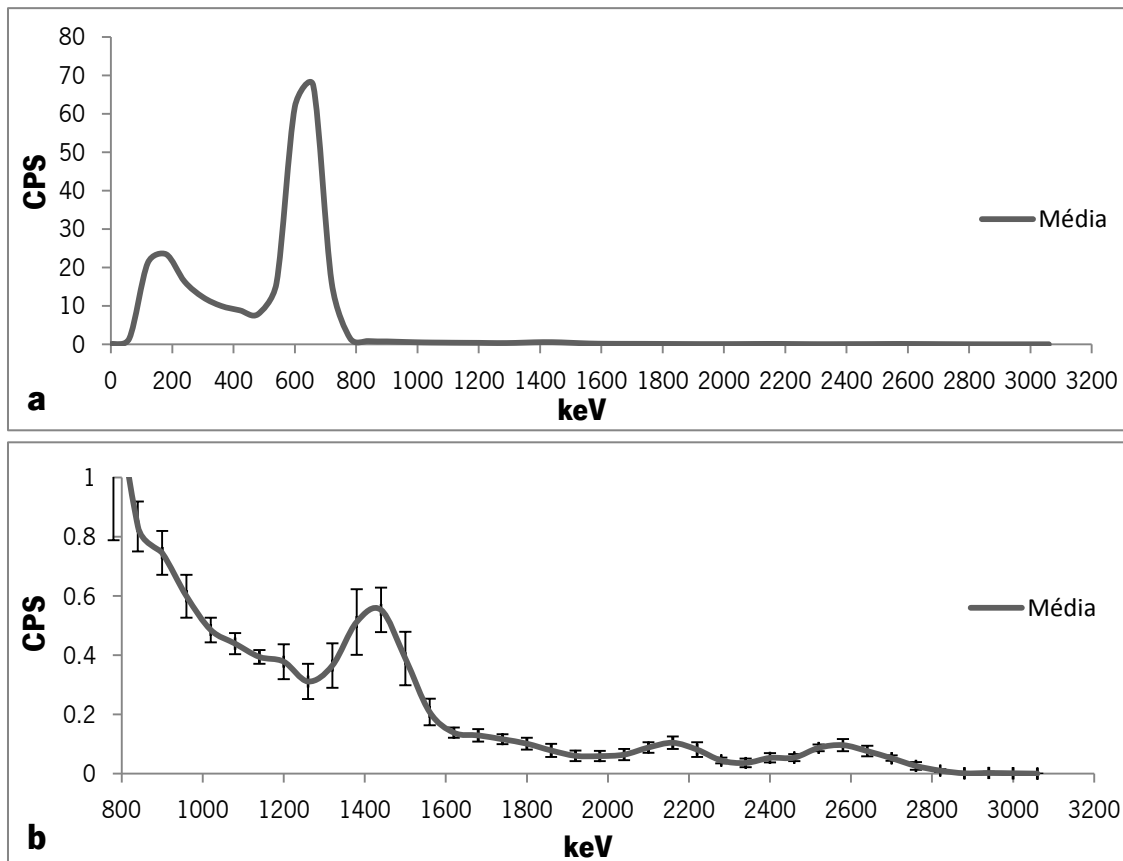
Os locais L2-L6 situam-se no centro histórico da cidade de Braga e cada um deles corresponde a uma única construção (mas podem corresponder a mais do que uma divisão ou andar como será referido seguidamente). Todas estas construções situam-se em terrenos cartografados como granito de Braga. L2 e L3 dizem respeito a duas construções graníticas com forma paralelepípedica rectangular, com dimensões semelhantes. No local L7, foi realizada uma medição a um metro de altura do solo da floresta, em terrenos metassedimentares.

As medições de campo foram realizadas com um Espectrómetro de raios gama, modelo GRS-200/BL, da GF Instruments (Figura 3-2). A sonda apresenta um detetor de BGO ( $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ ) DE 2"X2" com um fotomultiplicador blindado, capaz de medir um intervalo de energia até 3 MeV (Figura 3-3). As estimativas de alguns conteúdos de alguns radionuclídeos foram obtidas através deste equipamento. A concentração de K é directamente estimada e transformada em percentagem de massa a partir do pico de energia aos 1.461 MeV. A determinação de U é baseada na deteção do  $^{214}\text{Bi}$  (um isótopo pós Rn, da cadeia de desintegração do  $^{238}\text{U}$ ) após a medição do pico de energia aos 1.764 MeV e assumindo em equilíbrio secular na cadeia de decaimento de modo a obter a concentração de U em

ppm (eU – urânio equivalente). O conteúdo de Th, em ppm (eTh - tório equivalente) é indiretamente medido através do  $^{208}\text{Tl}$  (pico de energia aos 2.615 MeV), pertencente à série de decaimento do  $^{232}\text{Th}$ . A taxa de dose gama absorvida é calculada automaticamente pelo espectrômetro, considerando toda a contagem espectral (considerando assim outras possíveis fontes de radioatividade como o  $^{137}\text{Cs}$  e o  $^{60}\text{Co}$ ) em nGy/h.



**Figura 3-2** - (a) Equipamento usado para a realização das medições de radiação gama no campo; (b) detalhe do equipamento em (a).



**Figura 3-3** – (a) Exemplo de espectro de medição de radiação gama; (b) detalhe de (a). CPS – contagens por segundo; keV – quilo electrões volt.

### 3.3. Técnicas

Nesta secção serão apresentadas as técnicas e métodos laboratoriais e de campo, utilizadas na realização deste trabalho. As amostras de material rochoso colhidas, com diferentes graus de alteração, foram sujeitas a um processo de tratamento laboratorial, recorrendo a um pequeno número de metodologias/técnicas distintas, entre as quais: absorção de água à pressão atmosférica, microscopia eletrónica de varrimento, espectrometria -  $\gamma$  e ICP-MS. As medições radiométricas de campo, isto é, as medições “in situ”, foram realizadas, utilizando um espectrómetro de raios gama, o qual estima o conteúdo de alguns radionuclídeos e a taxa de dose gama absorvida, em nGy/h.

#### 3.3.1. Absorção de água

Com o objetivo de estabelecer uma ordem do grau de alteração, das amostras de granitos da pedra, que confirmasse a avaliação macroscópica foram determinados os coeficientes de absorção

de água à pressão atmosférica ( $A_b$ ) para cada amostra. O teste foi realizado no Departamento de Ciências da Terra, da Universidade do Minho.

Para assegurar a completa remoção da humidade presente nas amostras rochosas, estas foram sujeitas a um processo de secagem. As amostras foram secas, na estufa, a uma temperatura controlada de 70 °C, durante cerca de 48 horas. A temperatura da secagem foi controlada por um sistema de climatização instalado na estufa, no laboratório. Depois de secas, as amostras foram pesadas com uma precisão de 0.01 g ( $m_d$ ).

Para a determinação do coeficiente de absorção de água à pressão atmosférica, as amostras foram deixadas completamente submersas em água destilada, num recipiente apropriado. Cada amostra ficou espaçada das amostras vizinhas, em cerca de 15 mm. A massa da amostra saturada ( $m_s$ ) foi medida após 72 horas. Os coeficientes de absorção de água à pressão atmosférica para cada amostra foram calculados, usando a seguinte equação:

$$A_b = \frac{m_s - m_d}{m_d} \times 100 \quad [\text{eq. 3-1}]$$

### **3.3.2. Microscópio Eletrónico de Varrimento**

Foram realizadas análises no Microscópio Eletrónico de Varrimento no Centro de Materiais da Universidade do Porto (CEMUP), utilizando um Microscópio Electrónico de Varrimento ambiental, de alta resolução (Schottky), X FEI Quanta 400FEG ESEM / EDAX Genesis X4M com microanálise por Raios X (EDS) e observações em eletrões secundários e retrodifundidos. Estas análises serviram essencialmente para:

- Ilustrar a presença de fases primárias com elementos radioativos;
- Comparar as texturas de amostras com diferentes graus de alteração.

### **3.3.3. Espectrometria – $\gamma$**

Com o objetivo de determinar as atividades específicas do  $^{238}\text{U}$  ( $^{226}\text{Ra}$ ), do  $^{235}\text{U}$ , do  $^{232}\text{Th}$  e do  $^{40}\text{K}$ , nas amostras de granito colhidas, recorreu-se ao método de espectrometria –  $\gamma$ , usando um detetor

HPGe. As análises foram realizadas Centro de Investigación, Tecnología e Innovación, da Universidade de Sevilha, Espanha.

Todas as amostras foram esmagadas sob a forma de um pó fino. As análises das amostras foram realizadas utilizando um detetor de germânio semiconductor, do tipo coaxial, da marca CANBERRA, modelo GR6022. Este detetor de radiação gama encontra-se dentro de um escudo de chumbo, de baixa atividade, com 10 cm de espessura, ligado a um sistema de redução baseado no fundo de um detetor de cintilações plástico. As suas principais características são uma eficiência relativa de 60 %, e uma resolução de 1,05 keV e 2,2 keV para a energia de 122 keV e 1332 keV, respetivamente. A medição de emissões gama das amostras, introduzidas nas respetivas placas de petri de polipropileno e devidamente seladas, é uma técnica não destrutiva que permite analisar a concentração ativa de radioisótopos naturais. A atividade final da amostra é calculada após a eficiência de calibração, corrigida por auto-absorção e pela soma da coincidência da geometria de contagem utilizando a simulação de Monte Carlo com o GEANT4 e os códigos LABSOCS.

#### **3.3.4. ICP-MS**

A espectrometria de massa com um plasma indutivamente acoplado (ICP-MS) é uma das técnicas mais poderosas para a análise e quantificação de elementos traço em amostras sólidas e líquidas. A concentração de urânio e tório foram medidas usando um instrumento ICP-MS Thermo Element 2, de alta resolução, através de uma digestão ácida.

#### **3.3.5. Índices de concentração de atividade**

Um dos parâmetros de avaliação da perigosidade da radiação gama, referido em várias propostas de regulamentação (ver capítulo 1) é o índice de concentração de atividade (*activity concentration index*) que resulta da divisão dos resultados das medições das atividades específicas dos isótopos por certos fatores de referência (ver Markkanen, 1995), como é ilustrado na equação [3-2].

$$I_{\gamma} = \sum \frac{C(i)}{Ref(i)} \quad [eq. 3-2]$$

Em que  $C(i)$  é a concentração do isótopo "i" sob a forma de atividade específica (Bq/kg) na amostra em estudo e  $Ref(i)$  é um certo nível de atividade específica para esse isótopo (também em Bq/kg).

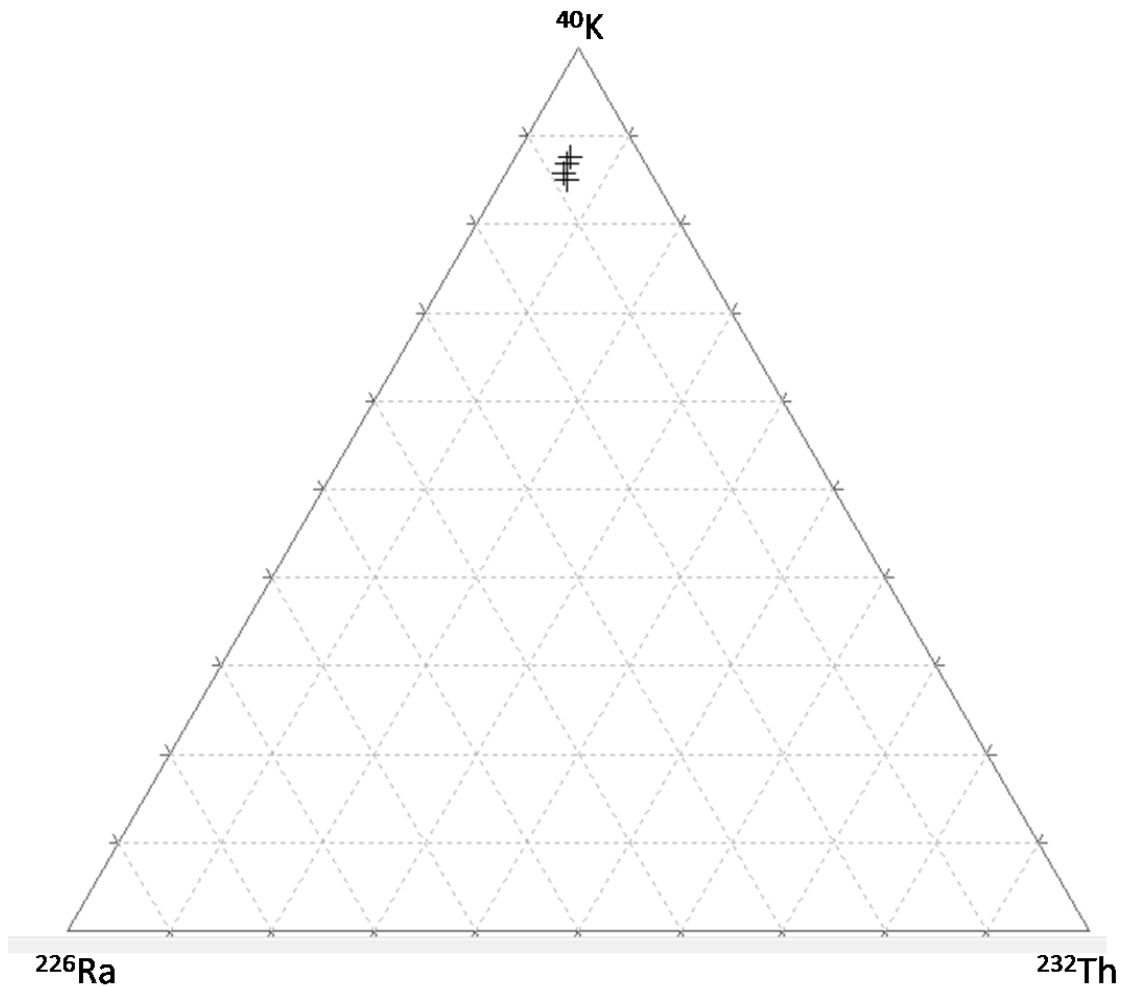
Markkanen (1995) refere quatro tipos de índices para materiais em que variam os valores de referência nos denominadores (de acordo com a previsão do tempo de exposição dos seres humanos a esses materiais) e também os isótopos considerados (pela inclusão ou não do  $^{137}\text{Cs}$ ) que estão sumariados na Tabela 3-1.

**Tabela 3-1** - Fatores de referência (atividade específica em Bq/kg) utilizados como denominadores no cálculo do índice de concentração de atividade indicado na equação [3-2], (adaptado de Markkanen, 1995).

Uso previsto (índice)	Atividade específica de referência (Bq/kg)			
	$^{226}\text{Ra}$	$^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$	$^{137}\text{Cs}$
Construção ( $I_1$ )	300	200	3000	-
Ruas e parques infantis ( $I_2$ )	700	500	8000	2000
Material para aterro ( $I_3$ )	2000	1500	20000	5000
Manuseamento de cinzas de turfa ( $I_4$ )	4000	3000	50000	10000

Na Figura 3-4 é apresentada a projeção das relações entre os fatores de referência para os isótopos de interesse no presente trabalho ( $^{40}\text{K}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{232}\text{Th}$ ) que mostra que estes fatores sendo numericamente diferentes (Tabela 3-1), apresentam proporções entre si muito próximas.





**Figura 3-4** - Projeção dos fatores de referência (em Bq/kg), encontrados em Markkanen (1995) para o cálculo de valores de índice de concentração de atividades em função do uso previsto para os materiais, apresentados na Tabela 3-1.

### 3.3.6. Método de atividade do rádio equivalente ( $Ra_{eq}$ )

Beretka e Mathew (1985), propuseram um critério para limitar a radioatividade em materiais de construção, baseados na definição da atividade equivalente do rádio ( $Ra_{eq}$ ), a qual continua a ser usada por vários autores. O  $Ra_{eq}$  é definido como a soma ponderada (equação [3-3]) das concentrações de atividade de do  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e do  $^{40}\text{K}$  ( $C_{\text{Ra}}$ ,  $C_{\text{Th}}$  e  $C_{\text{K}}$  abaixo representados)

$$Ra_{eq} = C_{\text{Ra}} + 1.43C_{\text{Th}} + 0.077C_{\text{K}} \leq 370 \text{ Bq/kg} \quad [\text{eq. 3-3}]$$

Esta definição foi baseada na avaliação dos autores de que 370 Bq/kg de  $^{226}\text{Ra}$ , 260 Bq/kg de  $^{232}\text{Th}$  e 4810 Bq/kg de  $^{40}\text{K}$  (na altura 10, 7 e 30 Pci/g, respetivamente) produziriam a mesma taxa de dose gama efetiva, estimada em 1,5 mSv/a, correspondendo para este espetro de energia cerca de 1 mSv/a. A fim de limitar a dose gama dos materiais de construção para este valor, a  $Ra_{eq}$  deve ser igual ou inferior a 370 Bq/kg. Esta condição também pode se expressa pelo limite indicado na equação [3-4].

$$Ra_{eq} = \frac{C_{Ra}}{10} + \frac{C_{Th}}{7} + \frac{C_K}{130} \leq 37 \text{ Bq/kg} \quad [\text{eq. 3-4}]$$

Os valores máximos da atividade de  $Ra_{eq}$  recomendados para materiais de construção estão sumarizados na Tabela 3-2 (Sonkawadea, 2008).

**Tabela 3-2** – Limites recomendados, em Bq/kg, para o  $Ra_{eq}$  em materiais de construção, (retirado de Sonkawadea, 2008).

<b><math>Ra_{eq}</math> (Bq/kg)</b>	<b>Classe</b>	<b>Recomendação</b>
<b>&lt; 370</b>	1	Bom para casas
<b>370-740</b>	2	Bom para indústrias
<b>740-2200</b>	3	Bom para estradas e pontes
<b>2200-3700</b>	4	Bom para fundações de edifícios não habitacionais
<b>&gt; 3700</b>	5	Não pode ser usado em qualquer tipo de construção

### 3.3.7. Dose equivalente anual gonadal (**AGED** – Annual gonadal equivalente dose)

As gónadas, a medula óssea ativa e as células da superfície dos ossos são considerados órgãos de interesse (UNSCEAR, 1988). A dose equivalente anual gonadal (utilizar-se-á o acrónimo *AGED* das iniciais em inglês (*Annual gonadal equivalent dose*)) para um residente de uma casa construída usando materiais com uma atividade específica de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  é calculada usando a seguinte fórmula:

$$AGED (\mu\text{Sv/a}) = 3.09C_{Ra} + 4.18C_{Th} + 0.314C_K \quad [\text{eq. 3-5}]$$

Este modelo é considerado para uma casa típica, com paredes de espessura infinita, o que torna possível a comparação da AGED de uma casa contendo concentrações de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  iguais à

média mundial do solo (25, 25, e 370 Bq/kg, respetivamente) com os valores obtidos dado um determinado material (Arafa, 2004).

### 3.3.8. Índices de perigo externo e interno ( $H_{ex}$ e $H_{in}$ )

O índice de perigo externo ( $H_{ex}$ ) é uma avaliação do perigo da radiação gama natural. O principal objetivo é limitar a dose externa de radiação gama proveniente de materiais de construção a 1 mSv/ano. O  $H_{ex}$  deve ser inferior a uma unidade, com o intuito de manter o perigo de radiação desprezível.

Em adição ao  $H_{ex}$ , o radão e os seus produtos de curta-vida, também são perigosos para os órgãos respiratórios. O índice de perigo interno ( $H_{in}$ ) deve ser inferior a uma unidade, a fim de manter o perigo de radiação desprezível, e proporcionar níveis seguros de radão e seus produtos de decaimento, para os órgãos respiratórios dos moradores nas suas casas.

O  $H_{ex}$  e o  $H_{in}$  foram determinados através das fórmulas seguintes:

$$H_{ex} = \frac{A_{Ra}}{370} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \quad [\text{eq. 3-6}]$$

$$H_{in} = \frac{A_{Ra}}{185} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \quad [\text{eq. 3-7}]$$

onde  $A_{Ra}$ ,  $A_{Th}$  e  $A_K$  são as atividades específicas do  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e do  $^{40}\text{K}$ , respetivamente, em Bq/kg (Huda, 2011).

Uma estimativa da percentagem de risco associado ao radão ( $H_{R\%}$ ) pode ser calculada com base na seguinte equação:

$$H_{R\%} = 100 (H_{in}/H_{ex} - 1) \quad [\text{eq. 3-8}]$$

a qual é baseada na diferença entre os índices  $H_{ex}$  e  $H_{in}$ , explicando que porção do perigo é devida ao decaimento alfa do radão e dos seus filhos, no cálculo do  $H_{in}$ , estando o seu valor relacionado com a atividade específica do  $^{226}\text{Ra}$  (diferença entre o  $H_{ex}$  e o  $H_{in}$ ). O cálculo do  $H_{in}$  tem em consideração que o  $^{226}\text{Ra}$  decai para o  $^{222}\text{Rn}$ , que pode acumular-se no interior e aumentar o perigo de radiação, pelo que

na equação do  $H_{in}$ , o denominador da atividade específica do  $^{226}\text{Ra}$ , foi diminuído de 370 Bq/kg, para 185 Bq/kg (Krieger, 1981). Esta estimativa negligência outros fatores, como padrões de fluxo de ar, frequência de trocas de ar e porosidade dos materiais de construção (Beretka e Mathew, 1985). Sendo assim, o valor de  $H_{R\%}$  não representa um valor correto da exalação de radão pelo material, pois este depende de outros fatores como o fator de emanação, o coeficiente de difusão de gás, a densidade, a porosidade e a permeabilidade do material, para além do seu conteúdo em  $^{226}\text{Ra}$ .

### 3.4. Avaliação indireta da taxa de dose gama externa absorvida

Como discutido no capítulo 1, a transformação das atividades específicas em taxa de dose absorvida utiliza fatores que dependem de uma série de pressupostos dependentes dos modelos adotados. Os resultados de quatro diferentes cálculos recolhidos em Markkanen (1995) e UNSCEAR (2000) para o caso de locais exteriores são apresentados na Tabela 3-3.

**Tabela 3-3** - Fatores de conversão de atividade específica (Bq/kg) para taxa de dose absorvida (nG/h) no ar exterior, admitindo uma distribuição uniforme de radionuclídeos no solo, (retirados de UNSCEAR, 2000 e de Markkanen, 1995).

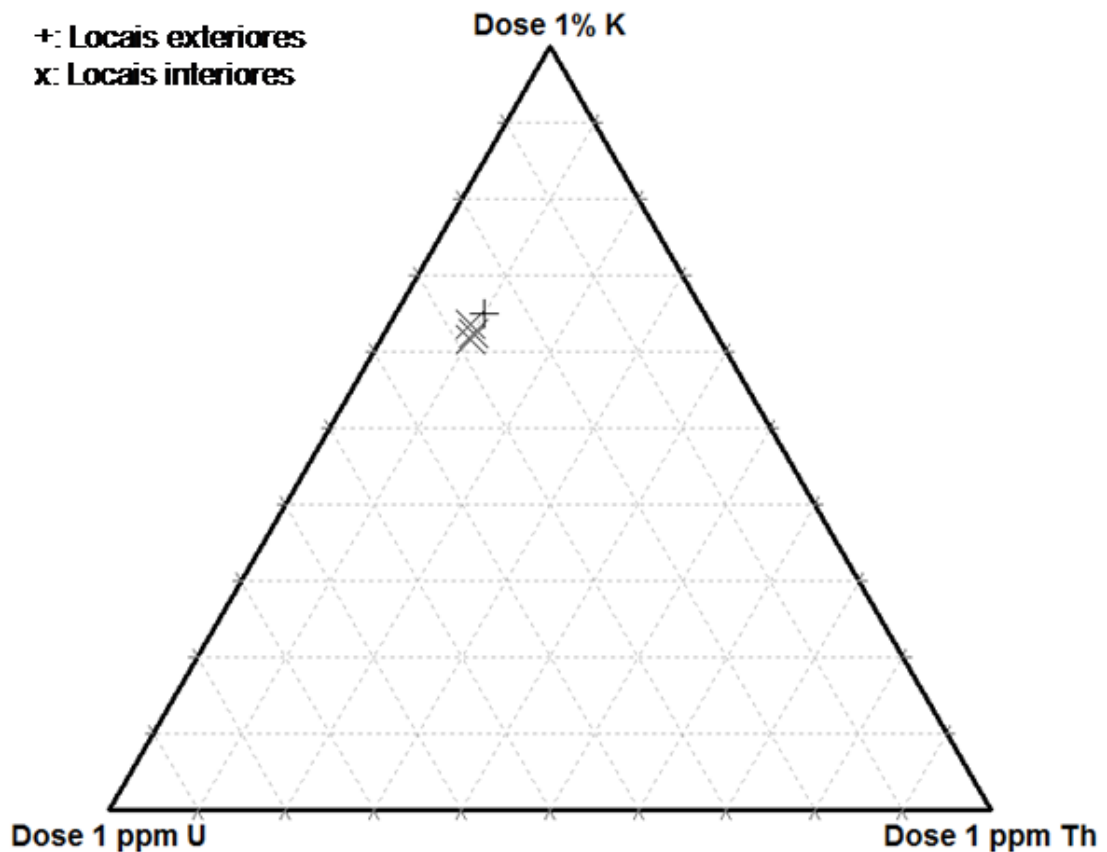
Referência	U	Th	K	U/Th	U/K	Th/K
Markkanen (1995)	0,470	0,572	0,0421	0,8	11,2	13,6
Beck 1972, citado em Markkanen (1995)	0,430	0,666	0,0422	0,6	10,2	15,8
Saito 1995 citado em Markkanen (1995)	0,463	0,604	0,0417	0,8	11,1	14,5
UNSCEAR (2000)	0,462	0,604	0,0417	0,8	11,1	14,5

De modo a prever a exposição da população à radiação gama no interior, devido à radioatividade natural em materiais de construção, vários modelos referidos como modelos de quarto, têm sido desenvolvidos nos últimos 20 anos. Tais modelos tornam possível calcular a taxa de dose absorvida no ar interior, devido à radiação gama, a partir da concentração das actividades do  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e do  $^{40}\text{K}$  nos materiais de construção. Os resultados dos modelos principais estão disponíveis na literatura e os seus parâmetros estão sumarizados na Tabela 3-4.

**Tabela 3-4** - Fatores de conversão de atividade específica (Bq/kg) para taxa de dose absorvida (nGy/h) no ar interior, considerando um quarto modelo.

<b>Referência</b>	<b>U</b>	<b>Th</b>	<b>K</b>	<b>U/Th</b>	<b>U/K</b>	<b>Th/K</b>
Markkanen	0,908	1,06	0,0767	0,9	11,8	13,8
Koblinger 1978 citado em Markkanen (1995)	0,922	1,02	0,0779	0,9	10,8	13,1
Stranden 1979 citado em Markkanen (1995)	0,914	1,1	0,0776	0,8	11,8	14,2
Mustonen 1985 citado em Markkanen (1995)	0,922	1,1	0,0806	0,8	11,4	13,6
Manic <i>et al.</i> (2012)	0,76	0,91	0,07	0,8	10,9	13,0

Como é observado nas tabelas anteriores, as relações entre os fatores para as atividades dos diferentes isótopos considerados são semelhantes. Isto fica evidente na Figura 3-5, que apresenta a projeção da taxa de dose absorvida resultante de teores ponderais unitários (1% K e 1 ppm U e Th) calculados com base nos fatores indicados em IAEA (2003) para a transformação de teores ponderais em Bq/kg.



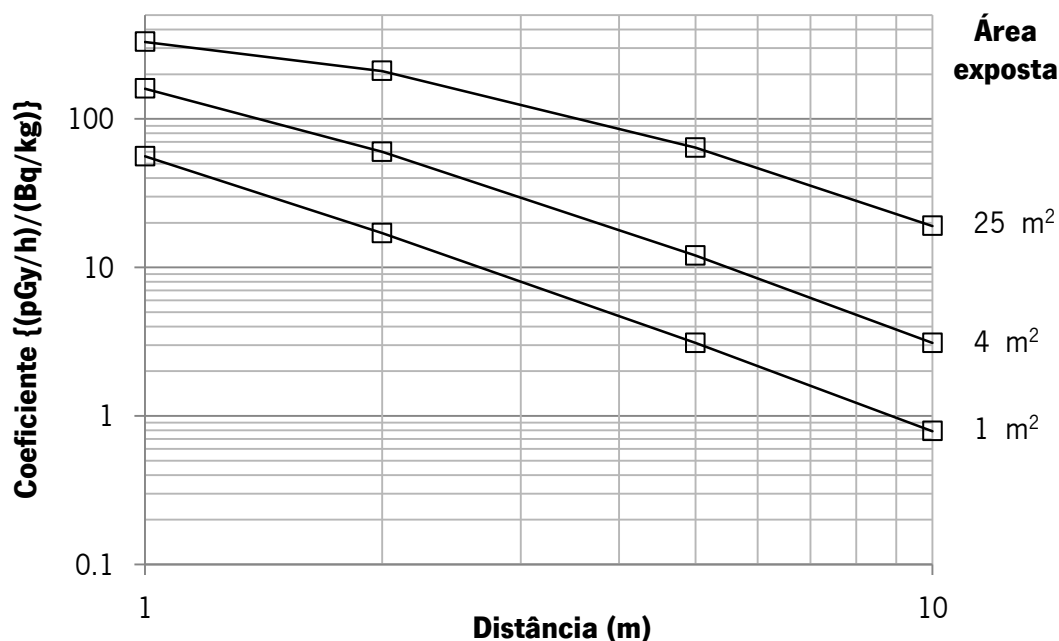
**Figura 3-5** - Projeção das doses relativas a 1% K, 1 ppm U e 1 ppm Th com base nos fatores indicados em IAEA (2003) para a transformação de teores ponderais em Bq/kg e nos fatores de transformação de Bq/kg, para nGy/h, apresentados nas Tabelas 3-3 e 3-4.

Todos estes modelos assumem um equilíbrio radioativo nas cadeias do  $^{238}\text{U}$  e do  $^{232}\text{Th}$ , embora seja conhecido que o radão (e o tórão) escapam das paredes, e geralmente não há um equilíbrio geral nas cadeias. Stranden, numa publicação de 1979 citada por Risica *et al.* (2001), refere que uma forte exalação do radão, pode ser a causa de uma sobrestimação dos modelos de até 20%.

Outros parâmetros como as características geométricas e a massa volúmica dos materiais podem também afetar os valores de taxa de dose absorvida para um determinado conjunto de valores de atividade específica. Risica *et al.* (2001) citam um estudo de Koblinger em 1978, onde este autor defende uma diminuição da variação da taxa de dose específica, associada à variação da posição na sala e à sua dimensão. Estes autores propõem uma grande variação associada à espessura e densidade das paredes.

Markkanen (1995) calcula vários fatores de conversão de atividade específica em taxa de dose absorvida para uma pilha de material em função da distância à pilha de material e da dimensão da pilha de material. Na Figura 3-6 são apresentados os valores desses coeficientes para o  $^{226}\text{Ra}$

apresentados por este autor. É visível que o efeito do aumento da distância diminui com o aumento da área de exposição, até ao caso extremo em que se considera uma área de exposição infinita (nesse caso o coeficiente não muda com a distância). Também é visível que com o aumento da distância o efeito do aumento da área de exposição é maior.



**Figura 3-6** - Coeficientes de transformação de atividade específica em taxa de dose absorvida para o <sup>226</sup>Ra considerando uma pilha de material com uma determinada área exposta. A utilização da escala logarítmica permite a comparação de proporções.

Estes efeitos também podem ser vistos nos coeficientes que Markkanen (1995) publica para transformação de atividade específica em taxa de dose absorvida para as diferentes paredes do quarto com dimensões (em m) 12 x 7 x 2,8. Os valores desses coeficientes são maiores para o teto e chão que apresentam maior área e estão mais próximos do ponto para o qual são calculados os referidos coeficientes.

As variações de massa volúmica dos materiais implicam variação da massa (logo da quantidade de isótopos) por unidade de volume (logo por área exposta para uma determinada espessura). Isso é visível nos coeficientes apresentados por Markkanen (1995) para transformação da atividade específica em taxa de dose absorvida numa estrutura com dimensões (em m) iguais a 12 x 7 x 2,8 e para diferentes valores de "massa específica de material de parede" (correspondente ao produto da massa volúmica do material pela espessura e que será aqui designada por massa por unidade de área), sendo

assim possível comparar os resultados de taxa de dose absorvida que serão obtidos para materiais com determinadas atividades específicas variando a massa volúmica e/ou a espessura.

Risica *et al.* (2001), elaboraram uma análise detalhada da sensibilidade do modelo de Markkanen (Markkanen, 1995) em relação a estes parâmetros, sendo utilizados os valores médios de energia gama dos radionuclídeos do  $^{226}\text{Ra}$  e do  $^{232}\text{Th}$ , assim como os fatores de conversão indicados neste autor. O modelo de Markkanen assume um quarto com as dimensões  $5 \times 4 \times 2,8 \text{ m}^3$ ; paredes, chão e teto com uma espessura de 0.20 m; e densidade  $2320 \text{ kg/m}^3$ . Este modelo tem como pressupostos uma concentração activa unitária do U, Th e do K. O efeito da variação da taxa de dose absorvida a 1 m de altura, tendo em conta a posição no quarto, o tamanho do quarto, a espessura e densidade das paredes, chão e tecto foi analisada. A presença de paredes e portas, embora não consideradas no modelo de Markkanen, foi também analisada. Os resultados deste autor estão sumariados na Tabela 3-5.



**Tabela 3-5** - Efeito das características do quarto na dose absorvida de acordo com o estudo de Risica *et al.* (2001) baseado no modelo de quarto padrão de Markkanen (1995) com dimensões (m) iguais a 4 x 5 x 2,8, espessuras de teto, chão e parede iguais a 0,2 m e materiais com densidade igual a 2320 kg/m<sup>3</sup> (referido nesta tabela por QPM) com exceção da avaliação do efeito da presença de abertura (ver nota de fim de tabela). Algumas das variações indicadas são estimadas a partir dos gráficos apresentadas em Risica *et al.* (2001).

<b>Caraterística do quarto</b>	<b>Efeito na dose</b>
Volume	Diminuição da dose próxima de 3 % para um volume igual a 20 % do QPM. Aumento da dose em 6 % para um volume 5 vezes superior ao QPM.
Espessura dos limites (paredes, tecto, chão)	Diminuição da dose em perto de 30 % para espessura igual a 1/4 da espessura do QPM. Aumento até perto de 6 % para espessura igual a 0,4 m, ou seja, o dobro da espessura do QPM (com estabilização do efeito da espessura a partir desse valor).
Densidade	Diminuição algo superior a 30 % no caso de diminuição da densidade de todos os elementos em 57 % e perto de metade disso com a mesma diminuição da densidade considerando separadamente as superfícies verticais e as superfícies horizontais. Aumento até perto de 7 % para uma densidade superior ao valor considerado no QPM em perto de 25 % e perto de metade disso com a mesma diminuição da densidade considerando separadamente as superfícies verticais e as superfícies horizontais. (É visível que a variação da dose no sentido de diminuição da densidade em relação ao valor do QPM é mais acentuado do que a variação no sentido de aumento da densidade).
Presença de abertura*	Diminuição de aproximadamente 6 % no caso da presença de uma abertura (porta) com dimensões (m) iguais a 1,5 x 2 (aproximadamente 3 % da área de superfície)

\* Neste caso os autores consideraram um quarto com 5,4 x 4.8 x 3 m<sup>3</sup>, três paredes com espessuras iguais a 0,8 m e uma parede com 0,2 m construídas com um tufo com densidade igual a 1800 kg/m<sup>3</sup> e atividade específica igual a 200 Bq/kg para <sup>226</sup>Ra, 400 Bq/kg para <sup>232</sup>Th e 1000 Bq/kg para <sup>40</sup>K.

Risica *et al.* (2001) modelaram também o efeito da posição em relação ao centro do quarto, referindo um aumento da dose com a diminuição da distância às paredes mais longas (até 10% para distâncias iguais ou superiores a 1 m).

Em termos de avaliação dos materiais pretende-se avaliar a contribuição em excesso resultante desses materiais (em relação à situação em que os materiais não são utilizados) pelo que para efeitos de avaliação da dose por um determinado período de tempo deve ser retirada a dose do fundo regional (ver Markkanen, 1995). Em função dos resultados obtidos serão considerados vários cenários para a contribuição do fundo regional no capítulo 4.

### 3.5. Dose efetiva externa

Como referido no capítulo 1, para efeitos radiológicos a dose absorvida é transformada em dose efetiva, multiplicando os valores em Gy por fatores de transformação. Para esse fim, foi considerado neste trabalho o fator habitualmente considerado (por exemplo Markkanen, 1995) de 0,7 (a dose efetiva resulta da multiplicação dos valores de dose absorvida por este fator) embora que, para crianças e bebés são propostos outros fatores (UNSCEAR, 2000). Em termos de avaliação dos materiais considera-se a contribuição em excesso para a dose absorvida (ver secção anterior).

A perspetiva habitual é multiplicar ainda este valor pelo fator de ocupação que corresponderá ao tempo em que os materiais poderão incidir sobre as pessoas. O resultado é confrontado com determinados limites correspondentes à dose efetiva durante um ano. UNSCEAR (2000) considera fatores iguais a 0,8 para o interior e 0,2 para o exterior. Markkanen (1995) apresenta várias estimativas de tempo de exposição e de limites que são resumidos na Tabela 3-6.

**Tabela 3-6** - Tempo de exposição, fatores de ocupação e limites de dose efetiva por ano, referidos em Markkanen (1995).

<b>Uso previsto</b>	<b>Tempo estimado (h/a)</b>	<b>Limite dose (mSv/a)</b>
Habitacões interiores	7000	1
Ruas e parques infantis	500	0,1
Áreas de aterros	150	0,1
Manuseamento de cinzas de turfa	1500	1

Uma perspetiva alternativa que será experimentada neste trabalho passará por estimar o número de horas por ano, necessárias para atingir os limites indicados em Markkanen (1995), utilizando o fator de 0,7 na conversão de dose absorvida para dose efetiva na expectativa de que esta forma de apresentação possa ser mais facilmente compreensível pelo público.

### 3.6. Dose interna

O presente trabalho dedica-se essencialmente à discussão de questões associadas com a dose gama externa. Todavia, os resultados de atividade específica permitem elaborar alguns cálculos relacionados com a dose interna.

Como referido no capítulo 1, pode ser definido um índice alfa ( $I_\alpha$ ) a partir da atividade específica do  $^{226}\text{Ra}$ , através da equação [3-9]

$$I_\alpha = C_{\text{Ra}}/200 \quad [\text{eq. 3-9}]$$

onde  $C_{\text{Ra}}$  é a atividade específica do  $^{226}\text{Ra}$  (Righi e Bruzzi, 2006). Este índice é assim diretamente proporcional aos valores de atividade específica de  $^{226}\text{Ra}$ . De acordo com estes autores, para valores de  $I_\alpha$  superiores a 1 (portanto valores de  $^{226}\text{Ra}$  superiores a 200 Bq/kg) é possível que o material cause valores de radão superiores ao limite de 200 Bq/m<sup>3</sup>. Por outro lado, para valores de  $^{226}\text{Ra}$  inferiores a 100 Bq/kg (valores de  $I_\alpha$  inferiores a 0,5) é pouco provável que o material cause teores de radão superiores aos 200 Bq/m<sup>3</sup>.

Em termos de ingestão e inalação de partículas, seguindo os pressupostos expostos em documentos como Markkanen (1995) e EC 112 (2002), e utilizando a equação [3-10] para a inalação e a equação [3-11] para a ingestão.

$$D_{\text{ina}} = e_{\text{ina}} A_p C_p \nu t \quad [\text{eq. 3-10}]$$

onde  $D_{\text{ina}}$  é a dose específica interna por inalação,  $e_{\text{ina}}$  é o coeficiente de dose (transformando Bq em Sv),  $A_p$  é a atividade específica,  $C_p$  é a massa de poeiras por unidade volume,  $\nu$  é a taxa de inalação (volume por unidade de tempo) e  $t$  é o tempo de exposição.

$$D_{\text{ing}} = e_{\text{ing}} A_p m \quad [\text{eq. 3-11}]$$

onde  $D_{\text{ing}}$  é a dose específica interna por ingestão,  $e_{\text{ing}}$  é o coeficiente de dose (transformando Bq em Sv),  $A_p$  é a atividade específica, e  $m$  é a massa ingerida.

Para aplicar estas equações consideram-se coeficientes que dependem do isótopo e, no caso da inalação, também das dimensões das partículas (ver Tabela 3-7), os parâmetros para o armazenamento interno (dentro de casa) de quantidades moderadas (ver Tabela 3-8).

**Tabela 3-7** – Coeficientes de transformação de atividade em dose específica, em  $\mu\text{Sv/Bq}$ , (adaptado de Markkanen, 1995).  $^{238}\text{U}^{++}$ :  $^{238}\text{U}$  e os seus descendentes, admitindo equilíbrio secular.  $^{232}\text{Th}^+$ :  $^{232}\text{Th}$  e os seus descendentes, admitindo equilíbrio secular.  $^{235}\text{U}^+$ :  $^{235}\text{U}$  e os seus descendentes, admitindo equilíbrio secular, referidos em Markkanen (1995).

Isótopos	Coeficientes para inalação ( $\mu\text{Sv/Bq}$ )		Coeficientes para ingestão ( $\mu\text{Sv/Bq}$ )
	1 $\mu\text{m}$	5 $\mu\text{m}$	
$^{238}\text{U}^{++}$	49	35	1,5
$^{232}\text{Th}^+$	68	48	1,0
$^{235}\text{U}^+$	120	85	2,0

**Tabela 3-8** - Parâmetros para o armazenamento de quantidades moderadas dentro de casa, referidos em EC 112 (2002).

$C_p$ (massa de poeira por unidade de volume)	2 $\text{mg/m}^3$
$v$ (taxa de inalação)	1,2 $\text{m}^3/\text{h}$
$m$ (taxa de ingestão directa)	10 $\text{mg/h}$
$t$ (tempo de exposição)	1 800 horas

## **4. ESTUDOS LABORATORIAIS DAS AMOSTRAS DE GRANITO**

Neste capítulo são apresentados os resultados laboratoriais das amostras, com diferentes graus de meteorização, colhidas em terrenos cartografados como granito de Braga (Ferreira *et al.*, 2000). Estas amostras são numeradas de 1 a 5 (correspondente ao grau de meteorização crescente, de acordo com a avaliação de campo).

### **4.1. Características petrográficas do granito**

As características petrográficas seguidamente referidas foram obtidas a partir de um relatório inédito e confidencial, cedido por uma empresa que fez o estudo da rocha do local de amostragem.

#### **4.1.1. Microscopia**

Com base no relatório acima referido, microscopicamente, é um granito comum ou monzogranito, apresentando textura xenomórfica a hipidiomórfica granular, em que a maior parte dos cristais revela morfologias anédricas a subédricas.

### **4.2. Comparação entre o granito de Braga VS. o granito em estudo**

#### **4.2.1. Características petrográficas**

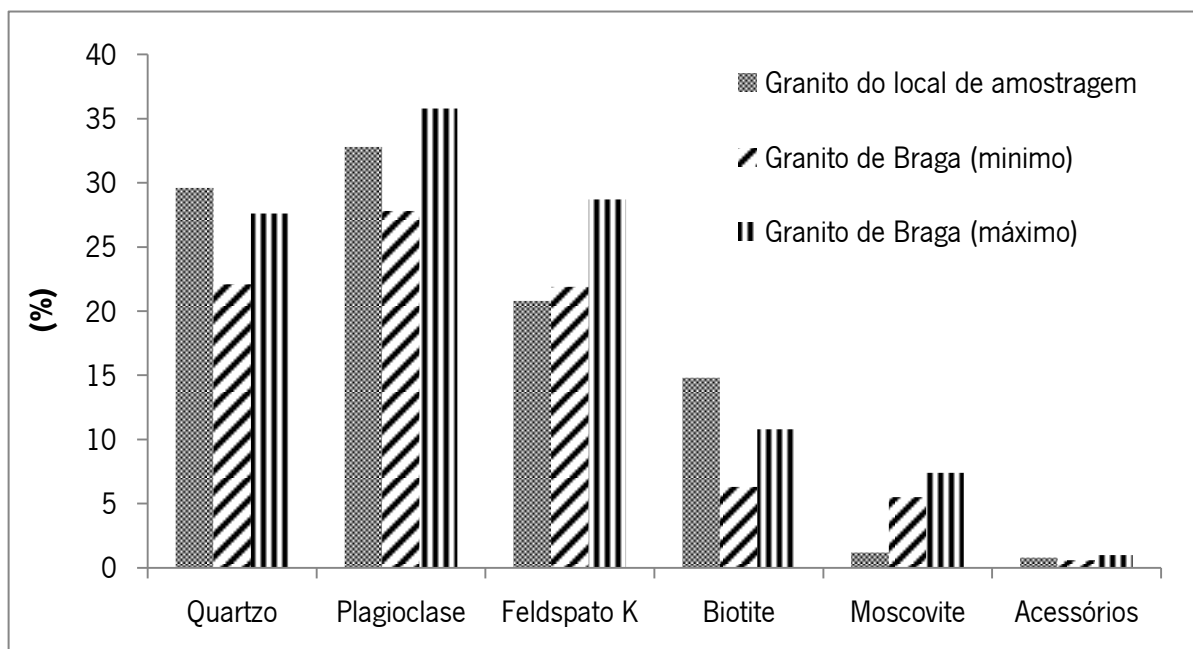
Foi realizada uma comparação entre o granito de Braga e o granito em estudo (Figura 4-1). Os dados presentes na Tabela 4-1, referentes às composições modais, em percentagem, do granito de Braga, encontram-se referidos em Dias *et al.* (1992), e os dados referentes ao granito do local de amostragem, foram retirados do documento acima referido.

**Tabela 4-1-** Características petrográficas do granito do local de amostragem (amostra menos alterada) e do granito de Braga. As composições modais, em percentagem (%), do granito de Braga (retiradas de Dias *et al.*, 1992) foram estimadas a partir da rocha total e da composição química dos minerais. As composições modais, em percentagem (%), do granito do local de amostragem, foram retiradas do relatório inédito acima referido.

	<b>Granito do local de amostragem</b>	<b>Granito de Braga (Dias et al., 1992)</b>
<b>Quartzo</b>	29,6	22,1 - 27,6
<b>Plagioclase</b>	32,8	27,8 - 35,8
<b>Feldspato K</b>	20,8	21,9 - 28,7
<b>Biotite</b>	14,8	6,3 - 10,8
<b>Moscovite</b>	1,2	5,5 - 7,4
<b>Acessórios</b>	0,8*	0,6 - 1,0

\*: Opacos (ilmenite, rútilo), clorite, apatite, zircão, monazite, sericite e caulinite.

Quando comparados (Figura 4-1), o granito de Braga e o granito do local de amostragem, apresentam composições modais bastante semelhantes. O granito de Braga apresenta uma percentagem modal de plagioclase, feldspato K e moscovite, superior à do granito em estudo. Por outro lado, o granito em consideração, apresenta uma percentagem modal de quartzo e biotite, superior ao granito de Braga.



**Figura 4-1** - Gráfico de barras, comparativo das composições modais, em %, entre o granito de Braga (de acordo com os dados de Dias *et al.* (1992)) e o granito do local de amostragem.

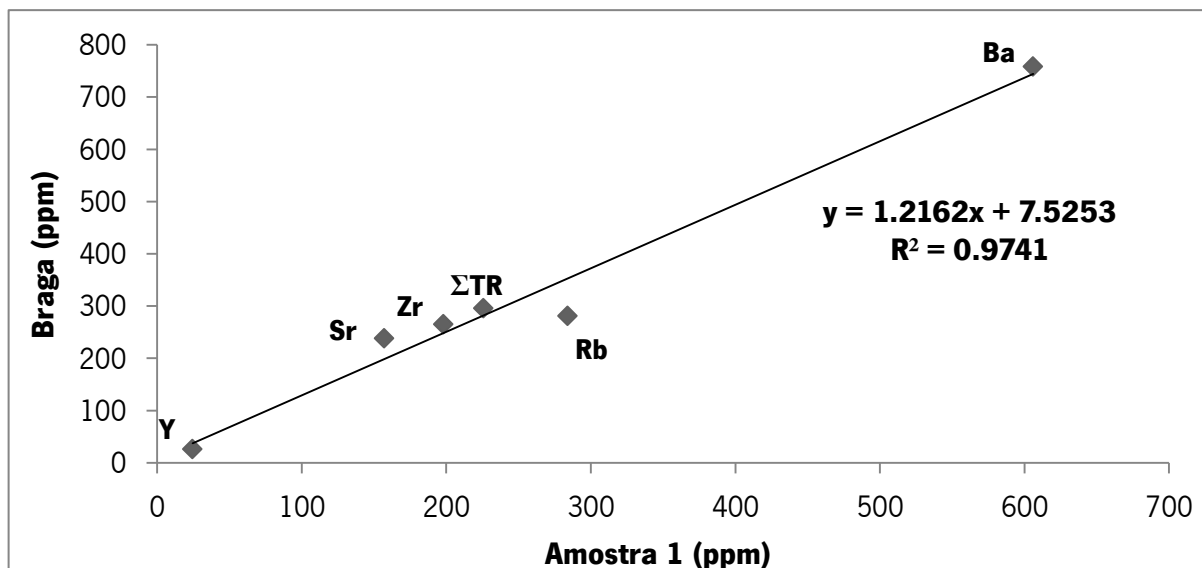
#### 4.2.2. Elementos traço e elementos de Terras-Raras (ETR)

Nesta secção é realizada uma comparação dos teores dos elementos traço e da soma dos elementos de Terras-Raras, em ppm, sendo considerados os dados obtidos no presente estudo, por ICP-MS, entre a amostra com menor grau de alteração (amostra 1), e os dados presentes em Dias *et al.* (1992). Foram utilizados os dados referentes à amostra 1 pois, aquando o processo de amostragem, esta foi considerada a amostra com menor grau de alteração, tendo em conta as suas características macroscópicas, nomeadamente, friabilidade e cor, como descrito no capítulo 3. Quando comparados (Tabela 4-2), é observável que, a amostra 1 apresenta um teor de rubídio (Rb) superior ao granito de Braga (284 e 281 ppm, respetivamente). Nos restantes elementos traço, bem como na soma de ETR, o granito de Braga apresenta teores médios superiores aos valores obtidos para a amostra 1.

**Tabela 4-2** - Médias dos teores dos elementos traço e soma dos valores dos elementos de Terras-Raras (TR), em ppm, referentes à amostra 1 (obtidos neste estudo), e ao granito de Braga. Teores dos elementos traço e TR, da amostra 1 e do granito de Braga, obtidos através da técnica de ICP-MS. Os dados do granito de Braga foram retirados de Dias *et al.* (1992). DP – Desvio padrão.

		<b>Ba</b>	<b>Rb</b>	<b>Sr</b>	<b>Zr</b>	<b>Y</b>	<b>Soma (TR)</b>
<b>Amostra 1</b>		606	284	157	198	24.4	225,6
<b>Braga (Dias <i>et al.</i>, 1992)</b>	<b>Média</b>	758	281	238	265	26	295,4
	<b>DP</b>	85	33	34	42	3	-

Foi realizado um gráfico de correlação (Figura 4-3) entre os teores dos elementos traço e da soma dos elementos de TR, da amostra 1 e do granito de Braga. Como é observável na Figura 4-3, os teores dos elementos traço e da soma dos elementos de Terras-Raras, em ppm, entre a amostra 1 e o granito de Braga, mostram uma boa correlação, com um coeficiente de determinação,  $R^2 =$  aproximadamente 0,97. Saliente-se que o rubídio (Rb), apresenta o maior desvio em relação a esta reta de regressão.



**Figura 4-2** – Gráfico de correlação entre os teores, em ppm, dos elementos traço e da soma dos elementos de Terras-Raras, da amostra 1 e do granito de Braga.

#### 4.3. Amostras de granito com diferentes graus de alteração

Nesta secção serão apresentados os resultados laboratoriais obtidos em relação às amostras de granito do local de amostragem, com diferentes graus de alteração.

##### 4.3.1. Absorção de água

Os valores de absorção de água ( $A_b$ ), presentes na Tabela 4-3, variam entre 0,7 % e 8,6 %, para a amostra 1 e amostra 5, respetivamente. Pode ser observado que os valores de absorção de água confirmam a avaliação macroscópica em relação à sequência do grau de alteração, no sentido de que a amostra 2 apresenta um estado de alteração superior à amostra 1, e assim por diante.

**Tabela 4-3** - Percentagem de absorção de água à pressão atmosférica ( $A_b$ ). Número da amostra corresponde à ordenação no campo, de acordo com a avaliação macroscópica do grau de alteração (número crescente da amostra corresponde ao aumento do grau de alteração).

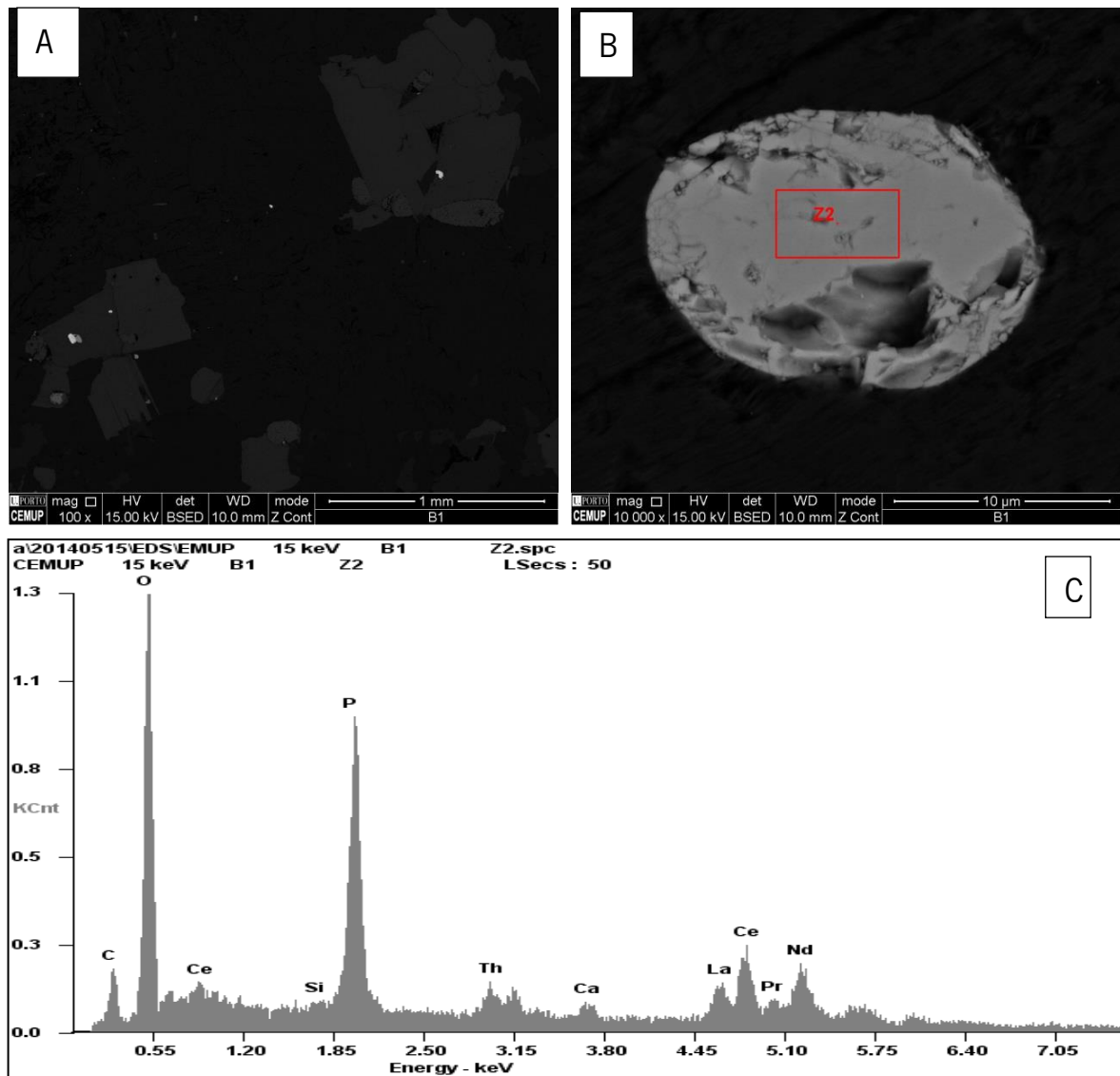
Amostra	1	2	3	4	5
$A_b$ (%)	0,7	0,8	1,6	3,1	8,6



### 4.3.2. Estudos microscópicos

Com o objetivo de ilustrar a presença de fases primárias com elementos radioativos e comparar as texturas de amostras com diferentes graus de alteração, de modo a confirmar a avaliação macroscópica em relação à sequência do grau de alteração das amostras de granito colhidas, foram realizados estudos microscópicos e obtidas imagens MEV e respectivos espectros de Raios-X, para as diferentes amostras.

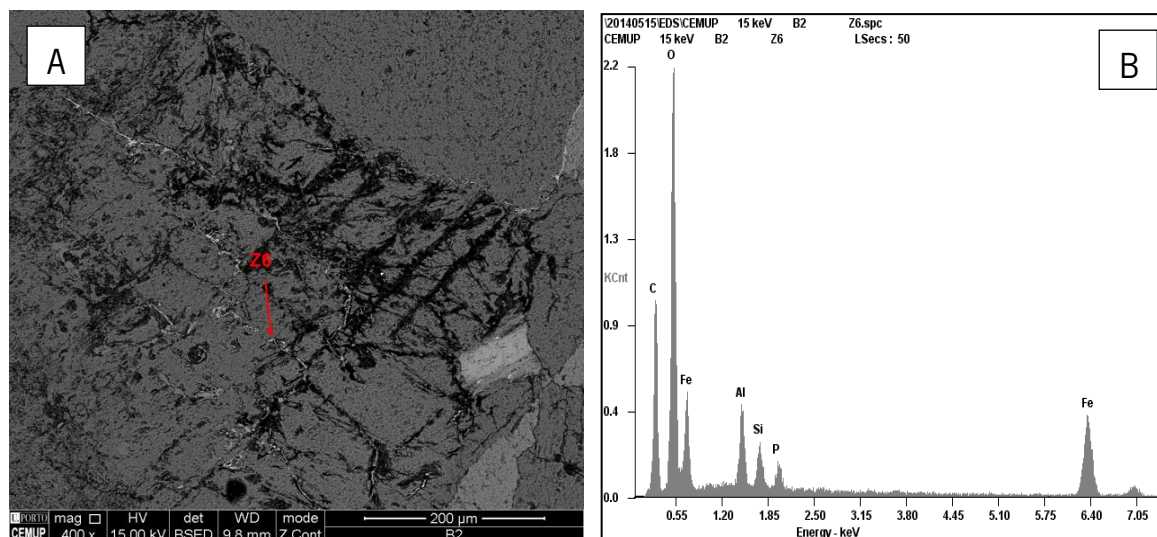
A presença de fases primárias com elementos radioativos é verificada na Figura 4-3, onde é possível observar um cristal de monazite, como inclusão num cristal de biotite (Figura 4-3-A), presente na amostra 1. A monazite (Figura 4-3-B) é um fosfato, que contém metais e elementos de Terras-Raras, sendo uma fonte importante de tório. De facto, devido à similaridade do raio iónico entre o  $U^{4+}$ , o  $Th^{4+}$  e o  $Ca^{2+}$  e os elementos de Terras-Raras, estes elementos podem ser incorporados na estrutura da monazite (Marocchi *et al.*, 2011), embora o urânio e a sílica ( $SiO_2$ ) estejam na sua composição em pequenas quantidades. Através do seu espectrograma (Figura 4-3-C), podemos afirmar que se trata de uma monazite – Ce (Ce, La, Nd, Th, Y)  $PO_4$ . A presença de Th na sua composição torna-a um mineral considerado radioativo.



**Figura 4-3** - Estudos MEV (Microscópio Eletrónico de Varrimento) referentes à amostra 1. (A) – fases primárias presentes na matriz 1, onde são visíveis inclusões de monazite na biotite (B) – cristal de monazite; (C) – Imagem do espectro de Raios-X, referente à monazite, apresentada em B.

Na amostra 1, já se observa a alteração da plagioclase associada com sericitização, que em algumas secções chega a ser intensa, tal é como referido por Alves (1997) para amostras de granito de Braga, sem evidências cromáticas de alteração. As secções de feldspato potássico mostram alguma turvação. Observa-se também cloritização da biotite.

A amostra 2 mostra uma maior abundância de secções de microclina. Nesta amostra já são visíveis fissuras inter e intragranulares coloridas com compostos de ferro, como é ilustrado na figura 4-4-A, onde é possível observar a alteração e fissuração da plagioclase.

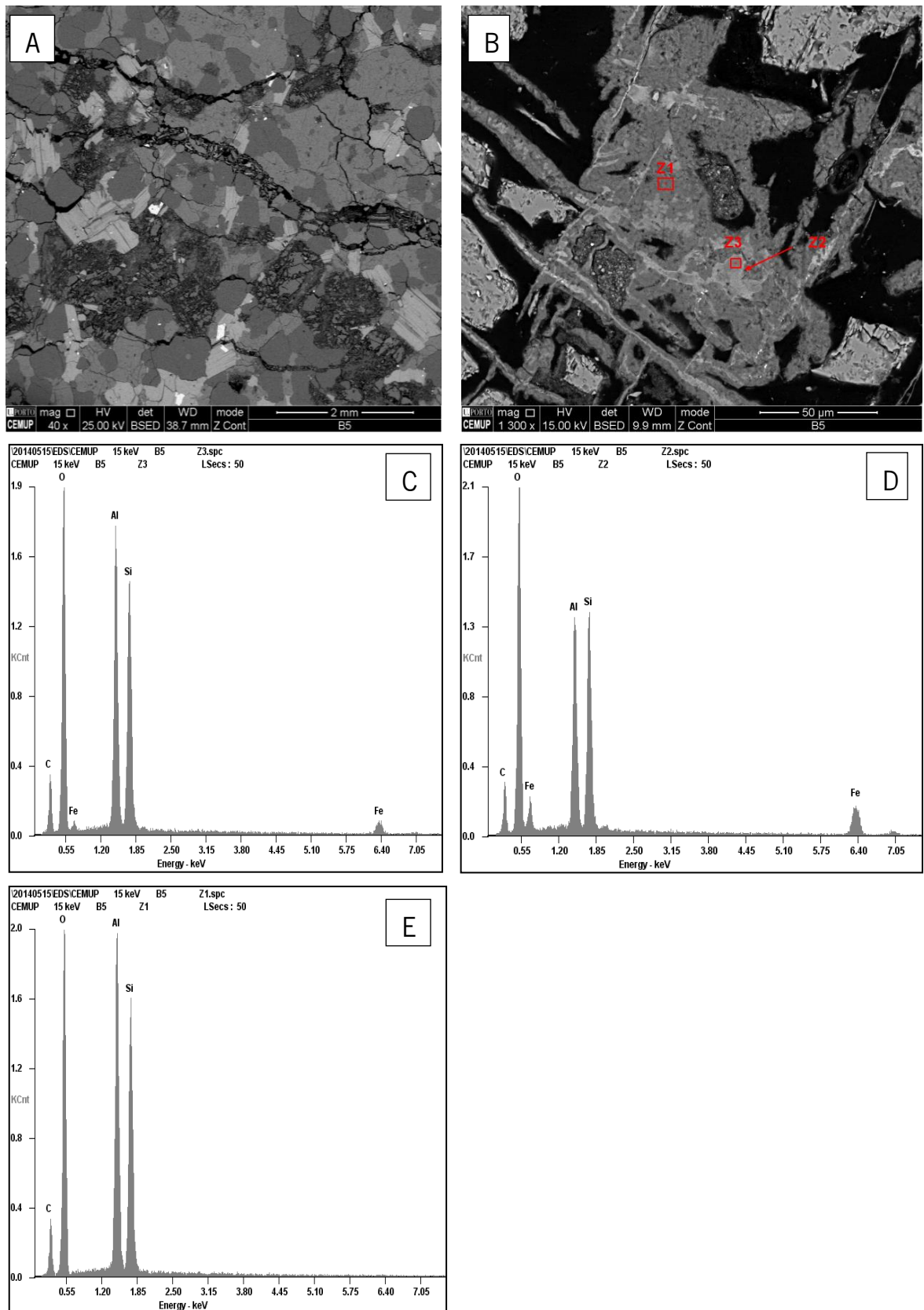


**Figura 4-4** – (A) Estudos MEV (Microscópio Eletrônico de Varrimento) de um cristal de Plagioclase, na amostra 2 com produtos de alteração em fissuras; (B) Espectro de Raios-X, referente ao produto de alteração indicado em (A).

Nas amostras 3 e 4 a alteração desenvolve-se notavelmente na plagioclase e observa-se uma maior abundância de fissuras inter e transgranulares. Algumas secções de microclina mostram uma turvação mais acentuada.

A amostra 5, a mais alterada, apresenta varias fissuras transgranulares (Figura 4-5-A), secções de plagioclase quase totalmente metassomatizadas pelos produtos de alteração (Figura 4-5-C, D, e E), que mostra a relação Al/Si expectável para a caulinite), e alguma meteorização da biotite correspondente à separação ao longo dos planos de clivagem.

Tal como os valores de absorção de água, os estudos microscópicos, suportam a avaliação macroscópica em relação à sequência do grau de alteração.



**Figura 4-5** - Estudos MEV da amostra 5, (A) matriz com evidência para as fraturas intergranulares; (B) plagioclase e produtos de alteração; (C) espectro da plagioclase; (D) e (E) – espectros dos produtos de alteração.

### 4.3.3. Análise por espectrometria - $\gamma$

As atividades específicas do  $^{238}\text{U}$  ( $^{226}\text{Ra}$ ), do  $^{235}\text{U}$ , do  $^{232}\text{Th}$  e do  $^{40}\text{K}$ , e respectivos isótopos-filho resultantes das suas séries de decaimento, foram medidas nas 5 amostras de granito com diferentes graus de alteração, através da espectrometria -  $\gamma$ , usando um detetor HPGe, estando os resultados na Tabela 4-4.

**Tabela 4-4** - Atividades específicas (e respectivos erros, entre parênteses), em Bq/kg, dos elementos radioativos  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ , e respectivos isótopos-filho, resultantes das suas séries de decaimento radioativo, das 5 amostras de granito com diferentes graus de alteração.

Isótopo	Amostra				
	1	2	3	4	5
$^{40}\text{K}$	1305 $\pm$ 60	2080 $\pm$ 87	1681 $\pm$ 72	1570 $\pm$ 68	1567 $\pm$ 65
$^{232}\text{Th}$	95 $\pm$ 4	34 $\pm$ 2	70 $\pm$ 5	202 $\pm$ 10	202 $\pm$ 8
$^{228}\text{Ac}$	95 $\pm$ 4	34 $\pm$ 2	70 $\pm$ 5	202 $\pm$ 10	202 $\pm$ 8
$^{212}\text{Bi}$	105 $\pm$ 8	32 $\pm$ 4	76 $\pm$ 6	223 $\pm$ 12	225 $\pm$ 15
$^{212}\text{Pb}$	100 $\pm$ 4	35 $\pm$ 2	75 $\pm$ 3	219 $\pm$ 9	221 $\pm$ 10
$^{238}\text{U}$	139 $\pm$ 29	71 $\pm$ 16	114 $\pm$ 25	70 $\pm$ 15	110 $\pm$ 22
$^{234}\text{Th}$	139 $\pm$ 29	71 $\pm$ 16	114 $\pm$ 25	70 $\pm$ 15	110 $\pm$ 22
$^{234}\text{Pa}$	128 $\pm$ 30	81 $\pm$ 14	126 $\pm$ 19	75 $\pm$ 5	144 $\pm$ 30
$^{235}\text{U}$	10 $\pm$ 2	6 $\pm$ 2	7 $\pm$ 1	-	5 $\pm$ 1
$^{234}\text{U}$	137 $\pm$ 6	72 $\pm$ 3	116 $\pm$ 5	73 $\pm$ 4	89 $\pm$ 4
$^{214}\text{Bi}$	131 $\pm$ 6	73 $\pm$ 11	111 $\pm$ 5	71 $\pm$ 4	87 $\pm$ 3
$^{214}\text{Pb}$	137 $\pm$ 6	72 $\pm$ 3	116 $\pm$ 5	73 $\pm$ 4	89 $\pm$ 4
$^{210}\text{Pb}$	145 $\pm$ 8	81 $\pm$ 8	118 $\pm$ 12	78 $\pm$ 5	90 $\pm$ 7
$^{134}\text{Cs}$	-	-	-	-	-
$^{137}\text{Cs}$	-	-	-	-	-
$^{241}\text{Am}$	-	-	-	-	-

Sob o pressuposto da ausência de um equilíbrio secular entre o  $^{238}\text{U}$ , o  $^{232}\text{Th}$  e os seus produtos de decaimento, as atividades específicas de cada radionuclídeo e respectivos isótopos-filho, nas 5 amostras de granito com diferentes graus de alteração, estão presentes nas Tabelas 4-5 e 4-6, respetivamente.

**Tabela 4-5** - Atividades específicas, e respetivos erros, em Bq/kg, dos elementos pertencentes à série de decaimento do  $^{238}\text{U}$ , nas diferentes amostras analisadas.

Isótopo	Amostra				
	1	2	3	4	5
$^{238}\text{U}$	139 ± 29	71 ± 16	114 ± 25	70 ± 15	110 ± 22
$^{234}\text{Th}$	139 ± 29	71 ± 16	114 ± 25	70 ± 15	110 ± 22
$^{234}\text{Pa}$	128 ± 30	81 ± 14	126 ± 19	75 ± 5	144 ± 30
$^{234}\text{U}$	137 ± 6	72 ± 3	116 ± 5	73 ± 4	89 ± 4
$^{214}\text{Pb}$	137 ± 6	72 ± 3	116 ± 5	73 ± 4	89 ± 4
$^{214}\text{Bi}$	131 ± 6	73 ± 11	111 ± 5	71 ± 4	87 ± 3
$^{210}\text{Pb}$	145 ± 8	81 ± 8	118 ± 12	78 ± 5	90 ± 7

**Tabela 4-6** - Atividades específicas, e respetivos erros, em Bq/kg, dos elementos pertencentes à série de decaimento do  $^{232}\text{Th}$ , nas diferentes amostras analisadas.

Isótopo	Amostra				
	1	2	3	4	5
$^{232}\text{Th}$	95 ± 4	34 ± 2	70 ± 5	202 ± 10	202 ± 8
$^{228}\text{Ac}$	95 ± 4	34 ± 2	70 ± 5	202 ± 10	202 ± 8
$^{212}\text{Bi}$	105 ± 8	32 ± 4	76 ± 6	223 ± 12	225 ± 15
$^{212}\text{Pb}$	100 ± 4	35 ± 2	75 ± 3	219 ± 9	221 ± 10

De forma a investigar as condições de equilíbrio entre o  $^{238}\text{U}$ , o  $^{232}\text{Th}$  e os seus produtos de decaimento, foram calculados os rácios de atividade específica entre os diferentes elementos-filho e o elemento-pai, das séries de decaimento do  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ , estando presentes nas Tabelas 4-7 e 4-8, respetivamente.

**Tabela 4-7** - Rácios de atividade específica entre os diferentes elementos-filho e o elemento-pai, da série de decaimento do  $^{238}\text{U}$ , nas diferentes amostras analisadas.

Rácio	Amostra				
	1	2	3	4	5
$^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$	1	1	1	1	1
$^{234}\text{Pa}/^{238}\text{U}$	0,92	1,14	1,11	1,07	1,31
$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	0,99	1,01	1,02	1,04	0,81
$^{214}\text{Pb}/^{238}\text{U}$	1	1,01	1,02	1,04	0,81
$^{214}\text{Bi}/^{238}\text{U}$	0,94	1,03	0,97	1,01	0,79
$^{210}\text{Pb}/^{238}\text{U}$	1,04	1,14	1,04	1,11	0,82

O rácio  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  detetado nas 5 amostras dos granitos estudados é aproximadamente 1, com exceção da amostra 5, sugerindo que ambos os radionuclídeos de urânio estão em equilíbrio secular. O valor 0,81 do rácio  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  encontrado na amostra 5 indica um empobrecimento do  $^{234}\text{U}$  em relação ao  $^{238}\text{U}$ , significando que os diferentes nuclídeos de urânio estão em desequilíbrio. Este empobrecimento pode ser justificado por uma lixiviação do  $^{234}\text{U}$ , pois o  $^{234}\text{U}$  pode ser preferencialmente lixiviado da rocha. O maior estado de alteração da amostra 5 em relação às restantes amostras, pode justificar o seu empobrecimento em  $^{234}\text{U}$ .

O rácio  $^{214}\text{Bi}/^{238}\text{U}$  é, mais uma vez, aproximadamente 1 em todas as amostras, com exceção para a amostra 5 ( $^{214}\text{Bi}/^{238}\text{U} = 0,79$ ). O empobrecimento da amostra 5 em  $^{214}\text{Bi}$  em relação ao  $^{238}\text{U}$  significa que os diferentes nuclídeos não estão em equilíbrio secular. O valor 0,79 do rácio  $^{214}\text{Bi}/^{238}\text{U}$  é inferior ao valor 0,81 do rácio  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ , o que demonstra um empobrecimento de isótopos desta amostra. Este empobrecimento pode ser justificado, como acima referido, pela lixiviação do  $^{226}\text{Ra}$  da matriz da rocha ou pela fuga do  $^{222}\text{Rn}$ , como gás nobre, para a atmosfera, diminuindo a atividade de urânio na amostra 5. O maior estado de alteração da amostra 5, justifica a possível lixiviação do  $^{226}\text{Ra}$ , e o aumento da porosidade da amostra, associado ao maior estado de alteração favorece a fuga do  $^{222}\text{Rn}$  para a atmosfera.

**Tabela 4-8** - Rácios de atividade específica entre os diferentes elementos-filho e o elemento-pai, da série de decaimento do  $^{232}\text{Th}$ , nas diferentes amostras analisadas.

Rácio	Amostra				
	1	2	3	4	5
$^{228}\text{Ac}/^{232}\text{Th}$	1	1	1	1	1
$^{212}\text{Bi}/^{232}\text{Th}$	1,11	0,94	1,09	1,10	1,11
$^{212}\text{Pb}/^{232}\text{Th}$	1,05	1,03	1,07	1,08	1,09

Os rácios  $^{238}\text{Ac}/^{232}\text{Th}$ ,  $^{212}\text{Bi}/^{232}\text{Th}$ ,  $^{212}\text{Pb}/^{232}\text{Th}$  calculados são aproximadamente 1 em todas as amostras de granito analisadas, sugerindo que todos os nuclídeos pertencentes à série de decaimento do  $^{232}\text{Th}$  estão em equilíbrio secular.

Sob o pressuposto da existência de um equilíbrio secular entre o  $^{238}\text{U}$ , o  $^{232}\text{Th}$  e o  $^{40}\text{K}$  e os seus produtos de decaimento, as atividades específicas de cada radionuclídeo, nas 5 amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração, estão representadas na Tabela 4-9.

**Tabela 4-9** – Atividades específicas (e respectivos erros), em Bq/kg, dos isótopos radioativos  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$ , nas 5 amostras de granito estudadas.

Amostra	$^{238}\text{U}$ (Bq/kg)	$^{232}\text{Th}$ (Bq/kg)	$^{40}\text{K}$ (Bq/kg)
1	139 ± 29	95 ± 4	1305 ± 60
2	71 ± 16	34 ± 2	2080 ± 87
3	114 ± 25	70 ± 5	1681 ± 72
4	70 ± 15	202 ± 10	1570 ± 68
5	110 ± 22	202 ± 8	1567 ± 65

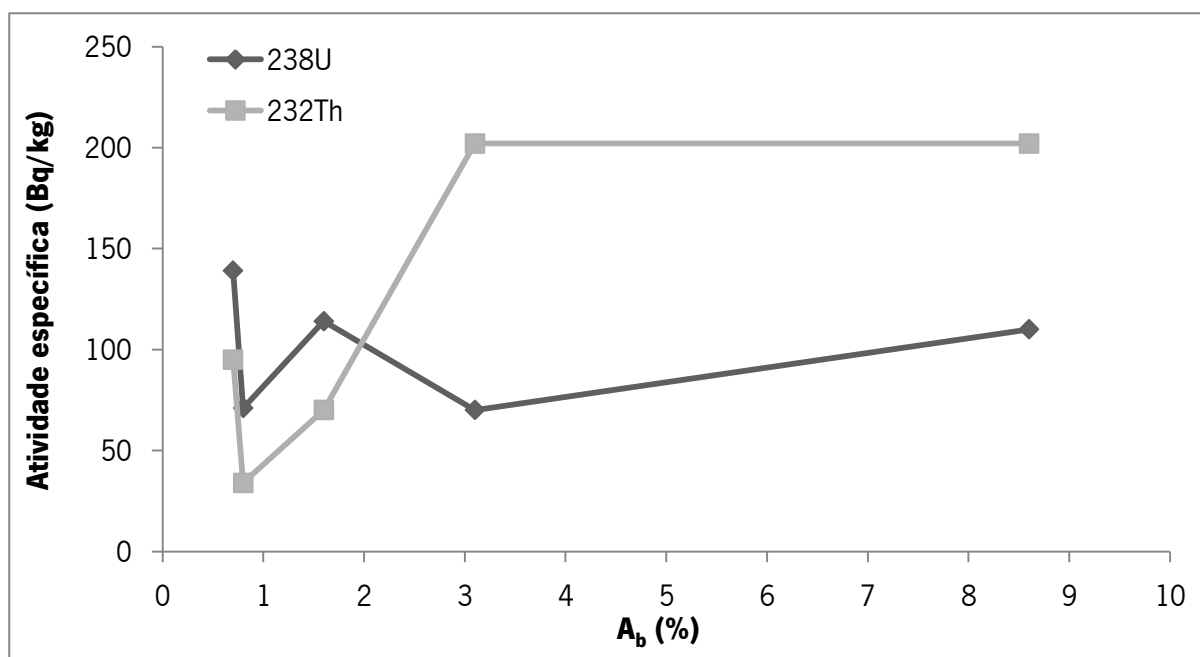
As concentrações dos radionuclídeos na generalidade das amostras estão acima dos valores da média mundial para os materiais de construção, sendo estes 50, 50 e 500 Bq/kg para o  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$ , respetivamente (UNSCEAR, 2000). A exceção foi encontrada para a atividade específica do  $^{232}\text{Th}$ , na amostra 2 (34 ± 2 Bq/kg).

Considerando as indicações de EC 112 (EC, 1999), as amostras 1, 3 e 5 ultrapassariam o limiar superior da normalidade para o  $^{226}\text{Ra}$  (100 Bq/kg), as amostras mais alteradas ultrapassam este limiar do tório (também 100 Bq/kg) e mesmo o limiar a partir do qual se consideram concentrações aumentadas (“enhanced concentrations”) para o  $^{232}\text{Th}$  (200 Bq/kg). A amostra 2 ultrapassa o limiar superior de normalidade (1000 Bq/kg) e o limiar da concentração aumentada (1500 Bq/kg) para o  $^{40}\text{K}$ . Os valores destas amostras estão acima dos valores considerados típicos por EC 112 (EC, 1999)



para a pedra natural (60, 60 e 640 Bq/kg para o  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$ , respetivamente), mais uma vez com exceção da amostra 2. Todavia, todas as atividades específicas ficam bastante abaixo dos valores superiores encontrados em EC (1999) para a pedra natural (500, 310 e 4000 Bq/kg para o  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$ , respetivamente).

Como é possível observar na Tabela 4-9, o valor mais elevado para a atividade específica do  $^{238}\text{U}$  foi encontrado na amostra 1 ( $139 \pm 29$ ) e o valor mais baixo de atividade específica medido foi de  $70 \pm 15$  Bq/kg, na amostra 4. Para o  $^{232}\text{Th}$ , o valor máximo de atividade específica foi  $202 \pm 10$  Bq/kg nas amostra 4 e 5; e o mínimo observado foi  $34 \pm 2$  Bq/kg, na amostra 2.



**Figura 4-6** - Gráfico de dispersão da atividade específica do  $^{238}\text{U}$  e do  $^{232}\text{Th}$ , nas 5 amostras de granito analisadas, em função dos valores de absorção de água ( $A_b$ ).

Utilizando os fatores de conversão dos radionuclídeos de teor ponderal, para atividade específica, em Bq/kg, (Tabela 4-10) presentes em IAEA (2003), foram calculados os teores de U e Th, nas cinco amostras de granito com diferentes graus de alteração analisadas neste estudo (Tabela 4-11).

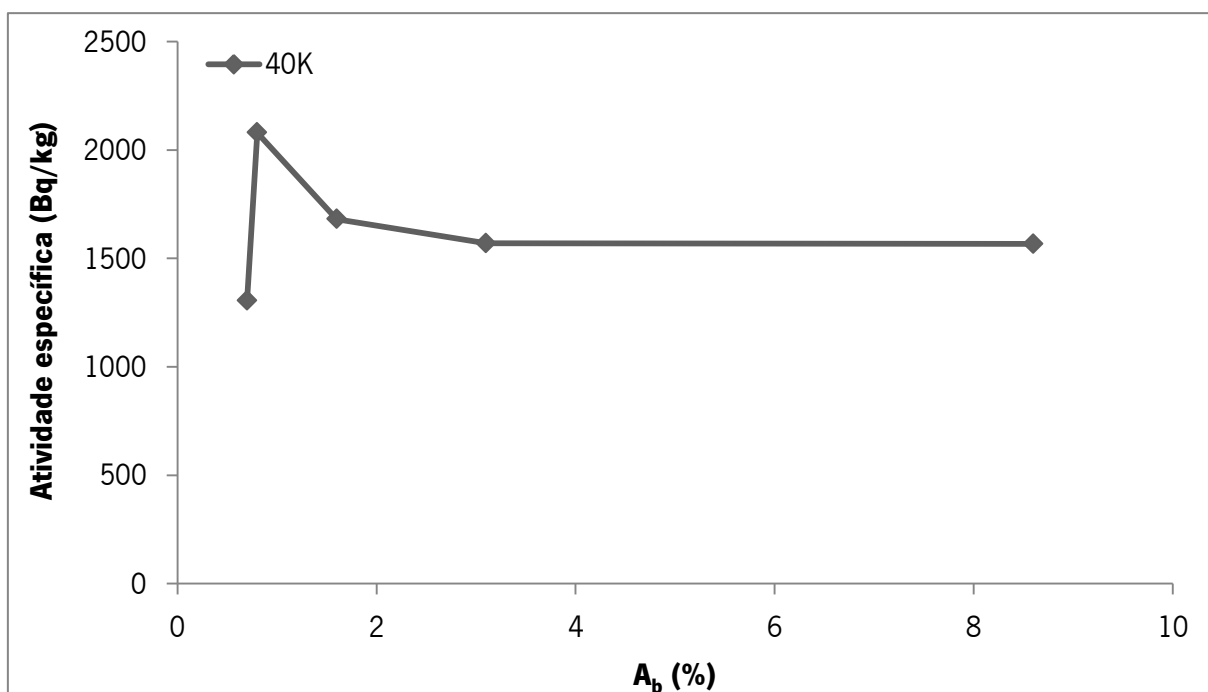
**Tabela 4-10** - Fatores de conversão dos radionuclídeos de teor ponderal para atividade específica, em Bq/kg, (retirado de IAEA, 2003).

Teor ponderal	Bq/kg
1% K in rock	313 $^{40}\text{K}$
1 ppm U	12,35 $^{238}\text{U}$ ou $^{226}\text{Ra}$
1 ppm Th	4,06 $^{232}\text{Th}$

**Tabela 4-11-** Teores de U e Th, em ppm, calculados através dos fatores de conversão presentes em IAEA (2003) e as atividades específicas obtidas por espectrometria –  $\gamma$ , nas cinco amostras de granito analisadas, com diferentes graus de alteração.

<b>Amostra</b>	<b>Th (ppm)</b>	<b>U (ppm)</b>
<b>1</b>	23,40	11,26
<b>2</b>	8,37	5,75
<b>3</b>	17,24	9,23
<b>4</b>	49,75	5,67
<b>5</b>	49,75	8,91

Para o  $^{40}\text{K}$ , o valor mais baixo de atividade específica foi de  $1305 \pm 60$  Bq/Kg na amostra 1, enquanto o valor máximo foi observado na amostra 2, com  $2080 \pm 87$  Bq/kg.



**Figura 4-7 -** Gráfico de dispersão da atividade específica do  $^{40}\text{K}$ , em Bq/kg, nas cinco amostras de granito analisadas, com diferentes graus de alteração.

Utilizando novamente os fatores de conversão de teores ponderais para atividade específica, em Bq/kg, (Tabela 4-10) presentes em IAEA (2003), foi calculada a percentagem de K, nas cinco amostras de granito analisadas (Tabela 4-12).

**Tabela 4-12** - Percentagem (%) de K, calculada através dos fatores de conversão de teores ponderais, presentes em IAEA (2003), e a atividade específica do  $^{40}\text{K}$ , em Bq/kg obtida para as cinco amostras de granito analisadas, através do método de espectrometria –  $\gamma$ .

<b>Amostra</b>	<b>1</b>	<b>2</b>	<b>3</b>	<b>4</b>	<b>5</b>
<b>%K</b>	4,17	6,65	5,37	5,02	5,01

Como é possível observar na Tabela 4-12, a maior percentagem de K foi encontrada na amostra 2 (6,65 %), e a menor percentagem de K foi encontrada na amostra 1 (4,17 %).

Geralmente, a perda de K de um granito é controlada pela alteração do feldspato K. Como os fenocristais de feldspato K são relativamente resistentes à meteorização, o conteúdo em K pode aumentar nos primeiros estágios da meteorização, como resultado da remoção dos minerais mais facilmente alterados, como a plagioclase, e minerais máficos (Dickson & Scott, 1997). A biotite também mostra alguma estabilidade ao longo das amostras consideradas (sendo observada meteorização na amostra 5). Os maiores valores de K, nas amostras de granito mais alteradas, em relação à amostra 1, podem ser justificados por uma menor perda de K, em relação à diminuição da massa total da amostra. Adicionalmente a variabilidade do K poderá ser influenciada por um efeito de escala neste granito porfiróide em termos de volume das amostras analisadas em relação à presença de fenocristais. Em relação a isto poderá lembrar-se o comportamento do Rb (que tende a ter um comportamento semelhante ao do potássio) na comparação dos elementos traço da amostra 1, com os dados médios de Dias *et al.* (1992) apresentada na Figura 4-3.

Foi realizada uma comparação das atividades específicas médias do  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e do  $^{40}\text{K}$  presentes nas amostras de granito em estudo (Tabela 4-9), com outros granitos regionais bem como, com outros granitos estudados a nível mundial (Tabela 4-13).

**Tabela 4-13** - Atividades específicas médias, do  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$ , em Bq/kg, nas amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração e de outros trabalhos conduzidos a nível nacional e mundial.

<b>Granito</b>	<b>País</b>	<b><math>^{238}\text{U}</math></b>	<b><math>^{232}\text{Th}</math></b>	<b><math>^{40}\text{K}</math></b>	<b>Referência</b>
Granitos	Mundial	19-150	12-127	360-1800	Alnour <i>et al.</i> (2012)
Amostra 1	Portugal	139	95	1305	Presente estudo
Amostra 2	Portugal	71	34	2080	Presente estudo
Amostra 3	Portugal	114	70	1681	Presente estudo
Amostra 4	Portugal	70	202	1570	Presente estudo
Amostra 5	Portugal	110	202	1567	Presente estudo
Sameiro	Portugal	-	118**	1190***	Simões, P.P. (2000)
Braga	Portugal	-	-	1284***	Dias <i>et al.</i> (1992)
Gonça	Portugal	-	-	1268***	Dias <i>et al.</i> (1992)
Celeirós	Portugal	-	-	1398***	Dias <i>et al.</i> (1992)
Briteiros	Portugal	-	-	1356***	Dias <i>et al.</i> (1992)
Outros granitóides	(NE, Portugal)	-	-	1134-1367***	Dias <i>et al.</i> (1992)
Vila Pouca de Aguiar	Portugal	67*	68**	1128***	Martins, H.C.B. <i>et al.</i> (2008)
Pedras Salgadas	Portugal	96*	70**	1206***	Martins, H.C.B. <i>et al.</i> (2008)
Águas Frias	Portugal	106*	69**	1058***	Martins, H.C.B. <i>et al.</i> (2008)
Amarante não alterado	Portugal	154	132	1189	Martins <i>et al.</i> (2010)
Amarante alterada	Portugal	169	114	1096	Martins <i>et al.</i> (2010)

\*; \*\*, \*\*\* - Valores calculados, usando os fatores de conversão de teor ponderal, de % K, e ppm de U e Th, presentes em IAEA (2003), para atividade específica, em Bq/kg,

Todas as cinco amostras de granito analisadas, apresentam valores de atividade específica para o  $^{238}\text{U}$ , dentro do intervalo mundial para granitos (19 – 150, Bq/kg), indicado por Alnour *et al.* (2012). Relativamente à atividade do  $^{232}\text{Th}$ , apenas as amostras 4 e 5, apresentam valores superiores ao intervalo mundial para granitos (12 – 127, Bq/kg), indicado por Alnour *et al.* (2012). Para a atividade

específica do  $^{40}\text{K}$ , apenas a amostra 2, apresenta valores superiores ao intervalo mundial para granitos (360 – 1800, Bq/kg), indicado por Alnour *et al.* (2012).

A atividade específica do  $^{40}\text{K}$  nos diferentes granitóides regionais, foi calculada utilizando os valores de % de  $\text{K}_2\text{O}$ , e os respetivos desvios padrão, presentes em Dias *et al.* (1992), e comparadas com a amostra 1 do granito do presente estudo (Figura 4-8). Os dados relativos à amostra 1, foram obtidos por espectrometria -  $\gamma$ . Foram utilizados os dados referentes à amostra 1 pois, aquando o processo de amostragem, esta foi considerada a amostra com menor grau de alteração, tendo em conta as suas características macroscópicas.



**Figura 4-8** - Valores de atividade específica do  $^{40}\text{K}$ , associada à variação da %  $\text{K}_2\text{O}$ , considerando os valores médios, mais ou menos dois desvios padrão, usando os fatores de conversão de teor ponderal, em %, para atividade específica do  $^{40}\text{K}$ , em Bq/kg, presentes em IAEA (2003). Para a amostra 1, foram utilizados os valores de atividade específica do  $^{40}\text{K}$ , mais ou menos o erro associado, em Bq/kg, obtidos através da técnica de espectrometria -  $\gamma$ .

O valor médio, mais elevado, para a actividade específica do  $^{40}\text{K}$  foi encontrado no granito de Celeirós (1398 Bq/kg), seguido pelo granito de Briteiros (1356 Bq/kg). O granito de Braga apresenta um valor médio muito próximo, em relação à amostra 1 (1284 Bq/kg e 1305 Bq/kg, respetivamente).

#### 4.3.4. Método de ICP-MS

A medição da concentração de U e Th (em ppm) nas amostras de granito do presente estudo, com diferentes graus de alteração, foi realizada após uma digestão ácida, no Thermo Element 2, num plasma acoplado de espectrometria de massa, indutivo de alta resolução, através do método de ICP-MS, estando os resultados presentes na Tabela 4-14.

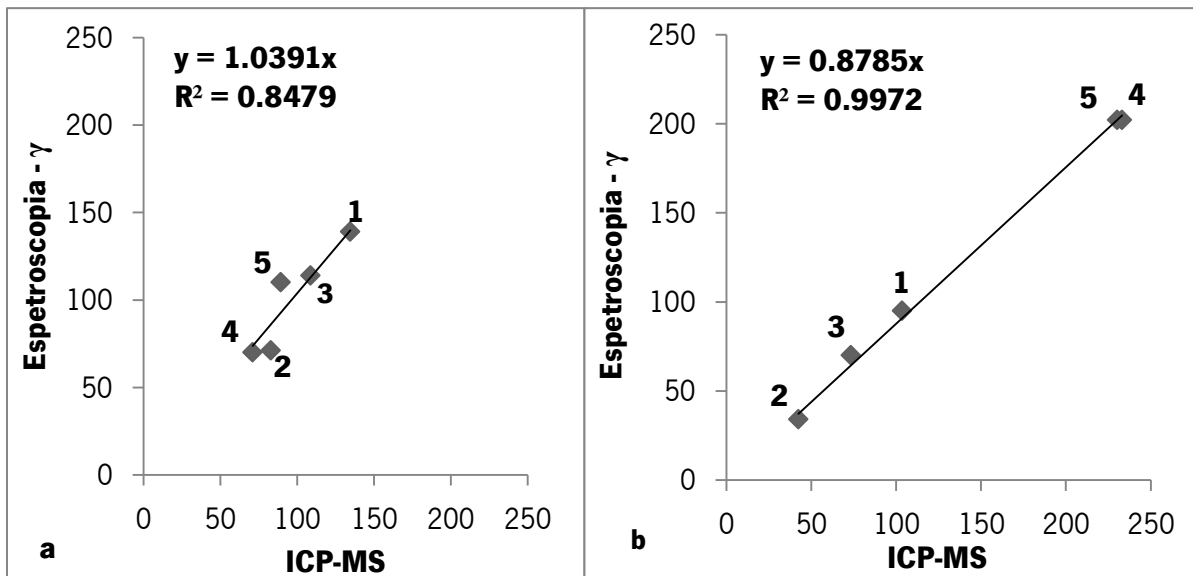
**Tabela 4-14** – Teores, em ppm, das concentrações de U e Th nas amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração.

<b>Amostra</b>	<b>U (ppm)</b>	<b>Th (ppm)</b>
<b>1</b>	10,9	25,5
<b>2</b>	6,7	10,5
<b>3</b>	8,8	18,1
<b>4</b>	5,8	57,4
<b>5</b>	7,2	56,7

Utilizando os fatores de conversão de teor ponderal, em ppm, para atividade específica, em Bq/kg, (Tabela 4-10), indicados no IAEA (2003), foram calculadas as atividades específicas do  $^{238}\text{U}$  e do  $^{232}\text{Th}$ , sendo comparadas na Tabela 4-15, com os resultados obtidos pela espectrometria -  $\gamma$ . Os resultados das duas técnicas mostram uma boa correlação, com um coeficiente de determinação  $R^2$  de aproximadamente 0,85 para o  $^{238}\text{U}$  e de 0,99 para o  $^{232}\text{Th}$  (Figura 4-10).

**Tabela 4-15** – Atividade específica (mais ou menos erros associados), em Bq/kg, dos radioelementos  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ , obtidas por espectrometria -  $\gamma$  e calculadas a partir dos resultados do ICP-MS, utilizando os fatores indicados em IAEA (2003).

<b>Amostra</b>	<b>Actividade específica do <math>^{238}\text{U}</math></b>		<b>Actividade específica do <math>^{232}\text{Th}</math></b>	
	<b>ICP-MS</b>	<b>Espectrometria - <math>\gamma</math></b>	<b>ICP-MS</b>	<b>Espectrometria - <math>\gamma</math></b>
<b>1</b>	134,6	139 $\pm$ 29	103,5	95 $\pm$ 4
<b>2</b>	82,9	71 $\pm$ 16	42,4	34 $\pm$ 2
<b>3</b>	108,8	114 $\pm$ 25	73,2	70 $\pm$ 5
<b>4</b>	71	70 $\pm$ 15	233	202 $\pm$ 10
<b>5</b>	89,2	110 $\pm$ 22	230,2	202 $\pm$ 8



**Figura 4-9** - Correlação entre as medições de atividade específica, em Bq/kg, do  $^{238}\text{U}$  (a) e do  $^{232}\text{Th}$  (b), obtidas através dos métodos de espectrometria -  $\gamma$  e ICP-MS.

A maior dispersão no gráfico de correlação entre as medições de atividade específica, em Bq/kg, do  $^{238}\text{U}$ , estará possivelmente ligada a um desequilíbrio na sua cadeia de decaimento, devido às razões acima referidas. As amostras 2 e 5 são as que mais se afastam da linha de tendência (Figura 4-10-a). Os valores de atividade específica para o  $^{238}\text{U}$ , nas amostras 2 e 5, apresentam os valores mais díspares entre os diferentes métodos. Na amostra 2, o valor de atividade específica para o  $^{238}\text{U}$ , obtido pelo método de ICP-MS, é bastante superior ao valor obtido por espectrometria -  $\gamma$  (82,9 e 71 Bq/kg para o método de ICP-MS e de espectrometria -  $\gamma$ , respetivamente). Na amostra 5, o valor de atividade específica para o  $^{238}\text{U}$ , obtido pelo método de ICP-MS, é bastante inferior ao valor obtido por espectrometria -  $\gamma$  (89,2 e 110 Bq/kg para o método de ICP-MS e de espectrometria -  $\gamma$ , respetivamente).

#### 4.3.5. Mobilidade geoquímica

Nesta secção será tentada uma discussão dos resultados geoquímicos com base nas relações entre os parâmetros de relação massa/volume em meios porosos e numa perpestiva de meteorização isovolumétrica (o que não será absurdo no caso de amostras coesas, como as que foram estudadas).

Admitindo que a massa volúmica da água utilizada é igual a  $1,00 \text{ g/cm}^3$  e que o volume de água absorvida é um bom estimador do volume de poros, pode considerar-se um relação simples entre

massa volúmica aparente ( $\rho_a$ ), absorção de água ( $A_b$ ) e massa volúmica do esqueleto sólido ( $\rho_s$ ), indicada em [eq. 4-1].

$$1/\rho_a = 1/\rho_s + A_b (\%) / 100 \quad [\text{eq. 4-1}]$$

Esta relação permite, admitindo um determinado valor de massa volúmica do esqueleto sólido ( $\rho_s$ ), obter uma estimativa da massa volúmica aparente ( $\rho_a$ ), a partir dos resultados dos ensaios de absorção de água ( $A_b$ ). Em relação ao valor de massa volúmica do esqueleto sólido ( $\rho_s$ ), consideraram-se os dados de Bergonha e Sequeira Braga (2002), relativos à porosidade às 48 horas ( $N_{48}$ ) e massa volúmica aparente de provetes de granito do Porto, com diferentes graus de alteração. A partir desses dados foi calculado um valor estimado da absorção de água ( $A_{b48}$ ) calculado pela equação [eq. 4-2],

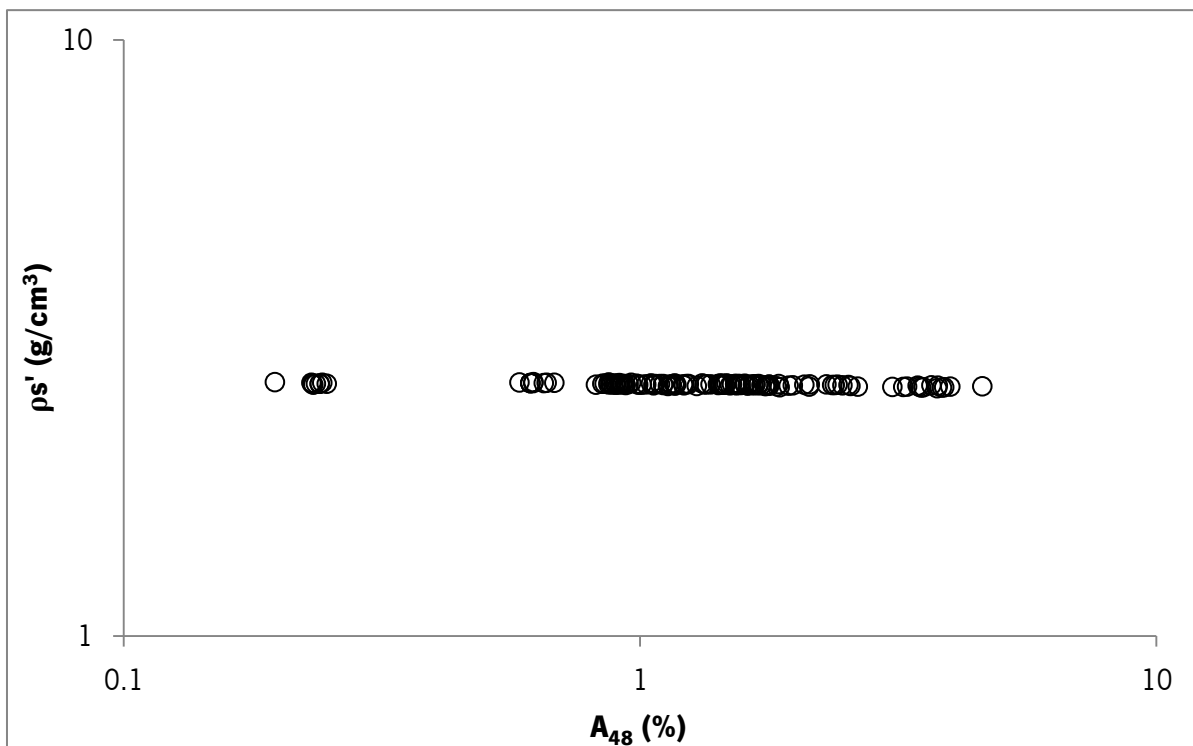
$$A_{b48} (\%) = N_{48} / \rho_a \quad [\text{eq. 4-2}]$$

Foi também obtida uma estimativa da massa volúmica do esqueleto sólido ( $\rho_s'$ ), pela equação [eq. 4-3], utilizando os valores de porosidade às 48 horas ( $N_{48}$ ).

$$\rho_s' = \rho_a / (1 - N_{48} (\%) / 100) \quad [\text{eq. 4-3}]$$

Os resultados (Figura 4-10) mostram uma variação muito pequena para os valores de massa volúmica do esqueleto sólido, sendo o valor mais elevado perto de 2 % superior ao valor inferior.





**Figura 4-10** – Gráfico de correlação entre a estimativa de massa volúmica do esqueleto sólido ( $\rho_s'$ ), em g/cm<sup>3</sup> e a absorção de água ( $A_{48}$ ). Foram utilizados os dados relativos à porosidade às 48 horas ( $N_{48}$ ) e massa volúmica aparente ( $\rho_a$ ), de provetes de granito do porto com diferentes graus de alteração, presentes em Begonha e Sequeira Braga (2002).

O valor mínimo das estimativas de massa volúmica de esqueleto sólido ( $\rho_s'$ ), assim obtidas foi igual a 2,60 g/cm<sup>3</sup>, valor próximo do valor indicado para a caulinite (Klein e Hurlbut, 1999 e Deer *et al.*, 2000), principal mineral de alteração nos granitóides do NW de Portugal (Sequeira Braga *et al.*, 2002). Considerando este resultado e usando (eq. 4-1), podem calcular-se a partir dos dados de absorção de água ( $A_b$ ) das amostras de granito em estudo, os valores de massa volúmica aparente ( $\rho_a$ ), destas amostras. Considerando os valores de absorção de água ( $A_b$ ) da amostra 5, a qual apresenta o valor mais elevado de índices de radiação gama, calculou-se uma massa volúmica aparente ( $\rho_a$ ) igual a 2,38 g/cm<sup>3</sup>, valor muito próximo do valor mínimo encontrado por Begonha e Sequeira Braga (2002), de 2,34 g/cm<sup>3</sup> e algo superior ao valor indicado por Sequeira Braga *et al.* (2002), para o limite inferior da massa volúmica aparente em amostras de rochas meteorizadas de granitos estudados por estes autores no NW de Portugal (1,94 g/cm<sup>3</sup>).

O assunto poderá ser ainda analisado na perspectiva do balanço isovolumétrico da meteorização. Admitindo um processo de meteorização isovolumétrico e que a massa por unidade de volume de um estado mais alterado é inferior à massa por unidade de volume do estado menos alterado. O aumento

do teor (ponderal) de um elemento químico do estado menos alterado para um estado mais alterado indica que, por volume unitário, as perdas em massa desse elemento são inferiores às perdas de massa total. Assim sendo a relação entre as massas do elemento no estado mais alterado sobre o estado menos alterado é sempre superior à relação entre a massa total no estado mais alterado sobre o menos alterado. Admitindo que não há variação da massa por volume unitário do elemento químico em consideração entre estes dois estados de alteração, a relação entre as massas volúmica no estado mais alterado sobre o estado menos alterado é a inversa da relação entre os teores do elemento no estado mais alterado sobre o estado menos alterado. Se houver diminuição da massa do elemento por volume unitário, a relação entre as massas volúmicas será ainda inferior. Se houver uma maior massa do elemento por volume unitário no estado mais alterado, a relação entre as massas volúmicas será superior ao inverso da relação entre os teores.

O tório é um elemento muito menos solúvel do que o urânio, apresentando uma solubilidade extremamente baixa, em água (IAEA, 2003). Em ambientes supergênicos, a mobilização do tório é menos suscetível do que a do urânio. De facto, a solubilidade dos complexos de Th, é geralmente baixa, excepto em soluções ácidas (Langmuir & Herman, 1980). Sendo assim, a mobilidade geoquímica do urânio, é bastante superior à do Th. Como pode ser observado na Tabela 4-14, os teores de urânio, diminuem com o aumento do grau de alteração das amostras de granito estudadas. De facto, o aumento da porosidade das amostras, associado ao maior grau de alteração, permite a lixiviação do U e do Ra, pela água (o U e o Ra apresentam maior mobilidade geoquímica, quando comparados com o Th); podendo ainda favorecer a fuga do  $^{222}\text{Rn}$  para a atmosfera.

Consequentemente, admitindo um valor de massa volúmica aparente ( $\rho_a$ ) para a amostra 1, igual a  $2,67 \text{ g/cm}^3$ , e considerando que a massa de tório por unidade de volume permanece constante entre as amostras 1 e 5 (ou 4), seria obtido um valor de massa volúmica aparente ( $\rho_a$ ), para a amostra 5, igual a  $1,07 \text{ g/cm}^3$  ( $0,4 \times 2,67 \text{ g/cm}^3$ ). Valor este, que considerando a relação [eq. 4-1] levaria a uma massa volúmica do esqueleto sólido ( $\rho_s$ ) igual a  $1,18 \text{ g/cm}^3$  para a amostra 5 (valor que podemos considerar absurdo para as amostras em estudo). De acordo com esta análise, os resultados obtidos indicam que as amostras 4 e 5 são enriquecidas em tório em relação à amostra 1.

Várias possibilidades podem ser colocadas. Por um lado, as amostras poderiam à partida ser mais enriquecidas em tório, independentemente do processo de meteorização (tendo em consideração a variabilidade geoquímica do maciço de Braga e o efeito de escala da amostragem). Por outro lado as amostras poderiam apresentar um enriquecimento epigenético em tório associado com circulação de

soluções ao longo das diaclases e fixação do tório em argilas e hidróxidos de ferro, por remobilização deste elemento a partir de outras zonas do maciço ou do encaixante. Este assunto será retomado no capítulo seguinte com base nas medições de campo.

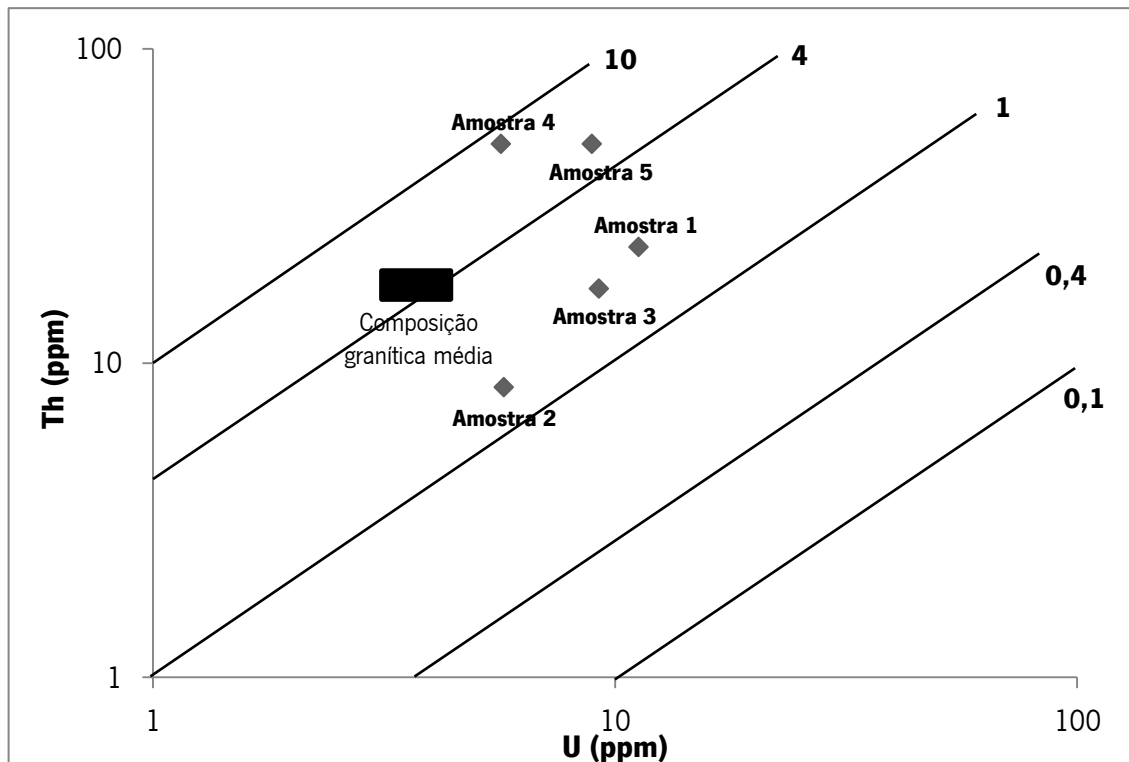
Ainda em relação a este assunto poderá ser interessante considerar informações das águas subterrâneas da região. O estudo de águas subterrâneas na cidade de Braga e seus arredores imediatos, desenvolvido no âmbito do projeto (*POCTI/CTA/35600/1999* - Efeitos de diferentes fontes de poluição na deterioração de monumentos construídos com rochas ígneas; C. Alves, comunicação pessoal, dados inéditos) que os teores em urânio nestas águas variavam entre 0,016 ppb e 157 ppb, com uma mediana igual a 0,064 ppb, enquanto que os teores de Th foram em várias amostras inferiores ao limite de deteção (0,001 ppb), apresentando uma mediana igual a 0,001 ppb e um máximo igual a 0,021 ppb. Comparando os teores destes elementos por amostra, os teores em urânio são sempre superiores (entre 11 vezes e 2000 vezes).

#### 4.3.6. Rácios

Os rácios Th/U, em ppm, relativos às amostras de granito estudadas, foram calculados, estando os seus resultados presentes na Tabela 4-16. Os valores do rácio Th/U obtidos para a amostra 1 (que será a mais próxima de representar o granito original), assim como para as amostras 2 e 3, estão abaixo do valor do rácio Th/U para a crosta continental, indicado por Tzortzis e Tsertos (2004), de 3,0 enquanto que os rácios para as amostras mais alteradas é bastante superior (refletindo o efeito dos processos de meteorização). Estas relações estão representadas na Figura 4-12.

**Tabela 4-16** - Rácios Th/U, em ppm, relativos às amostras do granito em estudo. Rácio (1), calculado usando os dados de actividade específica, em Bq/kg, obtidos por espectrometria -  $\gamma$  e os fatores de conversão de actividade específica, em Bq/kg, para conteúdo, em ppm, presentes em IAEA (1998); Rácio (2) calculado usando os valores de conteúdo, em ppm, obtidos através do método de ICP-MS.

<b>Amostra</b>	<b>1</b>	<b>2</b>	<b>3</b>	<b>4</b>	<b>5</b>
<b>Th/U (ppm) (1)</b>	2,1	1,5	1,9	8,8	5,6
<b>Th/U (ppm) (2)</b>	2,3	1,6	2,1	9,9	7,9



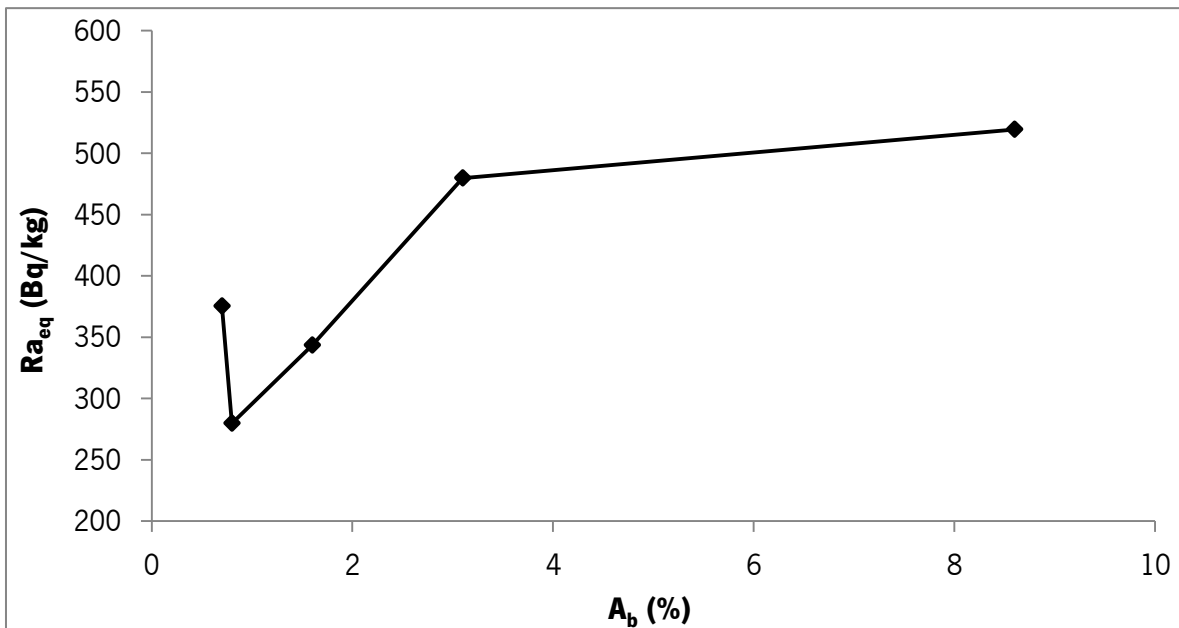
**Figura 4-11** - Comparação de teores de Th e U, em ppm, na composição granítica média e nas amostras de granito estudadas. As linhas diagonais correspondem ao rácio Th/U. A primeira fácies, a preto, corresponde à composição granítica média, e a segunda fácies diz respeito à fácies dos granitos em estudo, com diferentes graus de alteração. São observadas diferentes tendências em relação ao rácio Th/U, nas diferentes fácies. Os valores utilizados dizem respeito ao rácio (1), apresentado na Tabela 4-16. Modelo do gráfico retirado de Cuney *et al.* 1990.

#### 4.4. Índices de atividade para materiais de construção

Os dados utilizados para o cálculo dos índices de atividade, para as cinco amostras do granito estudadas, com diferentes graus de alteração, foram os valores de atividade específica, em Bq/kg, obtidos através do método de espectrometria -  $\gamma$ .

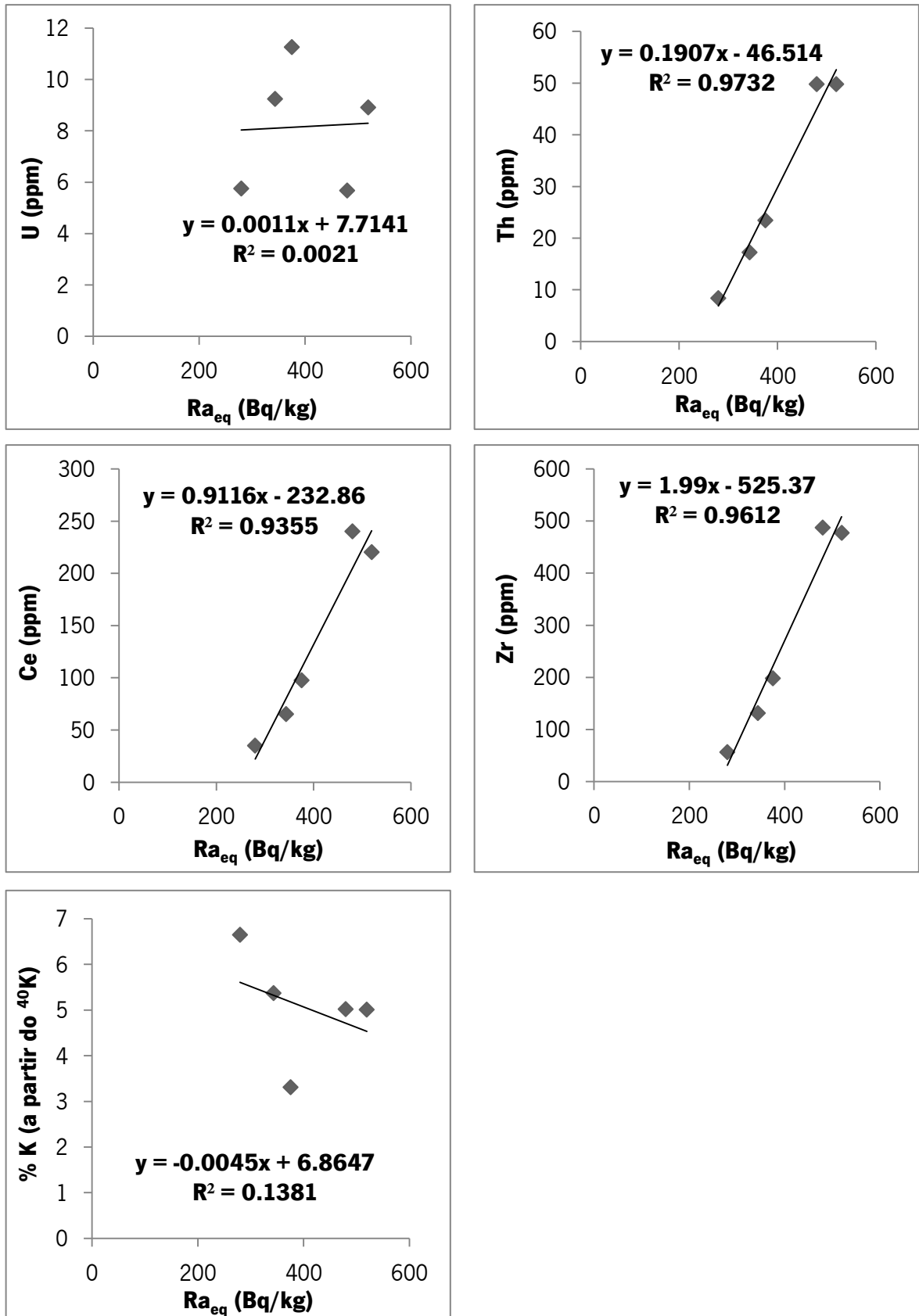
##### 4.4.1. Método do rádio equivalente ( $Ra_{eq}$ )

Os valores estimados para o método de rádio equivalente ( $Ra_{eq}$ ), mais ou menos o erro associado, em Bq/kg, para as cinco amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração, estão representados na Figura 4-12.



**Figura 4-12** - Representação gráfica dos valores de actividade do  $Ra_{eq}$  (mais ou menos erros associados), em Bq/kg, para as cinco amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração.

Os valores de actividade de  $Ra_{eq}$  estão no intervalo 280 – 520 Bq/kg. O maior valor de actividade de  $Ra_{eq}$  foi encontrado na amostra 5, e o menor na amostra 2. É observável, que as amostras mais alteradas (4 e 5), apresentam maiores valores de actividade de  $Ra_{eq}$ . De referir que, apenas as amostras 4 e 5, com 480 e 520 Bq/kg, respetivamente, excedem o valor máximo permitido de 370 Bq/kg (Tabela 1-4, retirada de Sonkawadea, 2008). A Figura 4-13 ilustra a correlação entre a actividade do rádio equivalente ( $Ra_{eq}$ ) e os teores dos elementos traço seleccionados, obtidos por ICP-MS, assim como a relação com teores de potássio estimados, a partir dos dados de actividade do  $^{40}\text{K}$ .

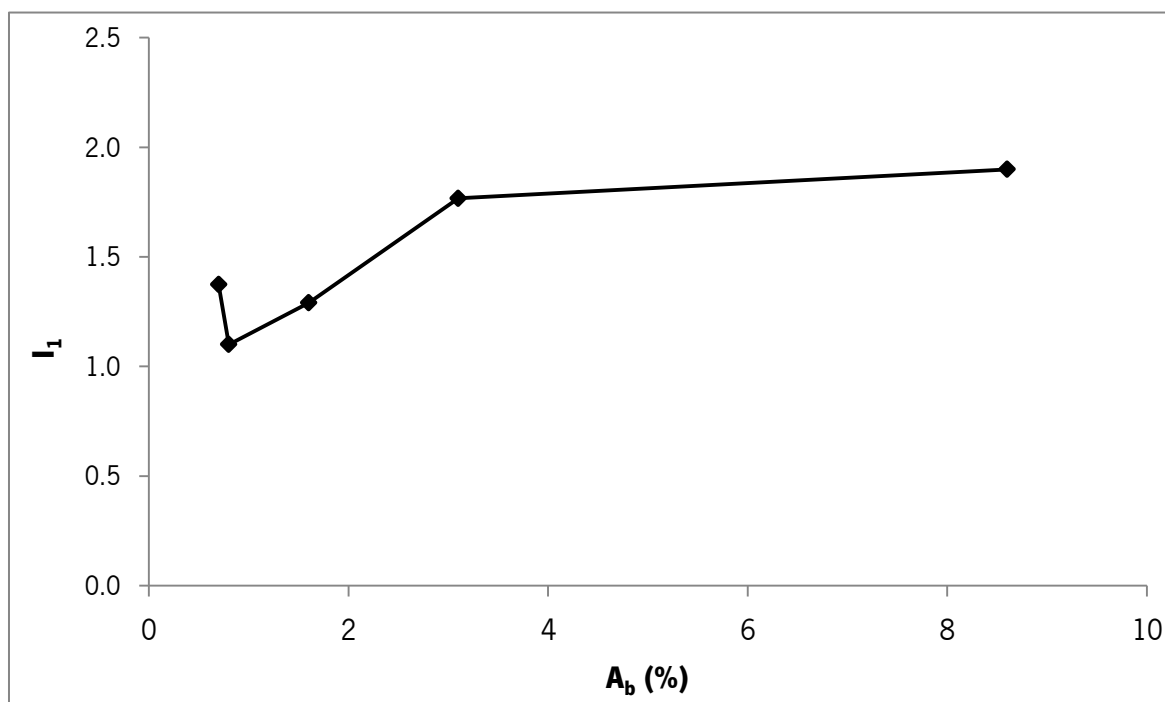


**Figura 4-13** - Correlação da atividade do rádio equivalente ( $Ra_{eq}$ ) vs. o teor de elementos traço selecionados, obtidos pelo método de ICP-MS e de estimativas de %K calculadas a partir dos resultados de atividade do  $^{40}K$ .

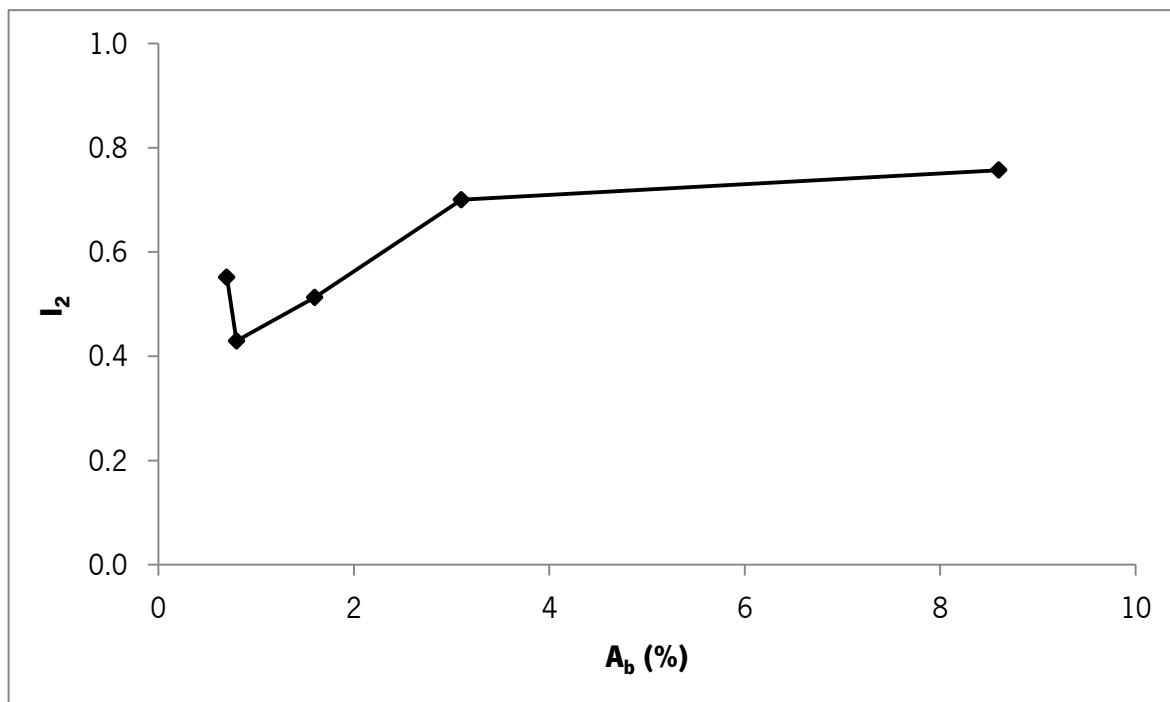
A Figura 4-13 mostra que, a %K (estimada a partir da atividade do  $^{40}\text{K}$ ) não mostra qualquer tipo de correlação ( $R^2 =$  aproximadamente 0,14) com a atividade de  $Ra_{eq}$ . Os gráficos dos elementos traço seleccionados, com exceção do U, mostram uma boa correlação do  $Ra_{eq}$  com o Th, Ce e Zr ( $R^2 =$  aproximadamente 0,97, 0,94 e 0,96, respetivamente). Todos estes elementos traço são constituintes radioativos comuns em minerais como a allanite e na monazite. A boa correlação existente entre os elementos de Th, Ce e Zr e a actividade do  $Ra_{eq}$  sugere a potencialidade destes elementos na determinação dos índices de concentração radioativa, em materiais de construção de pedra (Marocchi *et al.*, 2011).

#### 4.4.2. Índices gama ( $I_\gamma$ )

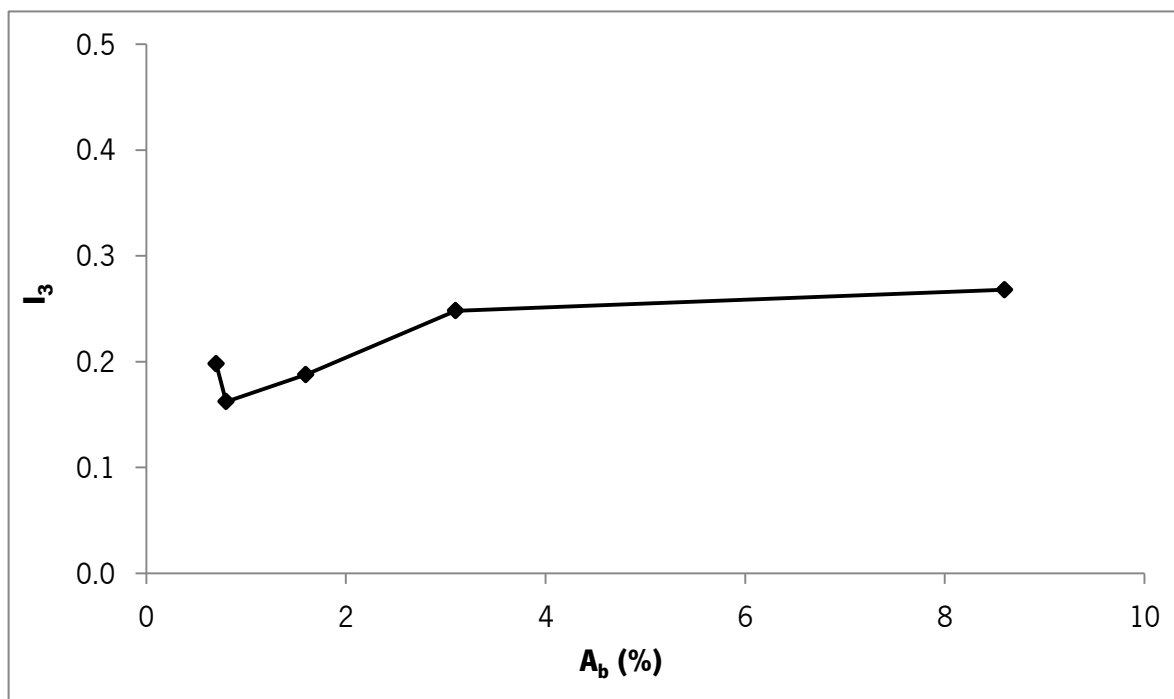
Os valores estimados para os diferentes índices gama ( $I_1$  – para materiais de construção;  $I_2$  - para ruas e parques infantis; e  $I_3$  – para aterros), em Bq/kg, para as cinco amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração, são apresentados de seguida. Os valores mais elevados foram encontrados na amostra 5 e os mais baixos na amostra 2.



**Figura 4-14** - Representação gráfica dos valores do  $I_1$  para materiais de construção, nas cinco amostras de granito com diferentes graus de alteração em função dos valores de absorção de água.



**Figura 4-15** - Representação gráfica dos valores do  $I_2$ , para ruas e parques infantis, nas cinco amostras de granito com diferentes graus de alteração em função dos valores de absorção de água.



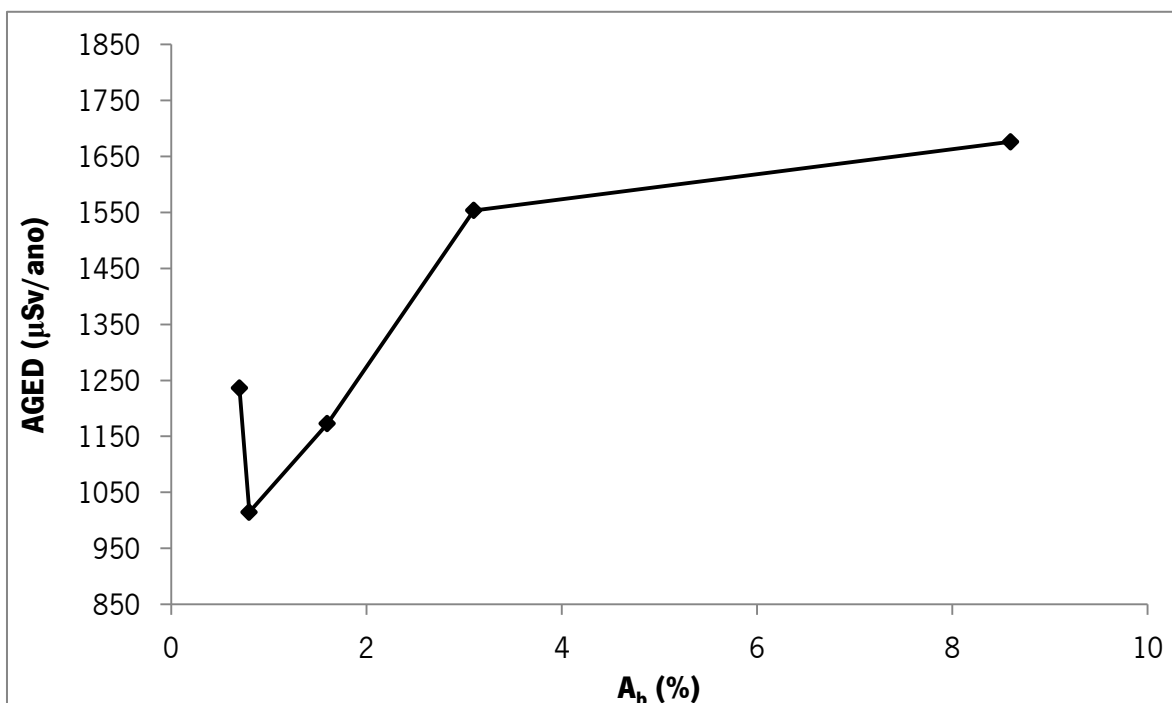
**Figura 4-16** - Representação gráfica dos valores do  $I_3$ , para materiais de construção, nas cinco amostras de granito com diferentes graus de alteração em função dos valores de absorção de água.



Os resultados da Figura 4-14 sugerem que todas as cinco amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração, excedem o valor 1, indicado por Markkanen (1995), para o índice gama ( $I_\gamma$ ) de materiais de construção (este limite corresponderá ao limite de dose equivalente anual de 1 mSv, para materiais utilizados como unidades de alvenaria (“bulk amounts”) nas estruturas, indicado em EC (1999) ) e ultrapassariam, obviamente, o valor limite para um critério de 0,3 mSv/a. Todavia, nenhuma das amostras estudadas ultrapassa os limiares indicados em EC (1999) para materiais com utilização restrita (por exemplo revestimentos superficiais) correspondentes a 2 (para o critério de 0,3 mSv/a) e 6 (para o critério de 1 mSv/a). Relativamente aos índices de atividade  $I_2$  e  $I_3$  (Figuras 4-15 e 4-16, respetivamente), nenhuma das amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração, excede o valor 1, indicado por Markkanen, (1995), para os índices gama ( $I_\gamma$ ). Os valores de todos os índices gama ( $I_\gamma$ ), mostram valores mais elevados nas amostras mais alteradas.

#### 4.4.3. Dose equivalente anual gonadal (*AGED*)

Os valores *AGED* estimada em  $\mu\text{Sv}/\text{ano}$ , para todas as cinco amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração, foram calculados, estando representados na Figura 4-17.

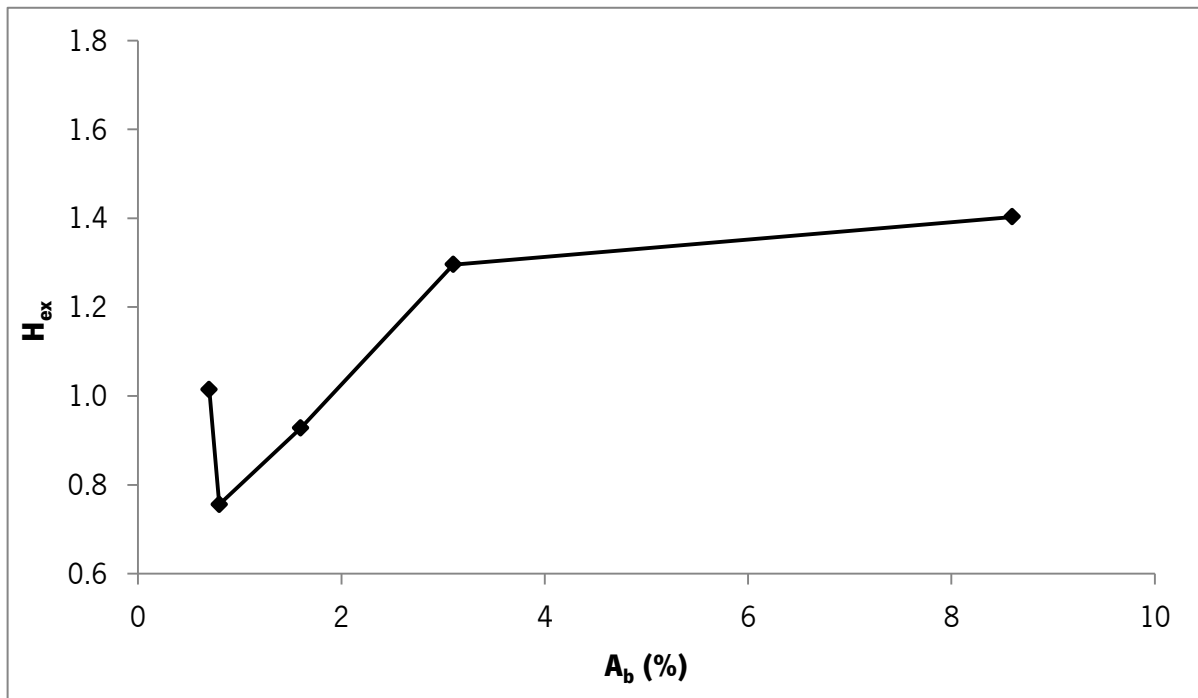


**Figura 4-17** - Representação gráfica dos valores de *AGED*, em  $\mu\text{Sv}/\text{ano}$ , para as cinco amostras de granito estudadas.

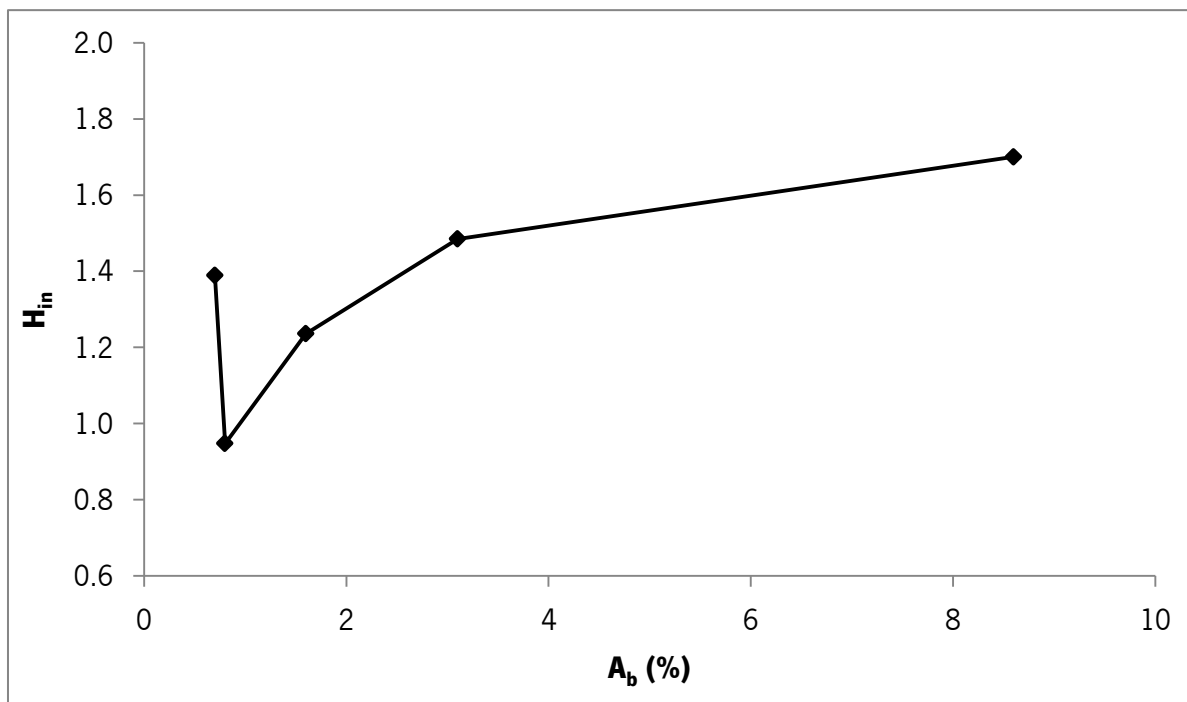
Os valores de  $AGED$  estão no intervalo entre  $1015 \mu\text{Sv/ano}$  (amostra 2) e  $1676 \mu\text{Sv/ano}$  (amostra 5). Assim, como no  $Ra_{eq}$ , é observável que as amostras mais alteradas apresentam valores de  $AGED$  mais elevados (Figura 4-17). Os resultados da Tabela 4-17 indicam que todas as amostras apresentam valores de  $AGED$  superiores, quando comparados com o  $AGED$  de uma casa contendo concentrações de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$ , idênticas à média mundial do solo (Arafa, 2004).

#### 4.4.4. Índices de perigo externo e interno ( $H_{ex}$ e $H_{in}$ )

Os valores de  $H_{ex}$  e  $H_{in}$  para as cinco amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração, foram calculados, estando representados nas Figuras 4-18 e 4-19, respetivamente.



**Figura 4-18** - Representação gráfica dos valores de  $H_{ex}$  para as amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração.



**Figura 4-19** - Representação gráfica dos valores de  $H_{in}$  para as amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração.

O  $H_{ex}$  varia entre 0,76 - 1,40 sendo que o valor mais elevado foi encontrado na amostra 5, e o mais baixo na amostra 2. Os valores de  $H_{ex}$  estimados para as cinco amostras de granito estudadas, são inferiores a uma unidade nas amostras 2 e 3 (0,76 e 0,93, respetivamente) e superiores a 1 nas amostras 1, 4 e 5 (1,01, 1,30, 1,40, respetivamente). O  $H_{in}$  estimado varia entre 0,95 - 1,70, sendo que o valor mais elevado foi encontrado na amostra 5 e e mais baixo na amostra 2. Apenas a amostra 2 apresenta um valor inferior a uma unidade (Huda, 2011). É claramente observável, como no caso do  $Ra_{eq}$  e do  $AGED$  que as amostras mais alteradas apresentam maiores valores de  $H_{ex}$  e de  $H_{in}$ .

#### 4.4.5. Comparação de índices

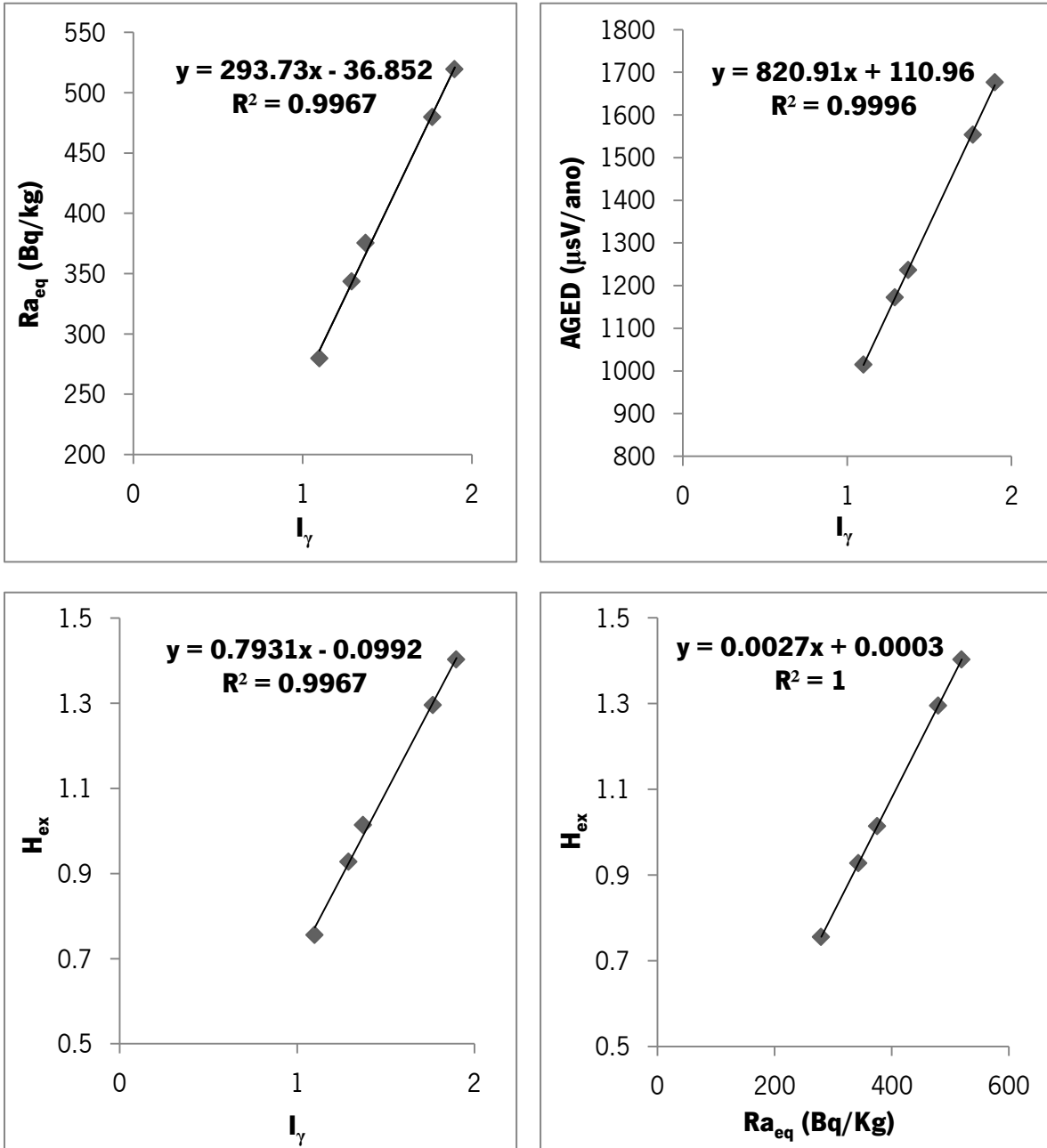
A Tabela 4-17 faz um resumo de todos os valores estimados para os índices de atividade atrás calculados.

**Tabela 4-17** - Valores médios estimados para os  $I_1$ ,  $Ra_{eq}$ ,  $AGED$ ,  $H_{ex}$ ,  $H_{in}$ ,  $H_{R\%}$  nas cinco amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração.

Amostra	$I_1$	$I_2$	$I_3$	$Ra_{eq}$ (Bq/kg)	AGED ( $\mu$ Sv/ano)	$H_{ex}$	$H_{in}$	$H_r$ (%)
<b>1</b>	1,37	0,55	0,20	375	1236	1,01	1,39	37,62
<b>2</b>	1,10	0,43	0,16	280	1015	0,76	0,95	25,40
<b>3</b>	1,29	0,51	0,19	344	1173	0,93	1,24	33,21
<b>4</b>	1,77	0,70	0,25	480	1554	1,30	1,48	14,60
<b>5</b>	1,90	0,76	0,27	520	1676	1,40	1,70	21,19

Todas as cinco amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração excedem o valor 1, indicado por Markkanen (1995) para o  $I_1$ . Relativamente aos índices  $I_2$  e  $I_3$ , nenhuma das cinco amostras de granito, excede o valor de 1, indicado por Markkanen (1995). Apenas as amostras 2 e 3 mostraram valores de  $Ra_{eq}$  inferiores ao valor médio mundial de 370 Bq/kg (Sonkawadea, 2008). Todas as amostras mostraram valores de  $AGED$  superiores, quando comparados ao valor  $AGED$  de uma casa, com concentrações de  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{238}\text{U}$  iguais á média mundial do solo (Arafa, 2004). Para o índice de perigosidade externa ( $H_{ex}$ ), apenas as amostras 2 e 3 não excedem o valor de 1, indicado por Huda (2011). Para o índice de perigosidade interna ( $H_{in}$ ), apenas a amostra 2 não excede o valor de 1, indicado por Huda, (2011). As amostras 1 e 4 possuem, respetivamente, o maior e menor valor de atividade específica de  $^{238}\text{U}$ , das cinco amostras de granito estudadas, apresentando possivelmente, o maior e menor valor de atividade específica de  $^{226}\text{Ra}$ , respetivamente. Estando o  $H_{R\%}$  diretamente relacionado com a atividade específica, em Bq/kg, do  $^{226}\text{Ra}$ , é compreensível que as amostras 1 e 4 apresentem, respetivamente, o maior e o menor valor calculado para o  $H_{R\%}$ .

A Figura 4-20 compara os resultados dos diferentes índices, investigando as possíveis correlações. As atividades 370, 260 e 4810 Bq/kg, são os denominadores utilizados no cálculo do  $H_{ex}$  e os parâmetros utilizados para definir a atividade do rádio equivalente ( $Ra_{eq}$ ), pelo que, o  $H_{ex}$  e o  $Ra_{eq}$  estão directamente relacionados ( $R^2= 1$ ). Para os restantes índices, os parâmetros utilizados para definir os fatores de multiplicação e os denominadores variam entre os diferentes índices, sendo observada uma maior dispersão entre si.



**Figura 4-20** – Comparações emparelhadas dos resultados dos diferentes índices ( $I_\gamma$ ,  $Ra_{eq}$ , AGED,  $H_{ex}$ , e o  $H_{in}$ ) nas amostras de granito estudadas com diferentes graus de alteração.

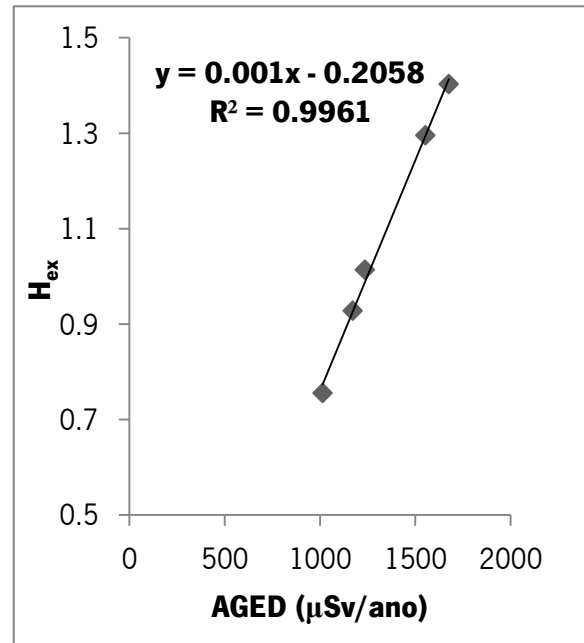
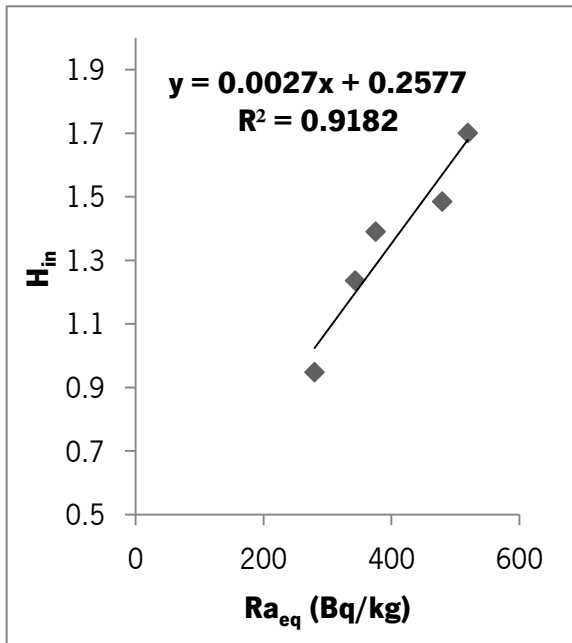
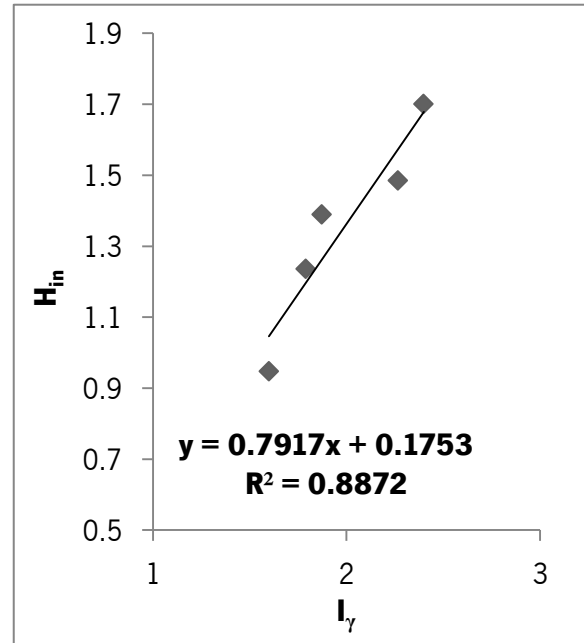
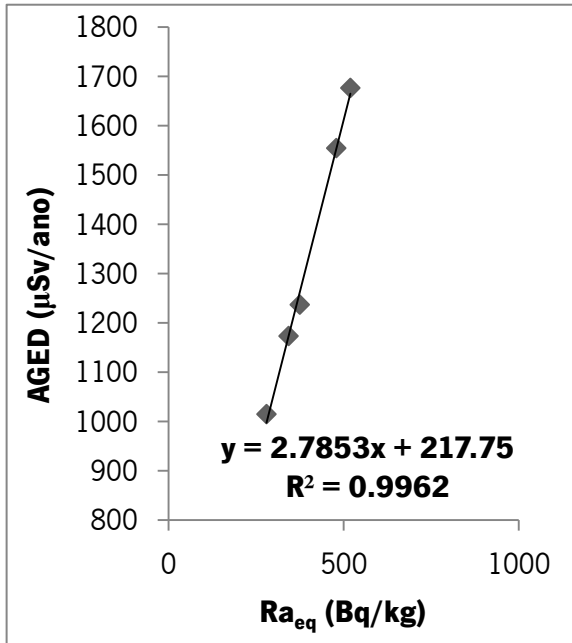
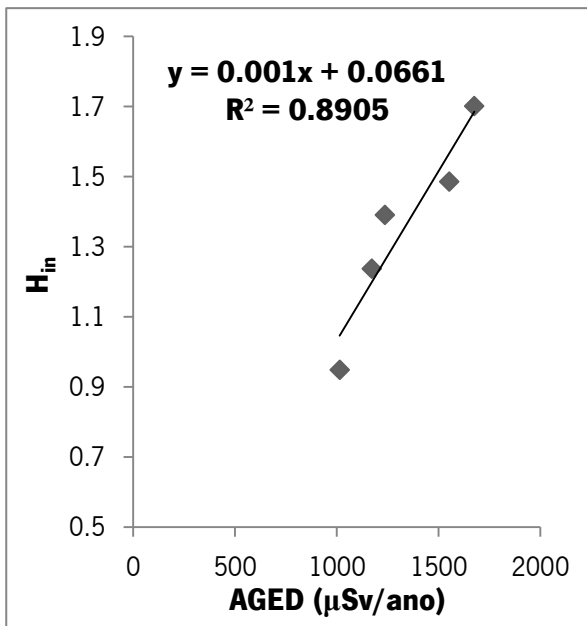


Figura 4-20 – (Continuação).



**Figura 4-20** – (Continuação).

#### **4.5. Estimativa da taxa de dose gama absorvida**

Tendo em consideração que os fatores utilizados por Markkanen (1995) para o cálculo da taxa de dose gama absorvida, a partir das atividades específicas dependem da massa volúmica aparente dos materiais, considerou-se uma massa volúmica igual a 2525 kg/m<sup>3</sup>, correspondente à média entre 2670 kg/m<sup>3</sup> e 2380 kg/m<sup>3</sup>.

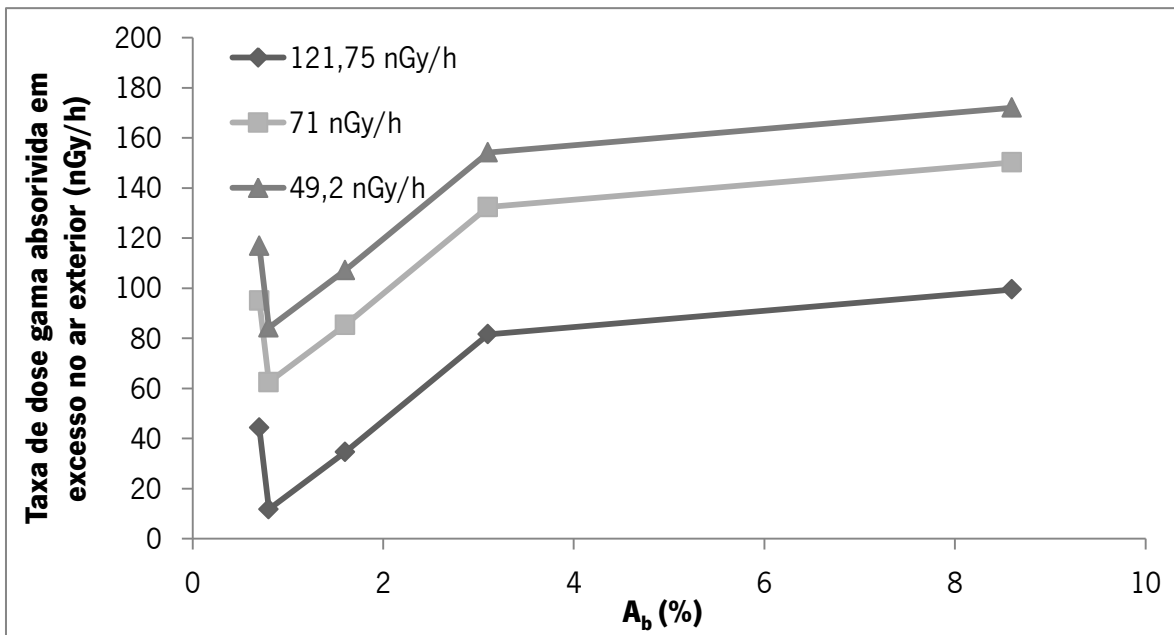
Markkanen (1995) discute a estimativa da contribuição em excesso dos materiais de construção, em relação ao ambiente natural (radiação gama Terrestre e cósmica). Para este efeito, é proposto que à taxa de dose gama absorvida no ar (no interior e no exterior), dos materiais de construção seja removida a contribuição do fundo natural. Numa perspetiva conservadora foram considerados diferentes valores de contribuição de fundo. O valor mais elevado considerado foi de 238,08 nGy/h, correspondente à taxa de dose gama absorvida no ar exterior máxima (taxa de dose gama absorvida no ar exterior média, mais o erro associado), obtida para amostra 5; o valor de 121,75 nGy/h foi também utilizado e corresponde à taxa de dose gama absorvida no ar exterior mínima (taxa de dose gama absorvida no ar exterior média, menos o erro associado), calculada para a amostra 2; o valor de 71 nGy/h correspondente à contribuição crustal média indicada por Markkanen (1995); o valor de 49,2 nGy/h, o qual corresponde à taxa de exposição mínima na cidade de Braga, com base na Carta de Radiação Gama Natural, 1: 200 000 (Figura 2-3), à qual foi subtraído o valor médio mundial de

radiação cósmica gama, de 30 nGy/h, indicado em UNSCEAR (2010). Este valor é próximo do fundo indicado em EC 112 (50 nGy/h). Para os outros valores de contribuição de fundo (calculadas a partir dos valores de composição), não foi subtraída a radiação cósmica gama.

#### **4.5.1. Estimativa da taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior**

As estimativas das taxas de dose gama absorvidas no ar exterior, para as diferentes amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração, foram calculadas com base num solo com dimensões 20 m x 20 m, à distância de 1 m, e uma espessura de 0.2 m, indicado por Markkanen (1995). Tendo em conta o valor considerado de 2525 kg/m<sup>3</sup>, e uma espessura do solo de 0,2 m, foi obtido um valor de massa específica de 505 kg/m<sup>2</sup> – (2525 kg/m<sup>3</sup> x 0.2 m). Utilizando os fatores de conversão dos diferentes radionuclídeos, de atividade específica, em Bq/kg, para taxa de dose gama absorvida no ar exterior, em pGy/h, correspondentes a uma massa específica de 500 Kg/m<sup>2</sup>, indicado por Markkanen (1995), foram calculados os valores de taxa de dose gama absorvida no ar exterior, em nGy/h, utilizando as actividades específicas do <sup>40</sup>K, do <sup>232</sup>Th e do <sup>238</sup>U, obtidas por espectrometria -  $\gamma$ , para as cinco amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração (Tabela 4-9). Para o cálculo da taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior, à taxa de dose gama absorvida no ar exterior média, dos materiais de construção foi removida a contribuição do fundo natural, estando os resultados presentes na Figura 4-21. O valor de contribuição de 238,08 nGy/h, corresponde à taxa de dose gama absorvida no ar exterior máxima (taxa de dose gama absorvida no ar exterior média, mais o erro associado), obtida para amostra 5 não foi considerado pois, sendo superior aos valores médios de taxa de dose gama absorvida no ar exterior para as diferentes amostras, foram obtidos valores negativos de taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior.





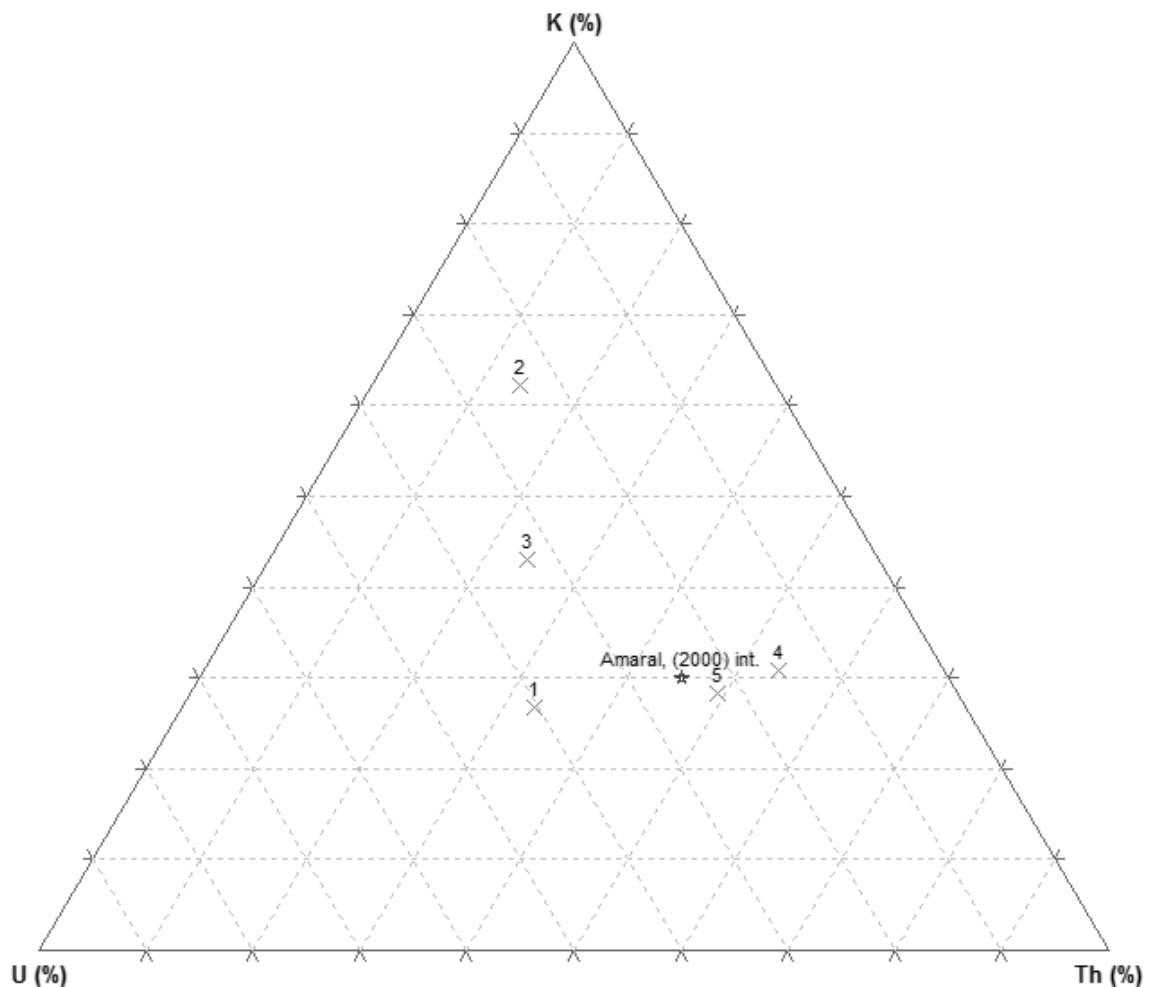
**Figura 4-21** - Valores médios de taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior, nas cinco amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração. Valores calculados usando os factores de conversão de actividade específica, em Bq/kg, para taxa dose gama absorvida no ar exterior, em pGy/h, indicados por Markkanen (1995). Aos valores de taxa de dose gama absorvida no ar exterior, dos materiais de construção, foram removidas as contribuições de fundo, acima referidas.

Independentemente do valor de contribuição e fundo considerado, é observável na Figura 4-21, um aumento da taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior, para as amostras mais alteradas, e ainda que, o menor e o maior valor de taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior, foram sempre encontrados nas amostras 2 e 5, respetivamente.

**Tabela 4-18** – Contribuições médias relativas em %, dos elementos das diferentes séries, para a taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior, das amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração. Valores calculados usando os fatores de conversão de atividade específica, em Bq/kg, para dose gama absorvida no ar exterior, em pGy/h, indicados por Markkanen (1995).

Amostra	$^{40}\text{K}$ (%)	$^{238}\text{U}$ (%)	$^{232}\text{Th}$ (%)
1	26,70	40,30	33,00
2	62,30	23,90	13,80
3	43,00	32,80	24,20
4	30,90	15,50	53,60
5	28,30	22,40	49,30

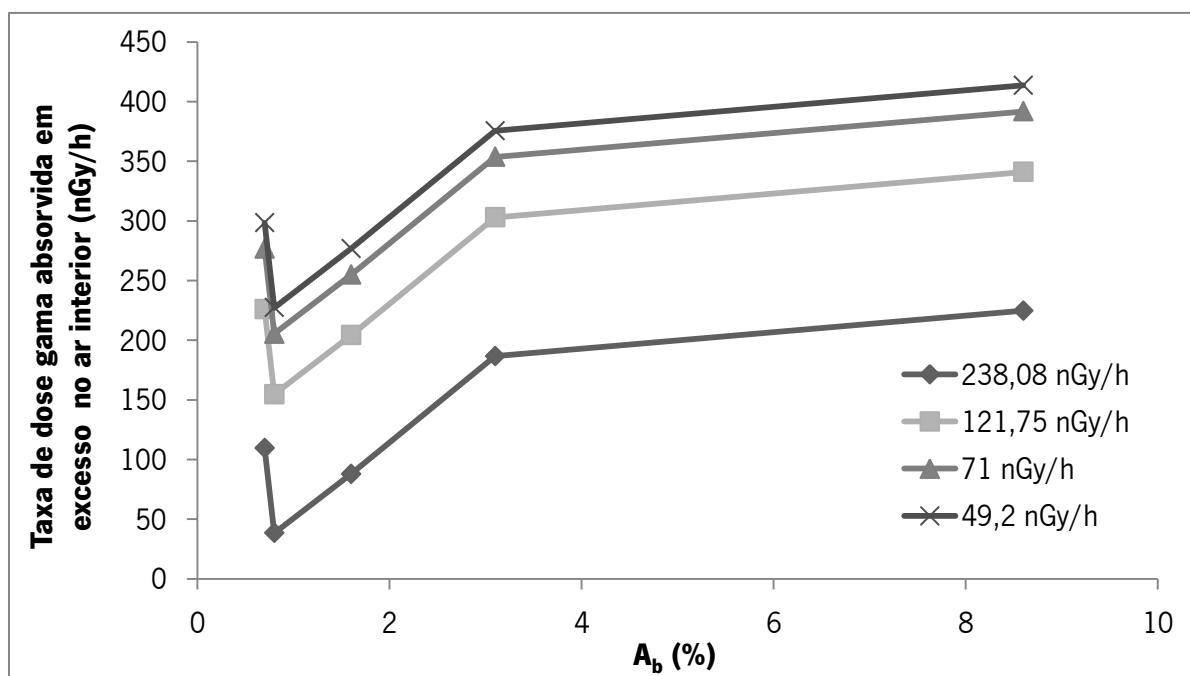
Na amostra 1, os elementos da série do urânio, com 40,30 % apresentam a maior contribuição relativa para a taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior, seguido pelos elementos da série do Th e o K (33 e 26,70 %, respetivamente). Nas amostras 2 e 3, o  $^{40}\text{K}$  é o elemento com maior contribuição relativa para a dose absorvida em excesso (62,30 e 43,0 %, respetivamente). Nas amostras com maior grau de alteração, amostras 4 e 5, os elementos da série do Th, são responsáveis pela maior contribuição relativa para a taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior (53,60 e 49,30 %, respetivamente), seguidos pelos elementos da série do K e do U, respetivamente. Apenas na amostra 5, o K e o U têm um peso semelhante para a contribuição relativa, relativamente à taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior (28,30 e 22,40 %, respetivamente). Como é visível na Figura 4-22, a amostra 5, é a que apresenta contribuições médias relativas semelhantes às de um solo de origem ígnea, indicado por Amaral (2000), presente na Tabela 2-4.



**Figura 4-22** – Gráfico ternário das contribuições médias relativas, em %, dos elementos U, Th e K, para a taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior, para as amostras de granito estudadas (1, 2, 3, 4 e 5) e para os valores médios indicados para solos derivados de rochas intrusivas indicados em Amaral (2000).

#### 4.5.2. Estimativa da taxa de dose gama absorvida em excesso no ar interior

As estimativas das taxas de dose gama absorvidas no interior, foram calculadas, tendo como base uma divisão (quarto), indicado por Markkanen (1995), com as seguintes dimensões: 12 m x 7 m x 2,8 m, e as suas estruturas (paredes, chão e teto) com as seguintes características: 20 cm de espessura de betão e uma densidade de 2320 kg/m<sup>3</sup>. Tendo em conta o valor de 2525 kg/m<sup>3</sup> considerado para a massa volúmica destas amostras e a espessura de 20 cm de paredes, chão e teto, foi calculada uma massa específica do material da parede, de 505 kg/m<sup>2</sup> (2525 kg/m<sup>3</sup> x 0.20 m). Utilizando os fatores de conversão dos diferentes radionuclídeos, de atividade específica, em Bq/kg, para taxa de dose gama absorvida no ar interior, em pGy/h, correspondentes a uma massa específica de 500 kg/m<sup>2</sup>, indicado por Markkanen (1995), foram calculados os valores de taxa de dose gama absorvida no interior, mais ou menos o erro associado, em nGy/h, utilizando as actividades específicas do <sup>40</sup>K, do <sup>232</sup>Th e do <sup>238</sup>U, obtidas por espectrometria -  $\gamma$ , para as cinco amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração (Tabela 4-9). Para o cálculo da taxa de dose gama absorvida em excesso no ar interior, à taxa de dose gama absorvida no ar interior média dos materiais de construção, foi removida a contribuição de fundo natural, estando os resultados presentes na Figura 4-23.

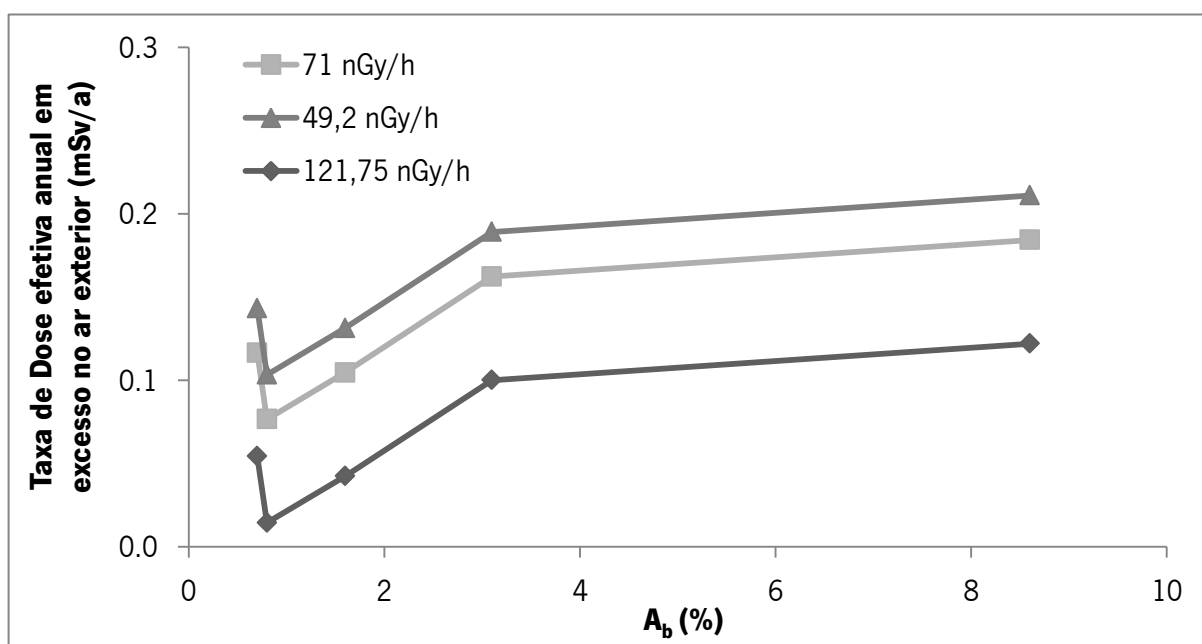


**Figura 4-23** - Taxa de dose gama absorvida em excesso no ar interior, em nGy/h, nas cinco amostras de granito estudado, com diferentes graus de alteração. Valores calculados usando os fatores de conversão de atividade específica, em Bq/kg, para dose gama absorvida no ar exterior, em pGy/h, indicados por Markkanen (1995). Aos valores de taxa de dose gama absorvida no ar interior, foram removidas as contribuições de fundo natural, acima referidas (e indicadas neste gráfico).

Independentemente do valor de contribuição de fundo natural considerado, é observável na Figura 4-23, um aumento da taxa de dose gama absorvida em excesso no ar interior, com o aumento do grau de alteração das amostras, e ainda que o menor e o maior valor de taxa de dose gama absorvida em excesso no ar interior, foram sempre encontrados nas amostras 2 e 5, respetivamente.

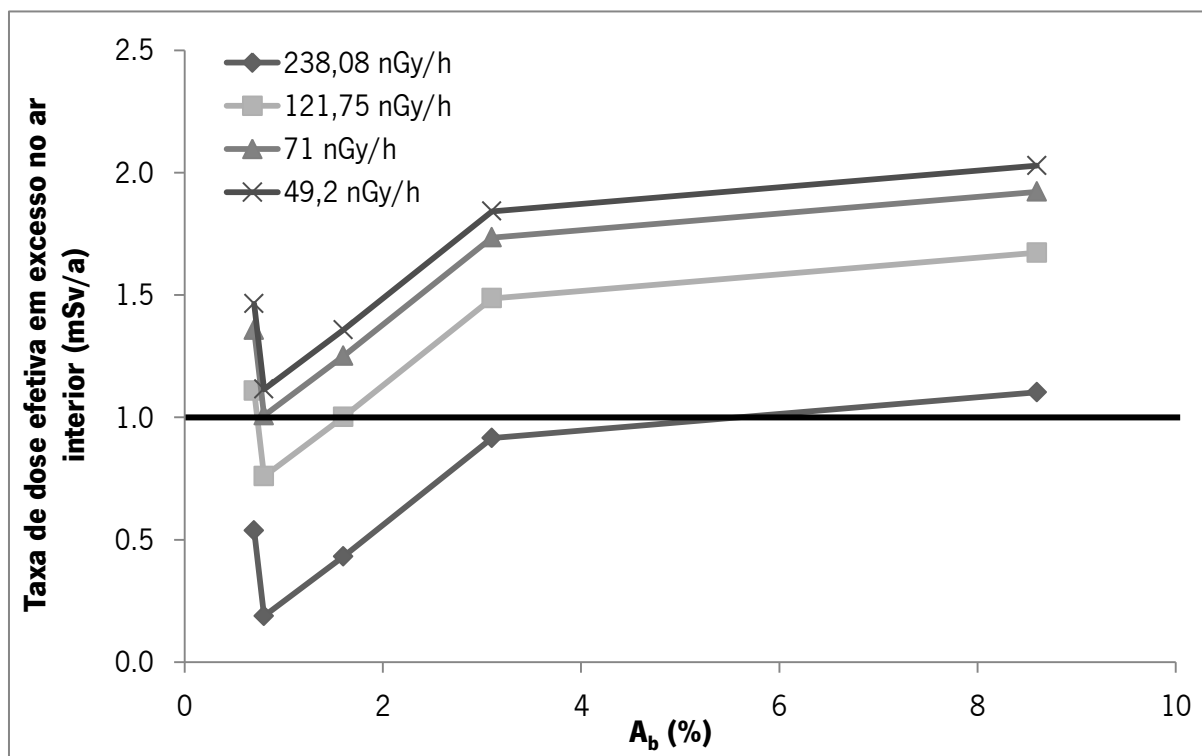
#### 4.6. Doses efetivas externas

Nesta secção apresentam-se os valores médios estimados para as taxas de dose efetivas em excesso no exterior e no interior, (Figura 4-24 e 4-25, respetivamente), em mSv/a, utilizando as [eq. 1-7 e 1-8], respetivamente para as cinco amostras de granito estudadas. As taxas de dose efetivas em excesso no exterior e no interior, em mSv/a, foram calculadas usando os valores calculados, de taxas de dose gama absorvidas em excesso no ar exterior e interior presentes nas Figuras 4-21 e 4-23, respetivamente. Para ambas as doses efetivas, foi utilizado um fator de 0,7 Sv/Gy, indicado em Markkanen (1995), para conversão de dose gama absorvida, em nGy, para dose efetiva, em nSv. Para a taxa de dose efetiva em excesso no exterior e no interior, foram também considerados os fatores de ocupação de 0,2 e 0,8, respetivamente, indicados em UNSCEAR (2010).



**Figura 4-24** – Valores de taxas de dose efetivas em excesso no ar exterior, devido à contribuição dos materiais no exterior, para as cinco amostras do granito estudadas, com diferentes graus de alteração. Valores calculados utilizando os valores médios da taxa de dose gama absorvida em excesso no ar exterior, presentes na Figura 4-21, considerando um fator de ocupação no exterior de 0,2, e um fator de conversão de 0,7, de dose gama absorvida (nGy), para dose efectiva (nSv), indicados em UNSCEAR (2010).

É observável na Figura 4-24 que as amostras com maior grau de alteração, apresentam os mais valores de dose efetiva anual em excesso no exterior. De facto, independentemente do valor de contribuição de fundo natural considerado, as amostras 2 e 5, apresentam o menor e o maior valor de dose efetiva anual em excesso no exterior.



**Figura 4-25** - Valores de taxas de dose efetivas em excesso no interior, para as cinco amostras do granito estudadas, com diferentes graus de alteração. Linha horizontal, a preto, mais espessa, diz respeito ao valor máximo de dose efetiva anual, de 1 mSv/a, indicado por Markkanen (1995). Valores calculados utilizando os valores médios da taxa de dose gama absorvida em excesso no ar interior, presentes na Figura 4-23, considerando um fator de ocupação no interior de 0,8, e um fator de conversão de 0,7, de dose gama absorvida (nGy), para dose efetiva (nSv), indicados em UNSCEAR (2010).

Foram também avaliadas as contribuições em excesso da dose efetiva resultante das amostras estudadas considerando diferentes valores de contribuição de fundo (ver secção anterior). Independentemente do valor de contribuição de fundo natural considerado, é observável na Figura 4-25, um aumento da dose efetiva anual no interior, com o aumento do grau de alteração das amostras, isto é, as amostras com maior grau de alteração, apresentam os maiores valores de taxa de dose efetiva anual no interior. De facto, as amostras 2 e 5, apresentam o menor e o maior valor de dose efetiva anual no interior, respetivamente, independentemente do valor de contribuição de fundo considerada.

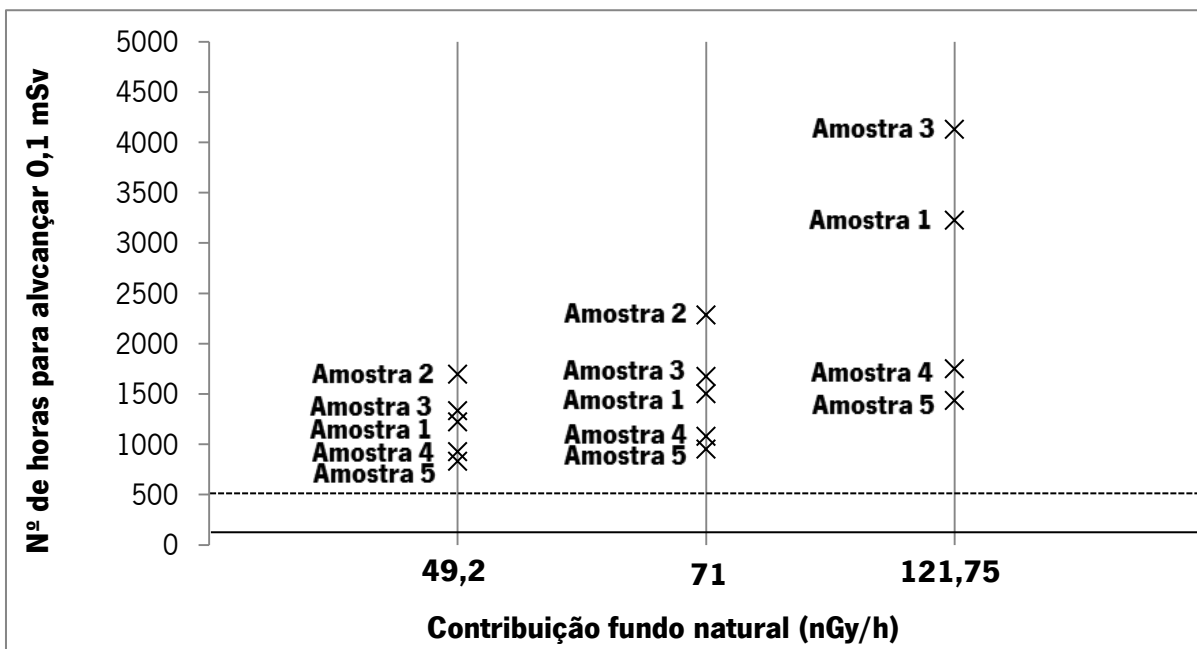
Considerando o valor de contribuição de fundo de 238,08 nGy/h, correspondente a uma perspectiva menos conservadora (no sentido em que corresponde ao fundo mais elevado, minimizando, conseqüentemente, a importância da eventual contribuição dos materiais de construção), as amostras estudadas, com exceção da amostra 5, não excedem o valor máximo de contribuição em excesso de dose efetiva anual no interior, de 1 mSv/a, indicado por Markkanen (1995); No caso, em que o valor de contribuição do fundo natural considerado foi de 121,75 nGy/h, apenas as amostras 2 e 3 não excedem o valor máximo de dose efetiva anual no interior, de 1 mSv/a, indicado por Markkanen (1995). Nas perspectivas mais conservadoras (no sentido em que se considera um fundo mais baixo, aumentando a importância da contribuição dos materiais), em que os valores de contribuição de fundo natural considerados foram de 71 e 49,2 nGy/h, todas as amostras de granito estudadas, excedem o valor máximo de dose efetiva anual no interior, de 1 mSv/a, indicado por Markkanen (1995).

É possível comparar os resultados de dose específica que serão obtidos para materiais com determinadas atividades específicas variando a massa volúmica e/ou a espessura utilizando os dados de Markkanen (1995) para coeficientes para transformação da atividade específica em taxa de dose absorvida para um determinado valor de massa específica por área (seguidamente designados simplesmente por coeficientes) nesta estrutura e para diferentes valores de "massa específica de material de parede" (que será aqui designada por massa por unidade de área, calculada pelo produto da massa volúmica do material pela espessura, com unidades de kg/m<sup>2</sup>). Nesta análise será considerado o valor mais baixo entre os considerados neste estudo para a taxa de dose absorvida do fundo regional (49,2 nGy/h). Como foi apresentado anteriormente, todas as amostras apresentaram valores de índice de concentração de atividades para os materiais de construção ( $I_1$ ) superiores a 1,0 (entre 1,1 para a amostra 2 e 1,9 para a amostra 5). Considerando a amostra 2 e os coeficientes para 500 kg/m<sup>2</sup> (por exemplo 2500 kg/m<sup>3</sup> e uma espessura igual a 0,2 m) teríamos uma dose efetiva anual igual a 1,1 mSv por ano. Todavia, se forem considerandos os coeficientes para 100 kg/m<sup>2</sup> (por exemplo a mesma massa volúmica para uma espessura de 0,025 m, próxima do que é comum nas aplicações recentes da pedra natural no interior) seria obtida uma dose efetiva igual a 0,32 mSv por ano (pouco acima do critério de 0,30 mSv/a). Em relação à amostra 5, a consideração de coeficientes para 100 kg/m<sup>2</sup> leva ao cálculo de uma dose efetiva igual a 0,7 mSv por ano (abaixo portanto do limite de 1,0 mSv/a).

No caso de utilização restrita dos materiais, nomeadamente como revestimentos, a avaliação realizada poderá ser considerada conservadora no sentido em que os revestimentos tem algum efeito

de proteção em relação à contribuição dos materiais do substrato, pelo que o cálculo deverá ser feito considerando o excesso em relação à contribuição desses materiais. Nos cálculos de Markkanen (1995) uma massa por unidade de área igual a 50 kg/m<sup>2</sup> (por exemplo um material com 2 cm de espessura e 2500 kg/m<sup>3</sup> de massa volúmica) implicará uma redução próxima dos 15% da radiação do substrato. Já a utilização de materiais com massa por unidade de área de 500 kg/m<sup>2</sup> (por exemplo 20 cm de espessura para 2500 kg/m<sup>3</sup>) implicaria uma redução próxima de 90% da radiação do substrato.

Numa outra perspetiva, foram calculadas estimativas do número de horas necessárias para alcançar o valor máximo de dose efetiva anual no exterior de 0,1 mSv valor indicado em Markkanen (1995) para ruas e parques infantis assim como aterros (Figura 4-26), considerando diferentes possibilidades de fundo natural. Nessa figura são apresentados os tempos indicados como típicos para estas aplicações em Markkanen (1995): 500 h por ano para ruas e jardins infantis e 150 h para aterros.



**Figura 4-26** - Número de horas necessário para alcançar o valor máximo de dose efetiva em excesso no exterior de 0,1 mSv indicado por Markkanen, (1995), para materiais utilizados em ruas e parques infantis, e em aterros. Valores censurados na parte superior a 5000 horas. Linhas horizontais, a preto, contínua e a tracejada, dizem respeito à média do número de horas, consideradas por Markkanen (1995), de ocupação de ruas e parques infantis (500 horas por ano) e de aterros (150 horas por ano). Foi considerado um factor de conversão de 0,7, de dose gama absorvida (nGy), para dose efetiva (nSv), indicados em UNSCEAR, (2010).

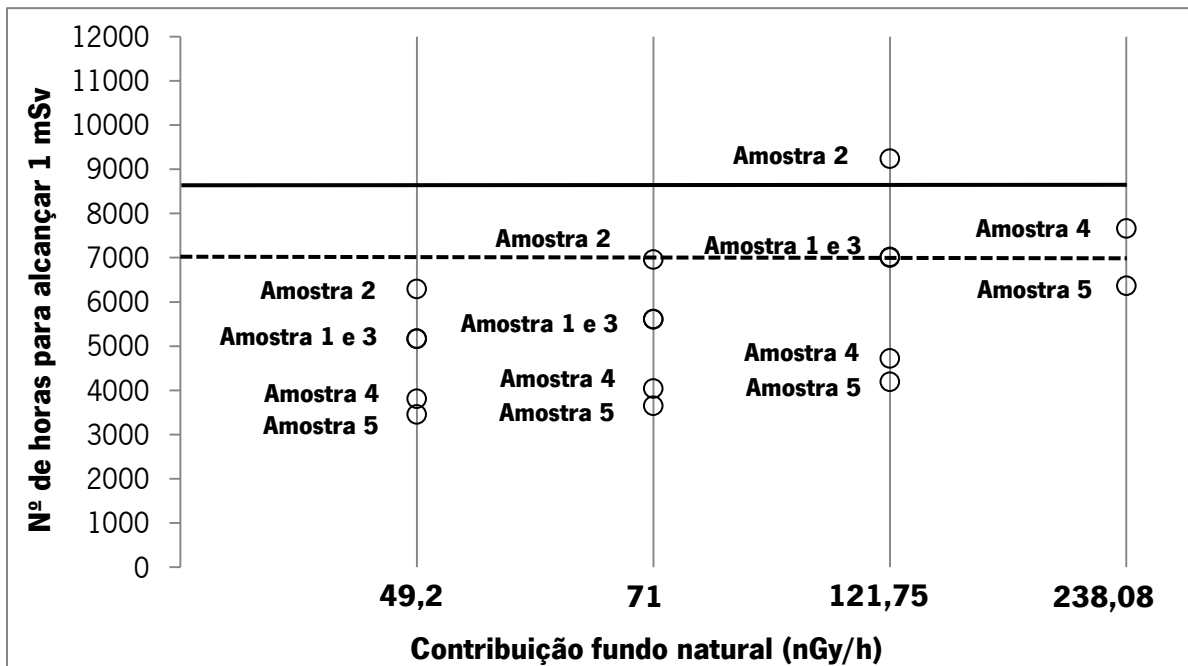
Como podemos observar na Figura 4-26, nenhuma das amostras de granito estudadas excede o limite de dose efetiva anual no exterior de 0,1 mSv/a, indicado por Markkanen (1995), para ruas e parques infantis, nas primeiras 500 horas, e para aterros nas primeiras 150 horas. É ainda observável, na Figura 4-26, que com o aumento do grau de alteração das amostras, diminui o número de horas necessárias para atingir o valor de 0,1 mSv/a, indicado por Markkanen (1995).

Foram também elaboradas estimativas do número de horas necessárias para atingir uma contribuição em excesso de 1 mSv (Figura 4-27), limite indicado por Markkanen, (1995) para zonas interiores, considerando diferentes possibilidades de fundo natural. São também apresentadas, sob a forma de linhas horizontais, o valor médio de horas por ano (linha horizontal a preto, mais espessa), e o valor médio de horas por ano, considerando um fator de ocupação no interior de 0,8, indicado por Markkanen (1995), (linha horizontal a preto, a tracejado).

É visível que na situação menos conservadora (maior fundo natural) materiais com as características da amostra 5 atingiriam o valor de 1 mSv/a, para um fator de ocupação igual a 0,8. Considerando um fundo natural de 121,75 nGy/h, correspondente ao menor valor de dose absorvida no exterior, calculado a partir dos resultados das amostras estudadas, só a amostra 2 não atingiria o valor indicado. Para as situações mais conservadora (menor fundo natural), todas as amostras atingiriam o valor de 1 mSv para um factor de ocupação igual a 0,8.

Os resultados apresentados na Figura 4-27 indicam que nas regiões com fundo igual ou inferior à média crustal (71 nGy), as habitações com as características do "quarto padrão" (onde são considerados materiais com espessura de 20 cm, correspondendo portanto a unidades de alvenaria ou "bulk amounts", nas paredes, chão e teto) atingem o valor de 1 mSv para as 7000 horas ou menos. Para o menor dos fundos calculados com as amostras de granito (121,75 nGy), as amostras mais alteradas também irão atingir o limite de 1 mSv para valores inferiores a 7000 horas. Para o fundo mais radioativo só a amostra 5 atingiria o valor de 1 mSv em excesso antes das 7000 horas.





**Figura 4-27** - Número de horas necessárias para atingir o valor máximo de dose efetiva em excesso no interior, de 1 mSv/a, indicado por Markkanen (1995). Valores censurados na parte superior a 12000 horas. Linha horizontal mais espessa, diz respeito à média do número de horas presente num ano (8766 horas), e linha horizontal, a tracejado diz respeito à média do número de horas num ano (7000 horas), considerando um fator de ocupação de 0,8, indicado por Markkanen (1995). Foi considerado um factor de conversão de 0,7, de dose gama absorvida (nGy), para dose efetiva (nSv), indicados no UNSCEAR, (2010).

#### 4.7. Dose interna

Além da contribuição para a dose externa de radiação gama estes materiais podem contribuir para a radiação interna pela via da ingestão/inalação de partículas assim como pela emissão de radão ( $^{222}\text{Rn}$ , resultante do decaimento radioativo do urânio) e torão ( $^{220}\text{Rn}$ , resultante do decaimento radioativo do tório). Apesar de não terem sido realizadas medições sobre este ponto, deixam-se algumas considerações com base nos resultados analíticos obtidos.

Em termos de inalação/ingestão de partículas sólidas, considerando os dados apresentados por Markkanen (1995) e por EC 122 (2002), foi possível calcular que as partículas da amostra 5 teriam uma dose de 36% superior às partículas da amostra 1 no caso de ingestão e 17% superior no caso da inalação. Considerando os piores cenários apresentados em EC 122 (2002) para as situações de inalação e ingestão, i.e.  $2 \text{ mg/m}^3$  de poeiras no ar, taxa de inalação igual a  $1,2 \text{ m}^3$  por hora, taxa de ingestão de  $10 \text{ mg/h}$  e 1800 horas de inalação/ingestão, utilizando as respetivas equações indicadas por Markkanen (1995) e apresentadas no capítulo anterior e admitindo para a inalação o cenário (pior)

de partículas com diâmetro equivalente igual a 1  $\mu\text{m}$ , é possível calcular que todas as amostras forneceriam valores muito abaixo do mSv/a (o valor mais elevado foi igual a 0,09 mSv para inalação para a amostra 5), (ver Tabela 4-19).

**Tabela 4-19** – Valores de dose efetiva interna por ingestão e inalação, em mSv/a, calculados usando os fatores de conversão indicados em Markkanen (1995) e os outros parâmetros, indicados em EC 122 (2002).

Amostra	Dose efetiva por inalação (mSv/a)		Dose efetiva por ingestão (mSv/a)
	1 $\mu\text{m}$	5 $\mu\text{m}$	
<b>1</b>	0,063	0,044	0,006
<b>2</b>	0,028	0,02	0,003
<b>3</b>	0,048	0,034	0,005
<b>4</b>	0,074	0,052	0,006
<b>5</b>	0,085	0,06	0,007

Em relação ao risco de emissão de radão e torão das amostras analisadas, os dados obtidos podem ser discutidos em termos dos parâmetros que influenciam os níveis destes gases (salientando-se que não foram feitas medições de emissão de Rn das amostras). Markkanen (1995) apresenta uma equação que indica que o excesso de radão no interior causado pelos materiais de construção é diretamente proporcional ao teor em  $^{226}\text{Ra}$ , à massa e ao coeficiente de emanação de  $^{222}\text{Rn}$  (correspondente à fração de  $^{222}\text{Rn}$  que é libertado para o espaço poroso do meio, (ver Schumann e Gundersen, 1996). Os valores de coeficiente de emanação podem ser bastante variáveis. Schumann e Gundersen (1996) discutem os fatores que podem afetar os valores de coeficiente de emanação de  $^{222}\text{Rn}$ , entre os quais está a porosidade, no sentido de um aumento do espaço poroso contribuir para o aumento do coeficiente de emanação.

Estas considerações indicam que, enquanto na amostra 1 existe uma maior concentração de  $^{226}\text{Ra}$  e uma maior densidade (logo maior massa por unidade de volume), é previsível que o desenvolvimento do meio poroso facilite a emanação do  $^{222}\text{Rn}$  nas amostras mais alteradas. Neste contexto poderá ser interessante considerar o exemplo do estudo de Hassan *et al.* (2011) sobre coeficiente de emanação de  $^{222}\text{Rn}$  em 11 tipos de granitos onde o maior valor (em condições secas) foi perto de 7 vezes superior ao valor inferior. Considerações semelhantes podem ser feitas em relação ao  $^{220}\text{Rn}$ , sendo que neste caso as amostras mais alteradas terão maiores teores de tório.

Como referido nos capítulos 1 e 3, uma forma de avaliar a perigosidade relativa aos níveis de radão consiste no cálculo do índice alfa ( $I_\alpha$ ), que mais não é do que a comparação das atividades específicas do  $^{226}\text{Ra}$  com um determinado valor de referência (200 Bq/kg). Como este índice é diretamente proporcional aos valores de atividade específica do  $^{226}\text{Ra}$ , podemos concluir que a amostra 1 apresentará o valor mais elevado de  $I_\alpha$  e que este índice terá valores mais baixos nas amostras mais alteradas. Em termos de comparação com os valores de referência (Righi e Bruzzi, 2006) nenhuma das amostras estudadas ultrapassa os 200 Bq/kg de  $^{226}\text{Ra}$ , as amostras 2 e 4 têm um valor de atividade específica de  $^{226}\text{Ra}$  inferior a 100 Bq/kg e as amostras 3 e 5 valores próximos deste limite inferior. Estes dados apontariam para uma situação não muito preocupante em termos de perigosidade de emissão de radão a partir destes materiais.

## 5. MEDIÇÕES DE CAMPO

Nesté capítulo são discutidos os resultados das medições de campo realizadas com o espectrómetro descrito no capítulo 3 e nos locais aí descritos. Nas Tabelas 5-1 a 5-4 são apresentados os resultados obtidos nas diferentes medições, divididos por medições realizadas em 2014 no local de colheita das amostras estudadas no capítulo 4 (terrenos cartografados como granito de Braga; Tabela 5-1), designado por L0; e as medições realizadas em 2013 no local L1 (arredores da cidade de Braga, terrenos cartografados como granito do Sameiro; Tabela 5-2), nos locais L2 a L6 (centro histórico da cidade de Braga, terrenos cartografados como granito de Braga; Tabela 5-3) e no local L7 (terrenos cartografados como metassedimentos do Silúrico; Tabela 5-4).

**Tabela 5-1** - Medições no local L0 (ambiente natural onde foram colhidas as amostras de granito com diferentes graus de alteração, utilizadas nos estudos laboratoriais do capítulo 4). A comparação da alteração é baseada na avaliação de campo. Todas as medições foram realizadas no exterior com a sonda em contacto com a superfície.

<b>P</b>	<b>DESCRIÇÃO</b>	<b>DOSE (nGy/h)</b>	<b>K (%)</b>	<b>U (ppm)</b>	<b>Th (ppm)</b>
1	Granito menos alterado	135	5,9	14,3	42,4
2	Granito pouco alterado (amarelecido, mas com marcada resistência física)	168,7	6	14,3	51,7
3	Zona mais alterada (amarelecimento generalizado e clara redução da resistência física)	143,2	6	11,2	50,1
4	Zona semelhante a 3	126,7	6	8,4	48,9
5	Zona muito mais alterada (ao lado de 4; amarelecimento generalizado, marcada redução da resistência física)	117,4	5,6	7,6	48,2
6	Grande descontinuidade	169,3	6,4	16,8	49,4
7	Possível zona de falha (intensamente fraturada e muito alterada)	218,3	7,6	15,9	65,5

**Tabela 5-2** - Pontos de medição no local 1 (arredores do centro da cidade de Braga, terrenos do granito do Sameiro). P: número do ponto. Exp.: exposição corresponde a exterior (Ext.) ou interior (int.). Ds: separação em relação às superfícies em que 0 representa uma medição com o sensor em contacto com uma superfície e 1 representa medições com o sensor afastado das superfícies.

<b>P</b>	<b>EXP.</b>	<b>Ds</b>	<b>DESCRIÇÃO</b>	<b>DOSE (nGy/h)</b>	<b>K (%)</b>	<b>U (ppm)</b>	<b>Th (ppm)</b>
1	Ext.	1	Espaço envolvente	135,2	3,7	11,3	33
2	Ext.	0	Pavimento (no local de L1_1)	167,7	5,1	11,6	38,2
3	Ext.	0	Bloco pedra	189,5	6,3	15	30
4	Ext.	0	Junta de argamassa (parede de L1_3)	182,6	6,2	15,9	32,1
5	Ext.	0	Reboco (parede de L1_3)	180,9	5,5	11,8	40,5
6	Int.	0	Pavimento	240	6,9	15,9	50
7	Int.	1	Mesma construção de L1_6	203,2	6,4	13,7	38,5
8	Int.	0	Pavimento	227,1	7,5	13,8	44,2
9	Int.	1	Mesma construção de L1_8	226,6	8,5	13,7	42,1
10	Int.	0	Gravilha (mesma construção de L1_8)	227,2	7,1	16	39,7
11	Ext.	0	Reboco	153,4	5	9,6	34,8
12	Ext.	0	Pavimento	159,7	5,9	11	32,7
13	Ext.	0	Afloramento granito Sameiro	163,8	4,7	10	41

**Tabela 5-3** - Pontos de medição nos locais 2-6 (zona central da cidade de Braga, terrenos do granito de Braga). L: local. P: número do ponto. Exp.: exposição corresponde a exterior (Ext.) ou interior (int.). Ds: separação em relação às superfícies em que 0 representa uma medição com o sensor em contacto com uma superfície e 1 representa medições com o sensor afastado das superfícies.

<b>L</b>	<b>P</b>	<b>EXP.</b>	<b>Ds</b>	<b>DESCRIÇÃO</b>	<b>DOSE (nGy/h)</b>	<b>K (%)</b>	<b>U (ppm)</b>	<b>Th (ppm)</b>
2	1	Ext.	0	Pavimento (espaço envolvente)	187,9	6,4	11,1	41
2	2	Ext.	1	Mesmo ponto de L2_1	175,4	5,7	13,8	31,8
2	3	Ext.	0	Pavimento (espaço envolvente)	152,2	6,5	10,9	28,8
2	4	Ext.	1	Mesmo ponto de L2_3	157,3	5,6	12,4	30,9
2	5	Ext.	0	Afloramento granito Braga	213,3	6,8	16,1	41,6
2	6	Ext.	0	Pedra parede	211,8	6,9	13,2	47,7
2	7	Ext.	0	Junta de argamassa (parede de L2_7)	199,3	6,7	13,3	44,1
2	8	Int.	0	Pavimento Piso R/C	211,9	5,8	12,4	48,5
2	9	Int.	1	Mesmo ponto de L2_8	215,3	5,9	12,8	48,5
2	10	Int.	0	Pavimento 1.º andar	178,5	5,1	13,7	35,1
2	11	Int.	0	Pavimento 2.º andar	149,3	4,5	15,2	20,4
2	12	Int.	1	Mesmo ponto de L2_11	159,2	5	15,8	21,7
2	13	Int.	0	Pavimento 3.º andar	146,7	4,7	12,7	25,7
3	1	Int.	0	Pavimento R/C	239,6	7,1	12,7	58
3	2	Int.	1	Mesmo local de L3_1	213,8	6,4	11,6	53,4
3	3	Int.	1	Pavimento 1.º andar	180,9	5	11,3	43
3	4	Int.	1	Pavimento 2.º andar	191,7	5,4	12,5	46,8
3	5	Int.	1	Pavimento 3.º andar	198,9	5,7	12,1	46,2
3	6	Int.	1	Pavimento 4.º andar	199,4	5,5	12,1	46,4
3	7	Int.	1	Pavimento 5.º andar	133,5	3,9	9,3	31,6
4	1	Int.	0	Pavimento	214,5	6	12,5	43,6
4	2	Int.	1	Mesmo local de L4_1	197,4	5,7	12,5	45,1
4	3	Int.	0	Pavimento	127,5	3,5	8,4	29,3
4	4	Int.	1	Mesmo local de L4_3	94,7	2,7	6,2	21,3
4	5	Int.	1	Antiga lareira	252,2	7,5	14,2	57,6
5	1	Int.	0	Pavimento	191,8	6,6	15,3	33,4
5	2	Int.	1	Mesmo local de L5_1	214,8	6,5	14,1	42,3
6	1	Int.	0	Pavimento	189,5	5,2	12,2	30,9
6	2	Int.	1	Mesmo local de L6_1	204,6	5,6	14,5	43,6

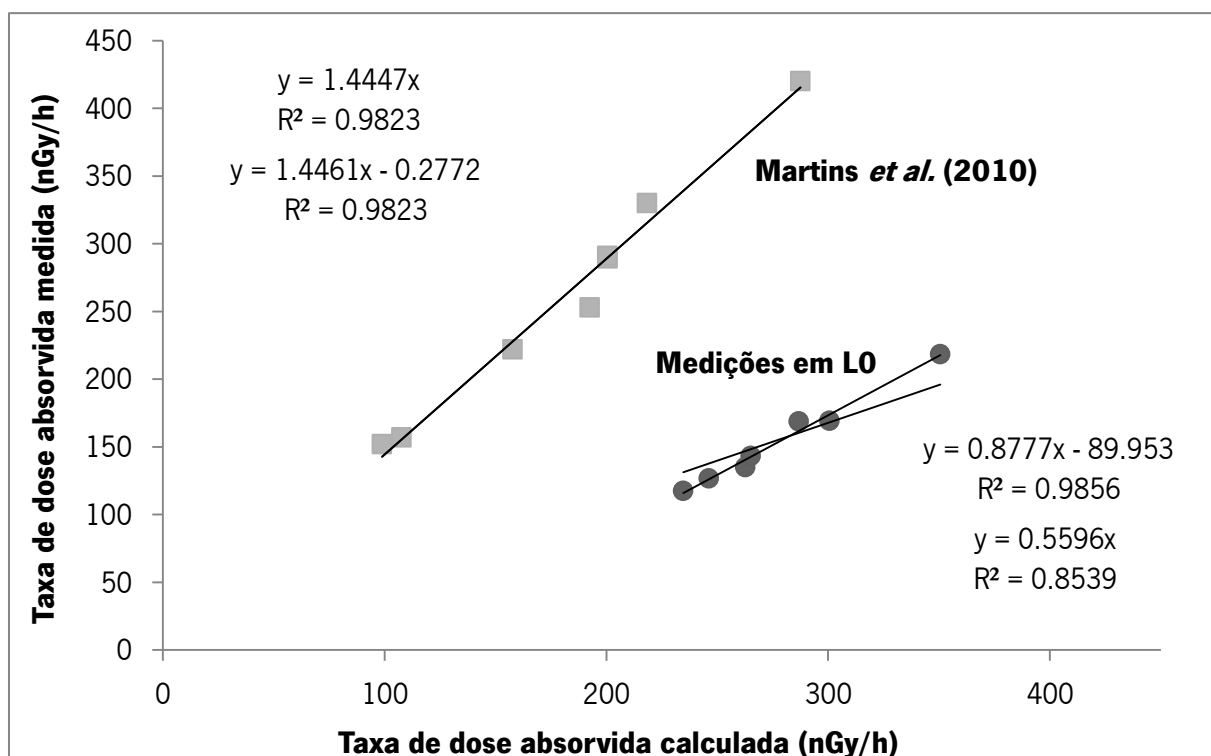
**Tabela 5-4** - Pontos de medição no local 7 (arredores do centro da cidade de Braga, terrenos metassedimentares do Silúrico). P: número do ponto. Exp.: exposição corresponde a exterior (Ext.) ou interior (int.). Ds: separação em relação às superfícies em que 0 representa uma medição com o sensor em contacto com uma superfície e 1 representa medições com o sensor afastado das superfícies.

<b>P</b>	<b>EXP.</b>	<b>Ds</b>	<b>DESCRIÇÃO</b>	<b>DOSE (nGy/h)</b>	<b>K (%)</b>	<b>U (ppm)</b>	<b>Th (ppm)</b>
1	Int.	1	Divisão	258,1	7,3	14,6	60,3
2	Int.	1	Entrada galeria	272,1	7,7	17,2	59,2
3	Int.	1	Galeria	259,5	7,1	15,7	60,7
4	Int.	1	Galeria	259,6	7,9	13,8	58,8
5	Int.	1	Galeria	255,4	7,6	14,5	59,8
6	Int.	1	Galeria	255,8	8,2	15,8	54,8
7	Int.	1	Galeria	250,2	7,2	18	52,3
8	Int.	1	Galeria	241,1	7,2	17	50,2
9	Int.	1	Galeria	249,4	7,4	15,3	51,9
10	Int.	1	Galeria	247,9	7,7	14,1	57,3
11	Int.	1	Galeria	261	7,7	15,6	55
12	Int.	1	Galeria	256,9	7,5	15,5	55,7
13	Int.	1	Galeria	267	7,1	15,5	56,9
14	Int.	1	Galeria	246,1	6,5	18,6	53
15	Int.	1	Divisão	269,5	7,1	13,8	62,2
16	Ext.	0	Reboco	160,5	4,7	12,8	31,1
17	Ext.	0	Reboco (mesma construção de L7_17)	136	4,6	10,6	31,6
18	Ext.	1	Terreno envolvente	82,9	2,7	6,6	19,4

### **5.1. Comparação de dose medida e de dose calculada**

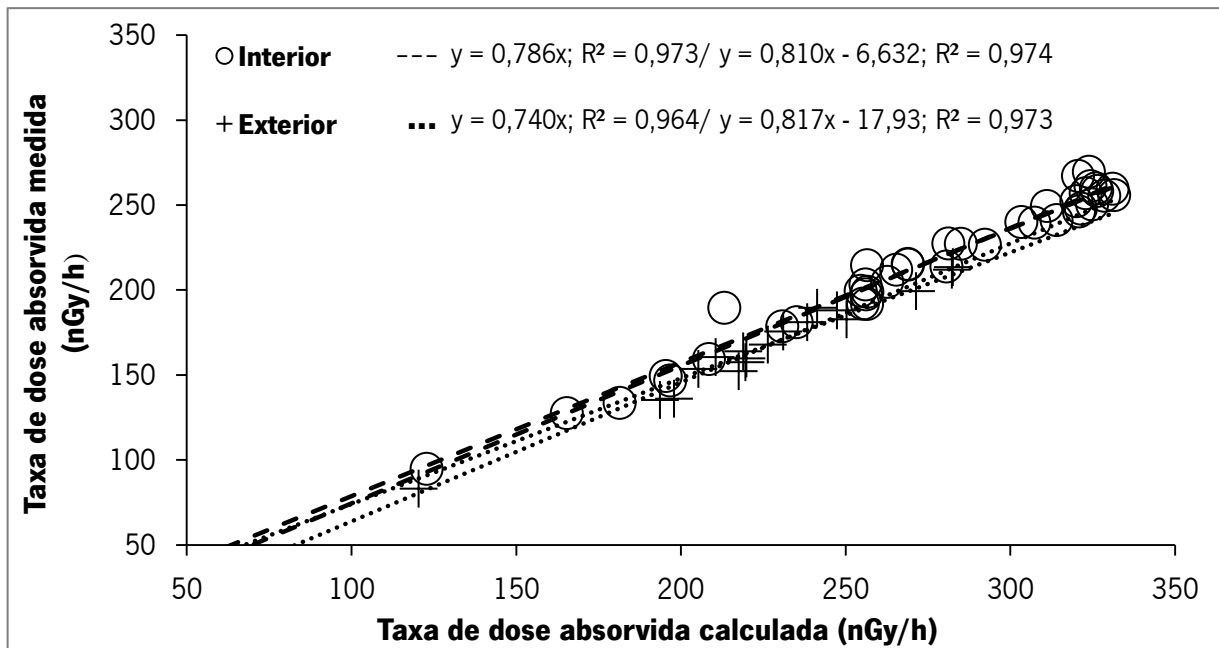
Os resultados das medições realizadas “in situ” (doses totais medidas, em nGy/h) podem ser comparados com as doses totais calculadas, em nGy/h, através das estimativas espectrométricas da % K, ppm de eU e ppm de eTh, utilizando os fatores de conversão de conteúdo para atividade específica, em Bq/kg, indicados em IAEA (2003), e os fatores de atividade específica, em Bq/kg, para taxa de dose absorvida, em nGy/h, indicados em UNSCEAR (2010), admitindo uma distribuição uniforme de radionuclídeos nos solos, sendo o resultado apresentado na Figura 5-1. Para iniciar esta comparação foram considerados os resultados obtidos em 2014 em L0 assim como o conjunto de medições realizado no ambiente natural na região de Amarante apresentado em Martins *et al.* (2010), realizado com recurso a espectrómetro de raios gama Exploranium GR130G, equipado com detetor de NaI. Estimaram-se retas de regressão considerando duas possibilidades em termos de ordenada na origem, numa delas a ordenada na origem é obrigatoriamente igual a zero e na outra a ordenada na origem é calculada pelo processo de determinação da reta de regressão.





**Figura 5-1** – Resultados da dose total medida “in situ” vs. dose total calculada através das estimativas espectrométricas da % K, ppm de eU e ppm de eTh, utilizando os fatores de conversão de conteúdo para atividade específica, em Bq/kg, indicados no IAEA (2003), e os fatores de atividade específica, em Bq/kg, para taxa de dose absorvida, em nGy/h, indicados em UNSCEAR (2010), admitindo uma distribuição uniforme de radionuclídeos nos solos. Medições de dose total “in situ” realizadas em 2014 em LO, com recurso a um espectrómetro de raios gama, GRF-200/BL, (círculos); e na região Amarante, com recurso a espectrómetro de raios gama Exploranium GR130G, equipado com detetor de NaI (quadrados), tendo os dados, sido retirados de Martins *et al.* (2010).

A mesma comparação foi feita para as medições realizadas em 2013 em sete locais diferentes da cidade de Braga (Figura 5-2) distinguindo-se os locais exteriores e interiores. Tal como no exemplo anterior consideraram-se duas retas de regressão em termos de ordenada na origem.



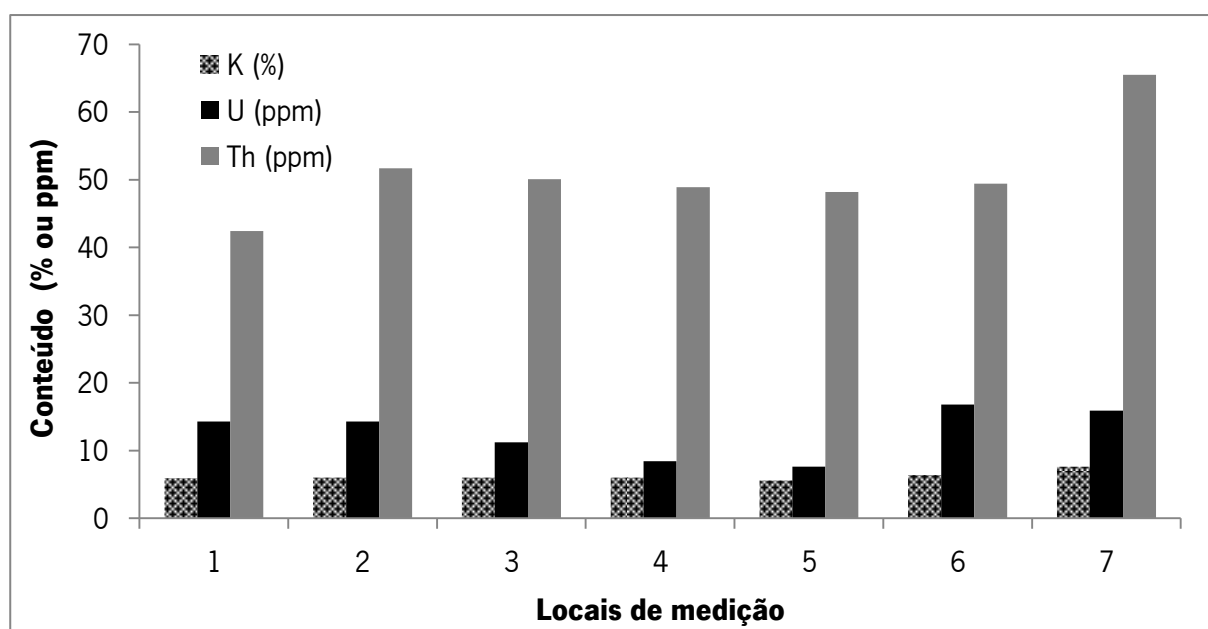
**Figura 5-2** - Resultados da dose total medida, “in situ” realizadas em 2013 em várias estruturas da cidade de Braga (L1 a L7) vs. dose total calculada através das estimativas espectrométricas da % K, ppm de eU e ppm de eTh, utilizando os fatores de conversão de conteúdo para atividade específica, em Bq/kg, indicados em IAEA (2003), e os fatores de atividade específica, em Bq/kg, para taxa de dose absorvida, em nGy/h, indicados em UNSCEAR (2010), admitindo uma distribuição uniforme de radionuclídeos nos solos.

No caso das medições de 2013 e dos resultados de Martins *et al.* (2010), as retas propostas são muito semelhantes, independentemente de passar ou não na origem, sendo que os valores de dose calculada são inferiores às doses medidas nas estimativas feitas a partir dos dados de Martins *et al.* (2010) e superiores no caso dos dados deste estudo obtidos em 2013. O espectómetro de raios gama GRF-200/BL, para a estimativa de dose total, tem em conta o contributo de outros radionuclídeos, para além do  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ , como o  $^{137}\text{Cs}$  enquanto que, a estimativa da dose total calculada, é feita com base nos radionuclídeos de  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ . Sendo assim, esperar-se-ia que, para as medições de 2013, os valores de dose calculada fossem inferiores aos valores de dose medida, como acontece no caso dos dados de Martins *et al.* (2010).

Já nas medições do presente estudo realizadas em L0 em 2014, o declive da reta de regressão que passa na origem desvia-se significativamente dos pontos, sendo que os declives das duas retas são claramente distintos. Adicionalmente a ordenada na origem calculada para estas medições apresenta um valor absoluto muito elevado (mais de 4 vezes superior ao valor de 2013).

## 5.2. Medições no local de colheita das amostras de granito (L0)

Como referido acima, foram realizadas um conjunto de medições “in situ” no mesmo local nos arredores da cidade de Braga, onde foram colhidas as amostras de granitos com diferentes graus de alteração, estudadas no capítulo 4. Foram realizadas sete medições de dose total, em nGy/h, em diferentes locais, com recurso a um espectómetro de raios gama GRF-200/BL, tendo também sido obtidas estimativas espectrométricas da % K, ppm de eU e ppm de eTh, para cada uma das medições, estando representadas na Figura 5-3. As cinco primeiras medições dizem respeito a granitos, com diferentes graus de alteração, sendo que 2 apresenta um estado de alteração superior a 1, e assim por diante. Os locais de medição 6 e 7 correspondem a uma grande descontinuidade e a uma possível zona de falha, que atravessa o maciço granítico, respetivamente.

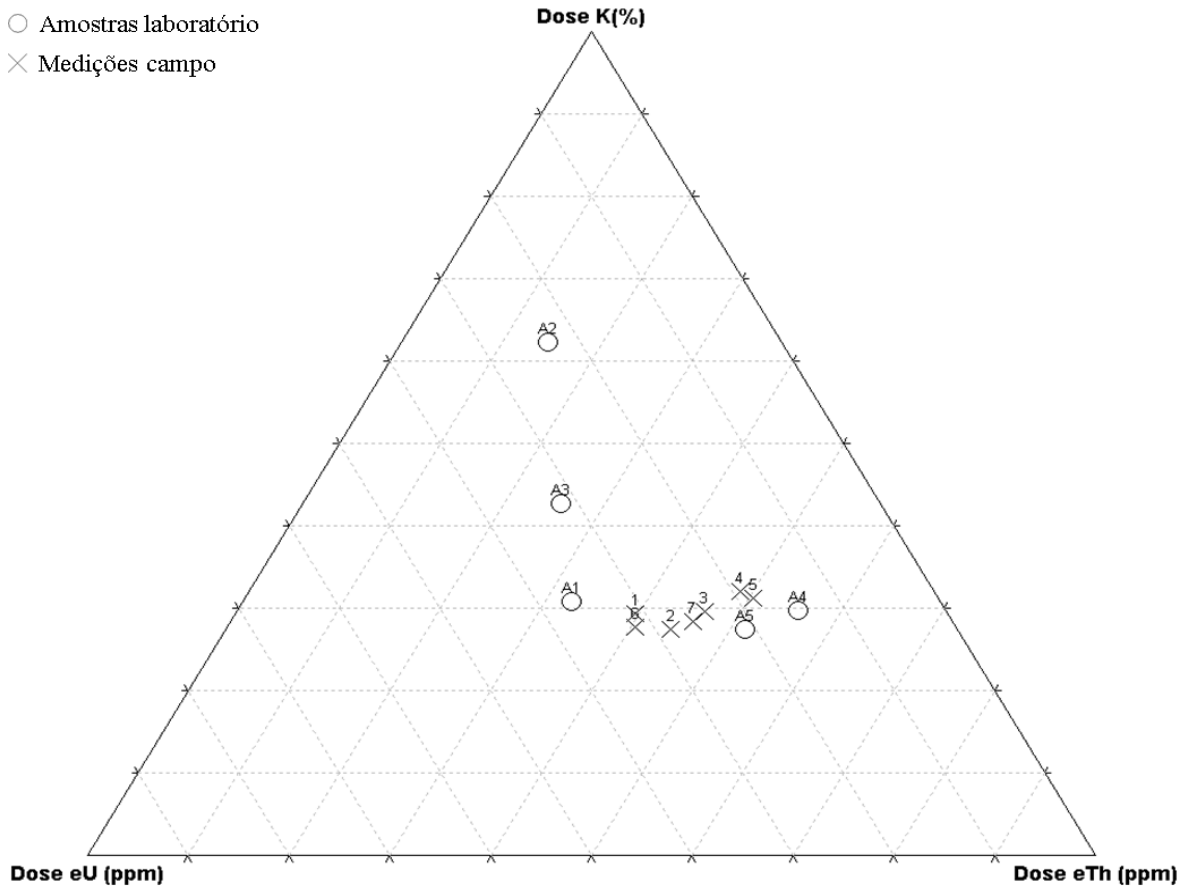


**Figura 5-3** - Representação das estimativas espectrométricas da % K, ppm de eU e ppm de eTh, para cada uma das sete medições (1 a 7) realizados em L0.

Como podemos observar na Figura 5-3, as medições realizadas em granitos da pedra, localizados na descontinuidade e na possível zona de falha (6 e 7, respetivamente), apresentam os teores, em ppm, de eU mais elevados, e a medição em 7, apresenta o teor de eTh, mais elevado. De facto, como referido no capítulo 1, segundo Sroor *et al.* (2002), processos geológicos associados a zonas de cisalhamento podem provocar o enriquecimento ou empobrecimento em radioelementos nas rochas, dependendo se o cisalhamento for frágil ou dúctil. O histórico de cristalização, e os processos de alteração hidrotermal também podem afetar a distribuição dos radionuclídeos em rochas ígneas. A formação de microbrechas em rochas sujeitas a processos de deformação dúctil-frágil poderá criar

caminhos através dos quais, os fluidos enriquecidos em radionuclídeos se movem e subsequentemente se depositam nas rochas hospedeiras (Moura *et al.*, 2011). É ainda observável, que o teor de eU, em ppm, diminui com o aumento do grau de alteração dos granitos (P1 a P5), o que demonstra a grande mobilidade geoquímica do U em água (lixiviação). Os teores de eTh, mantêm-se aproximadamente os mesmos, com o aumento do grau de alteração das amostras, o que demonstra a elevada imobilidade geoquímica do Th em água.

Como foi apresentado no capítulo 3, enquanto os fatores de conversão de atividade específica (Bq/kg) para taxa de dose gama absorvida (nGy/h), são muito variáveis, os rácio entre esses fatores são muito semelhantes. Considerando isso e com intuito de comparar as contribuições relativas dos diferentes radionuclídeos, para a dose total, em nGy/h, entre as cinco amostras de granito, com diferentes graus de alteração, estudadas no capítulo anterior (representadas como A1-A5), e as medições “in situ” em LO, foi elaborado um diagrama ternário, presente na Figura 5-4. As contribuições relativas dos diferentes radionuclídeos, em nGy/h, foram calculadas utilizando os fatores de conversão de atividade específica, em Bq/kg, para dose absorvida, em nGy/h, indicados em UNSCEAR (2010). Para o primeiro conjunto (amostras de granito estudadas no capítulo 4, com diferentes graus de alteração), os valores de atividade específica, em Bq/kg, utilizados foram obtidos pelo método de espectrometria -  $\gamma$ . Para o segundo conjunto (granitos da pedreira, localizados em sete locais distintos), os valores de atividade específica, em Bq/kg, foram calculados utilizando os fatores de conversão, de conteúdo, em % e ppm, para atividade específica, indicados em IAEA (2003).



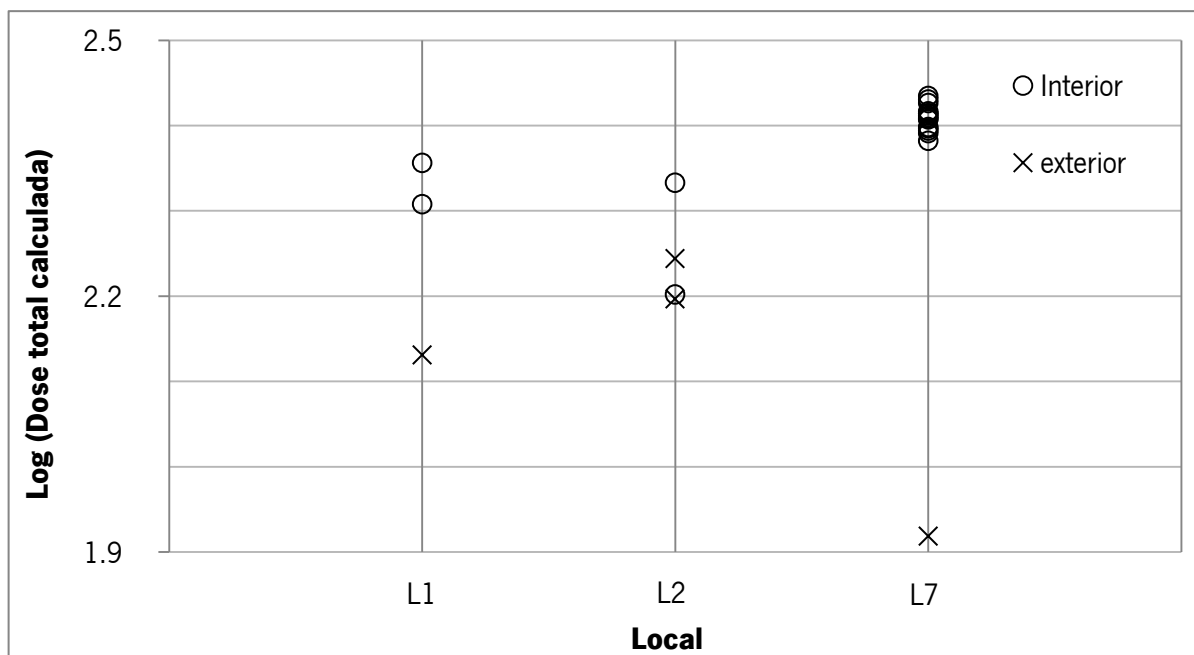
**Figura 5-4** – Contribuições relativas dos diferentes radionuclídeos, para a dose total em nGy/h, das medições laboratoriais em amostras colhidas em LO e das medições de campo neste mesmo local. Contribuições calculadas utilizando os fatores de conversão de conteúdo para atividade específica, em Bq/kg, indicados no IAEA (2003), e os fatores de atividade específica, em Bq/kg, para taxa de dose absorvida, em nGy/h, indicados em UNSCEAR (2010), admitindo uma distribuição uniforme de radionuclídeos nos solos.

Como é visível na Figura 5-4, nos pontos de medição 4 e 5 (granitos de pedra com maior grau de alteração), à semelhança das amostras de granito A4 e A5 (amostras mais alteradas), a série de elementos do Th, é a principal contribuinte para a dose total absorvida, em nGy/h. Amaral (2000), indica os valores médios de 43, 37 e 67 nGy/h, para a contribuição relativa do K, U e Th, respetivamente, para a dose total, em nGy/h, em solos de origem intrusiva. Nos sete pontos de medição (1 a 7), os valores de contribuição relativa dos diferentes radionuclídeos excedem bastante os valores médios indicados por Amaral (2000).

### 5.3. Medições no ambiente construído (L1-L7)

Comparando os valores das medições da taxa de dose gama absorvida no ar exterior, em nGy/h nos locais do ambiente construído (tabelas 5-2 a 5-4) com os dados de Amaral (1992) é possível ver que os dados do exterior estão genericamente dentro do intervalo indicado por Amaral (1992), de (95,5 – 226,5 nGy/h) com exceção de uma medição em L7 (medição em terrenos metassedimentares); e as medições relativas à taxa de dose gama absorvida no ar interior estão, geralmente, dentro do intervalo obtido a partir da multiplicação das medições do exterior, indicadas por Amaral (1992), pelo factor de 1,2 (114,2 – 271,8 nGy/h) com exceção de uma medição em L4 (algo abaixo do limite inferior) e de um local em L7 (ligeiramente acima do limite superior).

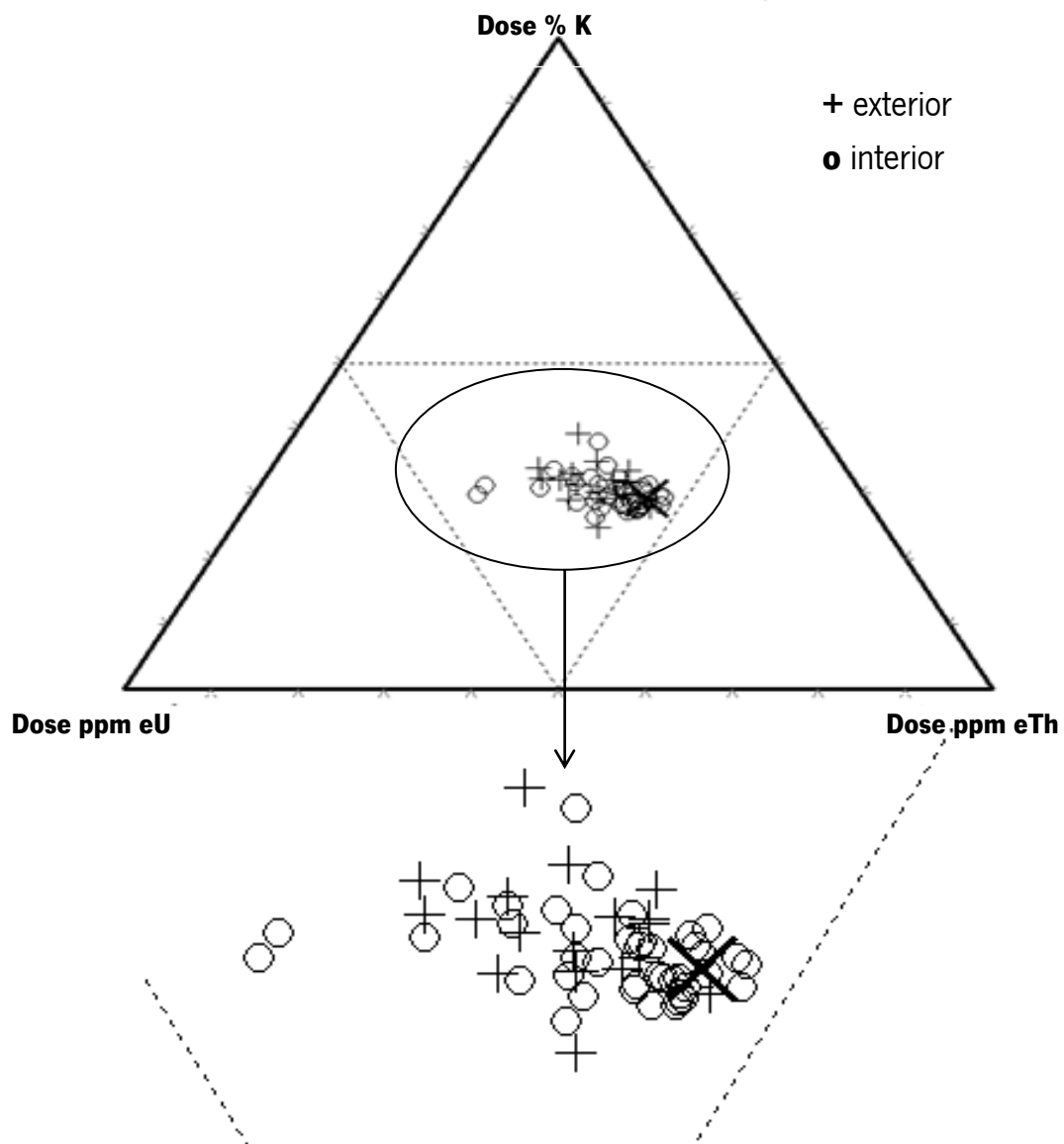
Ainda no contexto da comparação interior/exterior, na Figura 5-5 é apresentada uma análise, a uma escala local, onde estão apresentadas as medições “in situ” de dose total, em nGy/h, no interior e no exterior, realizadas nos mesmos locais (L1, L2 e L7), um metro acima de qualquer superfície. Os dados são apresentados na forma de log (taxa de dose total), para que a comparação da relação interior- exterior, em que interior = exterior x 1,2, seja facilmente interpretada, sumando 0,8 = log (1,2).



**Figura 5-5** - Comparação das medições de taxa de dose gama absorvida, realizadas no exterior e no interior, nos mesmos locais, um metro acima de qualquer superfície. Os dados são apresentados na forma de log (taxa de dose absorvida), para que o leitor consiga comparar facilmente a relação interior = exterior x 1,2, sumando 0,8 = log (1,2).

Os rácios interior/exterior, indicados em UNSCEAR (2000), variam entre 0,6 e 2,3, dependendo das características dos materiais e dos terrenos no exterior. Para as medições nos locais L1 e L2, os resultados estão dentro do previsto. No entanto, para L7, os resultados deviam-se marcadamente desta relação, assumindo valores até 3,3. É importante lembrar que o local L7 corresponde a medições realizadas no interior de estruturas com um uso extensivo de granito, mas localizadas em terrenos metassedimentares (onde foram realizadas as medições exteriores). Segundo Amaral (2000), os solos de origem sedimentar, apresentam menor taxa de dose absorvida, dos três tipos de solos estudados (ígneos, metamórficos e sedimentares).

Na Figura 5-6 é apresentado um gráfico da contribuição do K, U e do Th, usando os fatores de conversão presentes em IAEA (2003), e em UNSCEAR (2010), assim como a contribuição média relativa, nos solos derivados de rochas intrusivas, indicados em Amaral (2000), representado pelo "X" grande.



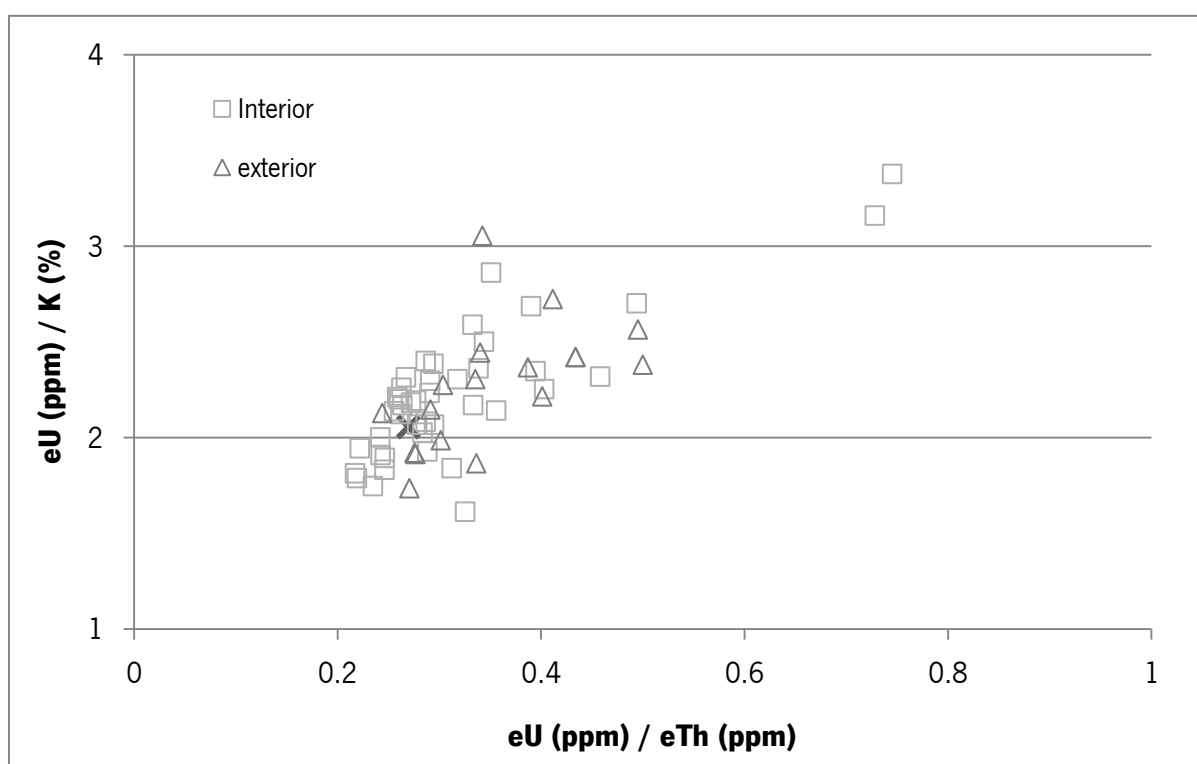
**Figura 5-6** - Gráfico ternário das contribuições para a taxa de dose absorvida, através das estimativas de K, U e Th, usando os fatores de conversão presentes em IAEA (2003) e em UNSCEAR (2010), para os solos, nas medições exteriores (+) e interiores (círculos). O "X" grande corresponde à contribuição média dos solos derivados de rochas intrusivas, indicados em Amaral (2000).

Na Figura 5-6, como indicado por Amaral (2000), pode ser observado que o Th é o principal contribuinte, na generalidade das amostras, para a taxa total de dose gama absorvida, sendo observável uma tendência na predominância da contribuição do Th, para as medições interiores. É observável a presença de dois outliers, os quais dizem respeito a medições "in situ" realizadas no interior, no mesmo local, as quais apresentam uma contribuição maioritária do U. Pode ser expectável alguma variabilidade relativamente ao eU, aquando a utilização de espectrometria de raios gama "in



situ” pois, o eU é estimado a partir do  $^{214}\text{Bi}$ , o qual é um isótopo pós-Rn, pertencente à série de decaimento do  $^{238}\text{U}$ . Por outro lado, elevados valores de fundo, relativos à taxa de dose absorvida, podem provocar erros maiores na estimativa espectrométrica da % K, e ppm de U e Th, nas medições do ar. Dado o sentido dos outliers e tendo em conta que, são ambos no mesmo local, outra possibilidade será uma maior concentração de  $^{222}\text{Rn}$  presente no local.

Na Figura 5-7, estão presentes os rácios eU / eTh (ppm) vs. eU (ppm) / K (%), obtidos através da estimativa espectrométrica dos conteúdos dos radionuclídeos (K, U e Th), obtidos através da espectrometria de raios gama “in situ”.

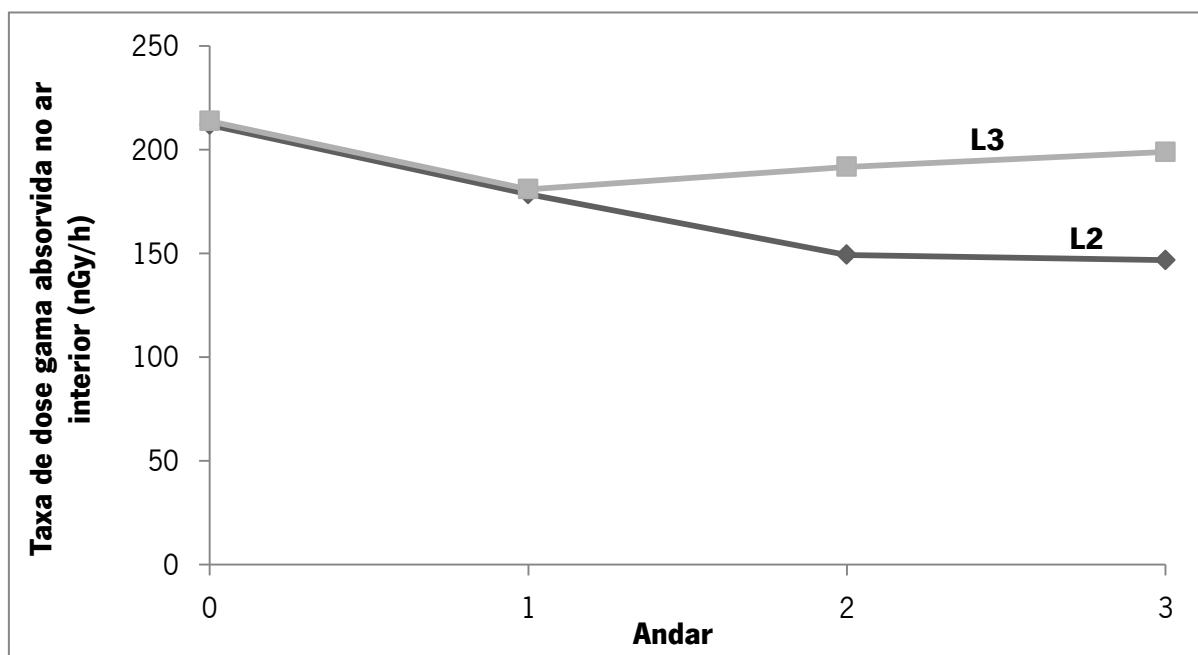


**Figura 5-7** - Gráfico dos rácios calculados através da estimativa dos conteúdos de nuclídeos obtidos através da espectrometria de raios gama “in situ”, medições exteriores (triângulos), medições interiores (quadrados), “X” grande corresponde aos rácios da composição de solos derivados de rochas intrusivas, apresentados por Amaral (2000).

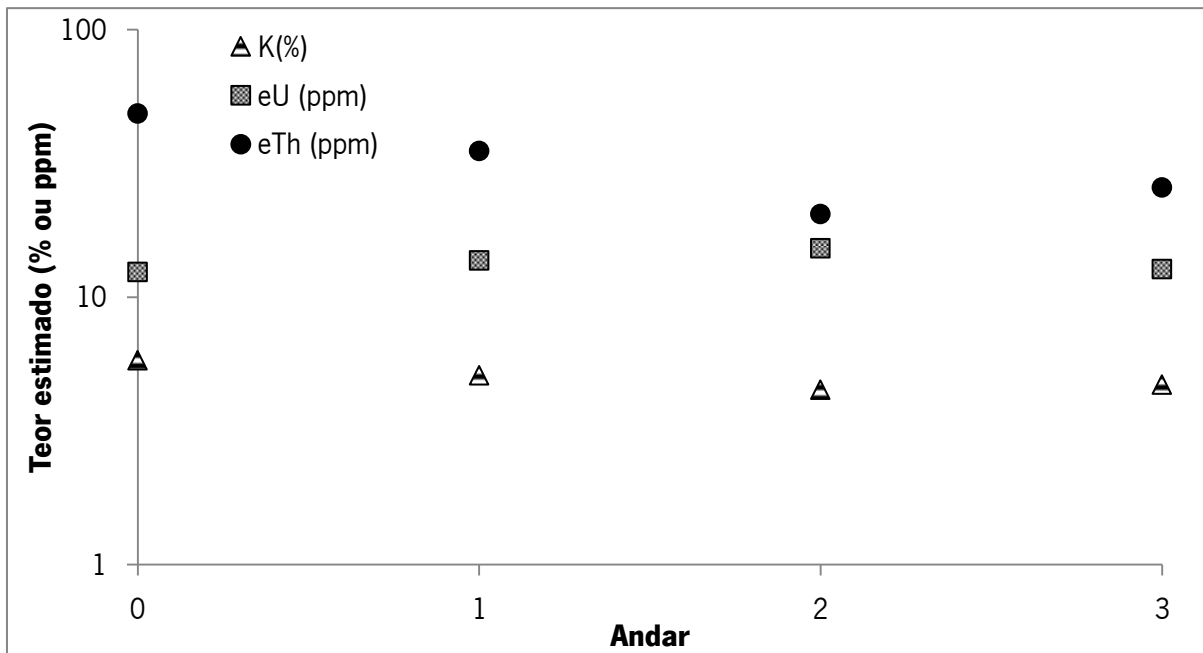
É observável, na Figura 5-7, que os rácios eU/eTh (ppm) e eU/ K(%), tanto para as medições exteriores e interiores, encontram-se num intervalo curto, e a média geométrica é aproximadamente 1/3 (0,33) e 2,2, respetivamente. Os rácios calculados através da composição de solos de rochas intrusivas, indicados por Amaral (2000) apresentam o valor de 0,3 para o rácio eU/eTh (ppm) e de 2,1 para o rácio eU (ppm)/ K (%). Como o U e o Th são elementos refratários, o rácio Th/U da Terra deverá ser o mesmo dos condritos, aproximadamente  $4 \pm 2$  (Dickin, 1995). No entanto, o rácio nos

granitos e na maioria das rochas sedimentares varia entre 2,8 e 5,7, com excepção para os carbonatos sedimentares que estão enriquecidos em U, e o rácio Th/U é aproximadamente 0,7 (Bowen, 1994). Mesmo a medição realizada, um metro acima do solo florestal, em terrenos metassedimentares (L7-18), apresenta um rácio eU (ppm) /eTh (ppm) e um rácio eU (ppm)/ K(%) igual a 0,34 e 2,4 respetivamente.

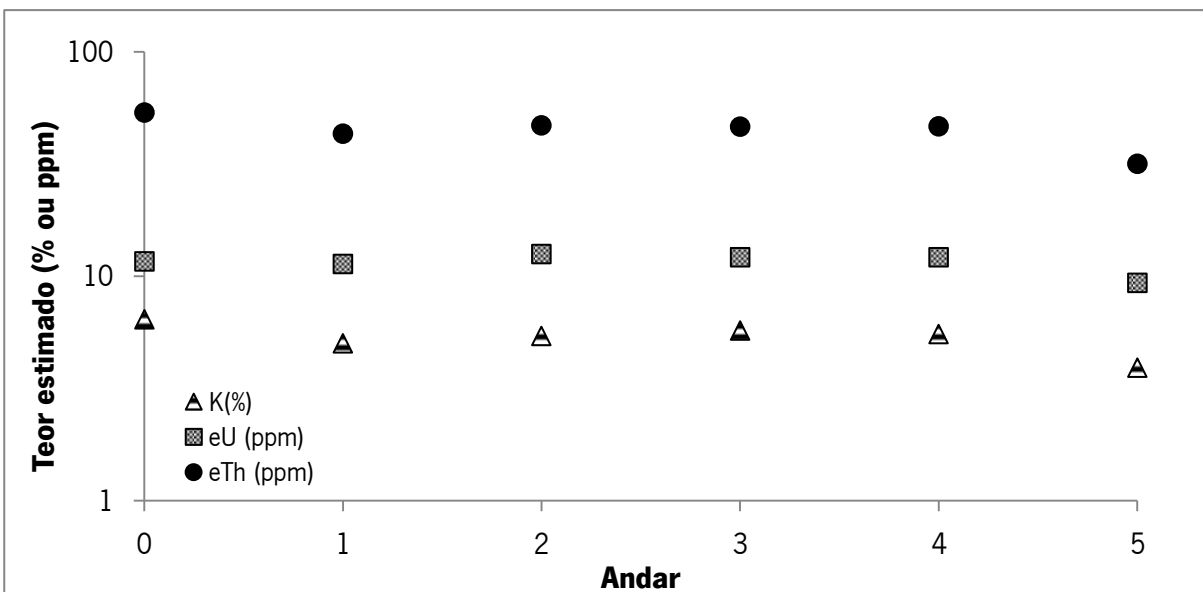
Como referido no capítulo 2, os locais L2 e L3, dizem respeito a duas construções graníticas, com forma paralelepídicadas rectangulares, com dimensões semelhantes e ambas possuindo vários andares de altura. Na tentativa de compreender e estabelecer uma tendência, na dose total e contribuição dos diferentes radionuclídeos com a altura, foram comparados pontos de medição aferidos em diferentes pisos, nos diferentes locais (L2 e L3). Os resultados estão presentes nas Figuras 5-8, 5-9 e 5-10, respetivamente.



**Figura 5-8** – Valores de taxa de dose gama absorvida no ar interior, em nGy/h, nos diferentes andares do locais L2 e L3, respetivamente.



**Figura 5-9** - Teores de K(%), U (ppm) e Th (ppm) estimados por medição espectrométrica no campo para o Local L2 nos andares 0 (rés-do-chão) a 3.

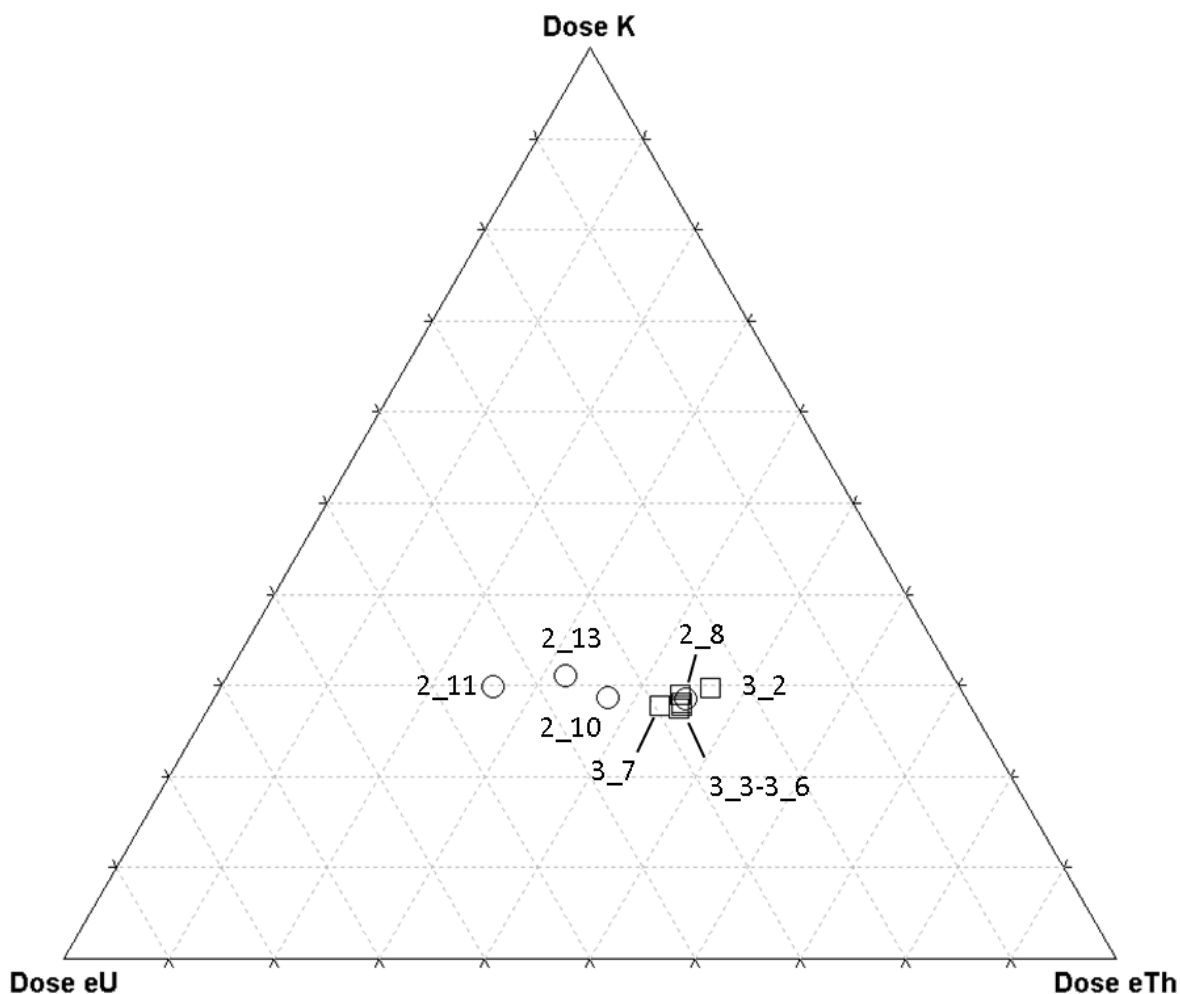


**Figura 5-10** - Teores de K(%), U (ppm) e Th (ppm) estimados por medição espectrométrica no campo para o Local L3 nos andares 0 (rés-do-chão) a 5.

Ainda que não seja possível detectar uma clara tendência com a altura, é visível na Figura 5-8, nos dois locais onde foi possível realizar medições em diferentes alturas (L2 e L3), que as medições de taxa de dose gama absorvida no ar interior no rés-do-chão (andar 0), apresentam valores de dose mais elevados que os dos andares superiores. Relativamente aos teores estimados dos radionuclídeos de K,

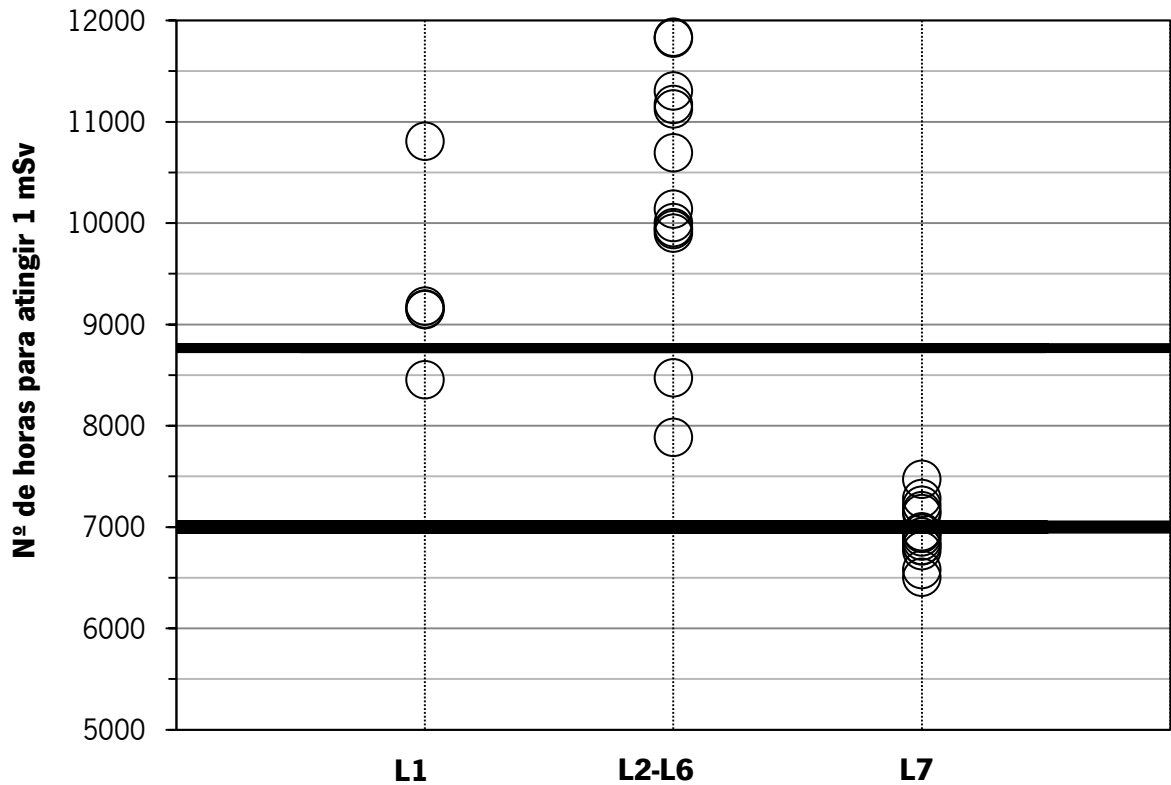
U e Th, observa-se, (Figura 5-7 e 5-8) uma diminuição do K e do Th, nos andares acima do rés-do-chão (andar 0), enquanto o U apresenta um comportamento mais uniforme.

No diagrama ternário das contribuições relativas, calculadas a partir dos conteúdos dos diferentes radionuclídeos de K, U e Th (Figura 5-11), é visível que as medições nos pisos superiores mostram um deslocamento no sentido da diminuição da contribuição do Th e um deslocamento para o pólo da contribuição do U. Este deslocamento é mais acentuado, nos pontos de medição, do local L2.



**Figura 5-11** – Diagrama ternário das contribuições relativas, em nGy/h, dos diferentes radionuclídeos (K, U e Th) para medições em diferentes andares de L2 e L3 (sendo consideradas as medições afastadas de qualquer superfície). Os números indicados correspondem aos números da Tabela 5-3. Para cada um destes locais o número inferior corresponde ao rés-do-chão (L2\_8 e L3\_2) e os números seguintes indicam andares seguintes. Contribuições calculadas a partir das estimativas espectrométricas da % K, e ppm de U e Th, utilizando os fatores de conversão de conteúdo, para atividade específica, em Bq/kg, indicados em IAEA (2003), e os fatores de conversão de atividade específica, em Bq/kg, para dose absorvida, em nGy/h, indicados em UNSCEAR (2010).

Markkanen (1995) discute a estimativa da contribuição em excesso, dos materiais de construção, em relação ao ambiente natural (radiação terrestre e cósmica), e usa o limite de 1mSv/a como referência, considerando um factor de ocupação de 7000 h/a. Para este efeito é proposto que a taxa de dose absorvida dos materiais de construção, seja removida a contribuição do ambiente natural. Numa perspetiva conservadora, consideramos a contribuição crustal média indicada por Markkanen (1995), de 71 nGy/h, para os locais localizados em terrenos dos granitos de Braga e do Sameiro (que terão um fundo superior). Para estruturas localizadas em terrenos metassedimentares, foi considerada uma medição realizada no exterior, um metro acima de qualquer superfície e subtraído o valor de radiação cósmica gama (33 nGy/h), sendo obtido o valor de 49,9 nGy/h, abaixo da média crustal indicada por Markkanen (1995). Medições realizadas no interior, com valores abaixo das medições no exterior foram ignoradas. Considerando o fator de conversão de taxa de dose (nGy/h), para dose efetiva (mSv/h), de 0,7, indicado em Markkanen (1995) foi estimado o número de horas, que são necessárias passar no interior por ano, de forma a alcançar o valor de 1 mSv/a (Figura 5-12). Por comodidade os valores superiores são censurados às 12000 horas. São indicados, em linhas horizontais, os valores correspondentes ao número de horas num ano e ao valor de 7000 horas correspondente a um fator de ocupação no interior igual a 0,8 (Markannan, 1995).



**Figura 5-12** - Número de horas necessárias para atingir o valor máximo de dose absorvida proposta por Markkanen, (1995), de 1 mSv/a (valores censurados na parte superior a 12000 horas) para as taxas de dose absorvidas no interior, e removendo os valores do exterior (contribuição em excesso). Linhas horizontais mais espessas correspondem ao número médio de horas presente num ano e ao número resultante de utilizar um fator de ocupação igual a 0,8 (Markkanen 1995). Valores calculados, removendo aos valores relativos ao interior, em terrenos graníticos (L1-L6), a média crustal de dose absorvida indicada por Markkanen, (1995), dado que os valores exteriores são superiores à média crustal. Para os terrenos metassedimentares, foi considerada uma medição realizada no exterior, um metro acima de qualquer superfície e subtraído o valor de radiação cósmica gama (33 nGy/h), sendo obtido o valor de 49,9 nGy/h, abaixo da média crustal indicada por Markkanen (1995). Foi considerado um fator de conversão de 0,7 entre taxa de dose absorvida (nGy/h) e dose efetiva (nSv/h).

## 6. CONCLUSÕES

Nesta dissertação consideraram-se resultados de estudos laboratoriais e medições de campo na estimativa da perigosidade associada com a radiação gama externa dos materiais de construção. Essa avaliação é baseada por um lado no cálculo de parâmetros a partir de análises laboratoriais de amostras de granito (com diferentes graus de meteorização) e por outro lado, com base em medições de campo, *in situ*, da radiação gama.

Relativamente aos resultados laboratoriais, a sua generalização apresenta algumas dificuldades devido ao “escasso” número de amostras colhidas. De facto, ilações sobre a relação entre a perigosidade associada com a radiação gama e os processos de alteração (diferentes graus de meteorização das amostras) devem ser vistas com precaução dada a variabilidade geoquímica do maciço. Os resultados laboratoriais obtidos indicam que, em relação ao termo menos alterado, as amostras mais alteradas apresentam teores claramente superiores de Th, algo superiores de K, e algo inferiores de U. O efeito mais marcante é claramente, o enriquecimento em Th, nas amostras mais alteradas, colocando-se como hipótese o enriquecimento nas zonas de fraturas, por circulação de fluídos, com eventual fixação em argilas. Estes resultados precisarão de uma validação petrográfica por via de um estudo detalhado (e consequentemente moroso e custoso) da distribuição dos elementos em relação às fases portadoras.

As concentrações dos radionuclídeos, obtidas através das análises laboratoriais, para as amostras de granito de Braga estudadas, com diferentes graus de alteração estão, na generalidade, acima dos valores da média mundial para os materiais de construção indicados em UNSCEAR (2000) e dos valores considerados típicos para a pedra natural no EC 112 (EC, 1999).

As análises de laboratório permitiram calcular vários índices de atividade para os quais são definidos os limites baseados em certos valores de atividade específica dos isótopos e em níveis de dose anual. Os resultados destes índices para as amostras de granito de Braga com diferente grau de alteração mostram posições variáveis em relação aos limites desses diferentes índices, traduzindo alguma variabilidade dos pressupostos dos mesmos.

Relativamente ao Índice gama ( $I_\gamma$ ), todas as amostras de granito estudadas, com diferentes graus de alteração, excedem o valor 1, indicado por Markkanen (1995) para materiais de construção. Este limite corresponde ao limite de dose equivalente anual de 1 mSv, para materiais utilizados como unidades de alvenaria (“bulk amounts”) nas estruturas, indicado em EC (1999) e ultrapassam, obviamente, o valor limite para um critério de 0,3 mSv/a. Todavia, nenhuma das amostras mostrou

valores que ultrapassem o limite definido em EC 112 (EC, 1999), para materiais com utilização restrita (revestimentos superficiais e agregados) correspondentes a 2 (para o critério mais limitativo de dose efetiva anual, de 0,3 mSv/a) e 6 (para o critério de 1 mSv/a). Apenas as amostras 2 e 3 mostraram valores de  $Ra_{eq}$  inferiores ao valor médio mundial de 370 Bq/kg, indicados por Sonkawadea (2008). Todas as amostras apresentaram valores de  $AGED$  superiores, quando comparados ao valor de  $AGED$  de uma casa, com concentrações de  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{238}\text{U}$  iguais à média mundial do solo (Arafa, 2004). Para o índice de perigosidade externa ( $H_{ex}$ ), apenas as amostras 2 e 3 não excedem o valor de 1, indicado por Huda (2011). Para o índice de perigosidade interna ( $H_{in}$ ), apenas a amostra 2 não excede o valor de 1, indicado por Huda (2011). De facto, a amostra 2, que mostrou uma maior abundância de feldspatos potássicos, foi aquela que apresentou melhores resultados em termos dos índices considerados. A amostra correspondente ao granito mais alterado ultrapassa a maioria dos limites que têm sido propostos para os materiais a utilizar em construções. É, todavia, importante recordar que o EC 112 (EC, 1999) refere que os limites de índices de concentração de atividades devem ser utilizados como ferramentas de filtragem e que decisões sobre restrições ao uso de um determinado material devem basear-se em avaliações das doses resultantes desse material nas suas formas típicas de utilização.

Salienta-se que estas considerações correspondem à avaliação da radiação gama externa, deixando de lado a questão da dose interna por inalação ou ingestão. Em relação a esta questão foi possível calcular que as partículas do material mais alterado teriam uma maior perigosidade do que o material menos alterado. Já em termos de emissão de Rn o assunto parece mais complexo dado que sendo verdade que na amostra menos alterada o teor em urânio é superior, as amostras alteradas apresentam um meio poroso mais desenvolvido que facilitará a propagação de Rn e apresentam teores em Th mais elevados. A utilização do índice alfa também não contribui significativamente para a avaliação uma vez que os valores estão, geralmente, situados entre o nível de exceção e o nível de ação.

Considerando os critérios referidos em EC 112 (EC, 1999) poderemos concluir que os materiais do granito estudado dificilmente serão objeto de preocupação nas formas atualmente mais comuns de utilização atual (revestimentos superficiais ou agregados nas argamassas ou betões). No caso da utilização como revestimento interior é ainda necessário considerar que estes materiais vão ter algum efeito de proteção em relação ao substrato dos elementos construtivos. No entanto, merecerão um estudo mais detalhado quando utilizados como unidades de alvenaria (situação comum nos edifícios



históricos). É importante, também, salientar novamente que os índices baseados nas concentrações de atividade não têm em consideração a massa volúmica dos materiais, i.e., a massa por unidade de volume e consequentemente os teores por unidade de área.

Em termos de utilizações exteriores, o estudo realizado não identificou motivos para preocupação em relação aos limites indicados nos critérios para os índices de concentração de atividade. De facto, relativamente aos índices  $I_2$  e  $I_3$  (para parques infantis e ruas; e para aterros, respetivamente), nenhuma das amostras de granito estudadas, excede o valor 1, indicado por Markkanen (1995). Todavia, a situação de trabalhadores que passam um número significativo de horas em contacto com o material poderá merecer uma análise mais detalhada (considerando não só o número de horas na proximidade do material, como os efeitos eventualmente acrescidos em termos de inalação e ingestão).

As medições de campo em duas épocas mostraram uma forte correlação entre as medições de taxa de dose absorvida medida e aquela que seria calculada a partir das estimativas dos isótopos. Todavia, as retas de regressão mostraram ordenadas na origem claramente diferentes de zero e diferentes de uma época para outra. Admite-se, por comparação também com resultados de outros autores, que esta ordenada na origem poderá ter interesse na avaliação da qualidade das medições.

A comparação de medições com o espectrómetro gama, no mesmo local onde foram recolhidas as amostras para análise laboratorial, com os resultados de espectrometria de alta resolução de laboratório, mostram valores semelhantes nas estimativas dos isótopos, quer em termos absolutos, quer em termos de proporções entre os mesmos. Também se observa semelhanças entre os valores de taxa de dose absorvida medida no campo e o valor de taxa de dose absorvida calculada a partir das medições de atividade específica, obtidas por espectrometria –  $\gamma$ , considerando os fatores de transformação indicados em UNSCEAR (2000). Nomeadamente os resultados das medições de campo vão no sentido do enriquecimento do granito nos isótopos considerados ao longo de estruturas de fraturação. Os processos de meteorização poderão posteriormente promover o enriquecimento relativo do tório pela sua menor mobilidade nas condições de alteração.

Os valores medidos em locais exteriores do ambiente construído ficam genericamente dentro dos dados para o distrito de Braga referidos por Amaral *et al.* (1992) e os dados do interior das construções enquadram-se genericamente com aquilo que seria esperado a partir da previsão destes autores considerando um fator de conversão igual a 1,2. No entanto, numa escala mais local, podem existir situações mais complexas quando há um marcado contraste geológico entre o ambiente construído e o ambiente natural, como foi observado em termos de comparação do interior de edifícios graníticos com

envolvente exterior de terrenos metassedimentares (uma situação algo comum no norte e centro de Portugal).

Em termos de avaliações da dose efetiva em excesso resultante dos materiais de construção, os valores não são em geral preocupantes por comparação com os valores de média crustal e considerando um nível de 1 mSv por ano. Todavia, mais uma vez esta contribuição em excesso será mais elevada em locais de contraste geológico entre o ambiente construído e o ambiente natural com a utilização de materiais com níveis de radiação gama superiores aos do fundo regional, como é o caso de estruturas com uso extensivo de granitos em um terreno metassedimentar. Adicionalmente os valores de  $eU$  e  $eTh$  sugerem que a utilização de materiais graníticos poderá aumentar a perigosidade associada com as emissões de radão e torão. Desta forma obtêm-se resultados que, deste ponto de vista, favorecem a perspetiva do uso de rocha local (que aparece em algumas considerações sobre a sustentabilidade). Será interessante investigar a possibilidade de ocorrência da situação oposta, ou seja, níveis de radiação gama mais baixa no interior das estruturas em relação aos níveis ao ar livre quando o contraste geológico existir no sentido oposto, isto é, quando as estruturas são construídas com materiais com menor nível de radiação do que os terrenos em redor. Esta sugestão poderá ser uma via interessante em termos de valorização dos materiais geológicos com baixo nível de radiação como unidade de alvenaria. Neste sentido de potencial contribuição para a valorização de materiais geológicos será interessante estender as análises de laboratório a outras formações geológicas (mesmo graníticas) que os dados da carta de radiação gama sugerem poder ter valores abaixo da média mundial. No mesmo sentido propõe-se a pesquisa e medição em construções que utilizem esses materiais.

As medições no interior mostram uma ampla de gamas que destaca a necessidade de avaliações detalhadas, considerando a proporção dos materiais utilizados e as características das estruturas. Foram, por exemplo, observadas variações associadas com altura que em geral correspondem a níveis mais elevados no piso térreo, possivelmente resultante de uma maior influência dos materiais do substrato. Os resultados obtidos sugerem que a definição de uma tipologia de edifícios com base nos materiais utilizados e nas suas proporções, assim como na forma e dimensão das estruturas, poderá ser útil na seleção dos pontos de amostragem para este tipo de avaliação de campo. Esta perspetiva permitirá também realizar testes de falsificabilidade no sentido de Popper (1935), i.e., em que serão confrontados os valores de taxa de dose absorvida expetáveis para uma determinada estrutura com as

medições realizadas nessa estrutura de forma a testar a aplicabilidade da proposta de tipologia de construções.

Apesar de dedicar-se essencialmente a considerações geológicas em sentido lato (incluindo os aspetos geoquímicos e geofísicos), os resultados aqui obtidos permitirão simular diferentes cenários em função de obtenção de outras características. Por exemplo, a avaliação como revestimento no interior deverá ter em consideração os níveis de radiação gama do material sobre o qual é aplicado o revestimento.

ALNOUR, I. A.; WAGIRAN, H.; IBRAHIM, N.; LAILI, Z.; OMAR, M.; HAMZAH, S.; IDI, B.Y. (2012) - Natural radioactivity measurements in the granite rock of quarry sites, Johor, Malaysia. *Radiation Physics and Chemistry*, 81(12), 1842–1847. doi:10.1016/j.radphyschem.2012.08.005

ALVES, C.A. (1997) – Estudo da deterioração de materiais graníticos aplicados em monumentos da cidade de Braga (Norte de Portugal). Implicações na conservação do património construído. Tese de Doutoramento, Universidade do Minho, 291p.

AMARAL, E.M.; ALVES, J.G.; CARREIRO, J.V. (1992) – Doses to the Portuguese population due to natural gamma radiation. Laboratório Nacional de Engenharia e Tecnologia Industrial, Scavém, Portugal.

AMARAL, E.M. (2000) - Natural gamma radiation in air versus soil nature in Portugal. Proc. IRPA 10, Hiroshima, P-1a-12, <http://www2000.irpa.net/irpa10/cdrom/00979.pdf>

ARAFA, W. (2004) - Specific activity and hazards of granite samples collected from the Eastern Desert of Egypt. *Journal of Environmental Radioactivity* 75, 315–327.

BEGONHA, A.; SEQUEIRA BRAGA, M.A. (2002) - Weathering of the Oporto granite: geotechnical and physical properties. *Catena*, 49, 57-76.

BERETKA, J.; MATHEW, P.J. (1985) - Natural radioactivity of Australian buildings materials, industrial wastes and by-products. *Health Phys.* 48, 87-95.

CARL, C.; DILL, H.G. (1983) - Uranium disequilibria and modern redistribution phenomena in alteration zones in the Höhensteinweg uranium occurrence (Germany). *Uranium* 1, 113–125.

CHOPIN, G.R. (1988) - Humics and radionuclide migration. *RDIOCHIMA Acta*, V.44/45, 23-28.

CUNEY, M.; FRIEDRICH, M.; BLUMENFELD, P.; BOURGUIGNON, A.; BOIRON, M.C.; VIGNERESSE, J.L.; POTY, B. (1990) - Metallogenesis in the French part of the Variscan orogen. Part I: U preconcentrations

in pre Variscan and Variscan formations – a comparison with Sn, W and Au. *Tectonophysics* 177, 39–57.

CUNEY, M.; KYSER, K. (2008) - Recent and not so Recent developments in uranium deposits and implications for exploration, Short Course Series, Vol. 39, Mineralogical Association of Canada.

DEER, W.A.; HOWIE, R.A.; ZUSSMAN, J., (2000) - *Minerais Constituintes das Rochas – Uma Introdução* – 2ª edição. Tradução de Carlos A. R. Macedo. Serviços de Educação e Bolsas, Fundação Calouste Gulbenkian, Lisboa, 724p.

DIAS, G.; LETERRIER, J., FERREIRA, N.; LOPES NUNES, J.E. (1992) - Les granitoides biotitiques syn- & tardi-hercyniens de la region de Braga (Nord Portugal). *Typologie chimico-mineralogique et implications petrogenetiques*. C.R. Acad. Sci. Paris, 314, serie 11, pp. 675-681.

DIAS, G.; LETERRIER, J. (1994) - The genesis of felsic-mafic plutonic associations: a Sr and Nd isotopic study of the Hercynian Braga granitoid massif (northern Portugal). *Lithos*, v. 32, pp. 207-223.

DIAS, G.; SIMÕES, P.P.; FERREIRA, N.; LETERRIER, J. (2002) - Mantle and Crustal Sources in the Genesis of Late-Hercynian Granitoids (NW Portugal): Geochemical and Sr-Nd Isotopic Constraints. *Gondwana Research*, V.5, No.2, pp.287-305.

DIAS, G.; NORONHA, F.; ALMEIDA, A.; SIMÕES, P.P.; MARTINS, H.C.B.; FERREIRA, N. (2010) – *Geocronologia e Petrogénese do Plutonismo Tradi-Varisco (NW de Portugal): Síntese e inferências sobre os processos de acreção e reciclagem crustal na Zona Centro-Ibérica*.

DICKIN, A. P. (1995) - *Radiogenic Isotope Geology*, Cambridge, New York, Port Chester, Melbourne, Sydney: Cambridge University Press, 452 pp.

DICKSON, B. L.; Scott, K. M. (1997) - Interpretation of aerial gamma-rays surveys – adding the geochemical factors. Australia. AGSO – *Journal of Australian Geology & Geophysics*, 17(2), 187-200.

DILL, H. G. (2010) - The “chessboard” classification scheme of mineral deposits: Mineralogy and geology from aluminum to zirconium. *Earth-Science Reviews*, 100(1-4), 1–420. doi:10.1016/j.earscirev.2009.10.011

EC- European Commission, Radiation Protection 112 (1999) - Radiological protection principles concerning the natural radioactivity in building materials, Luxembourg.

EC- European Commission, Radiation Protection 112 (2002) - Practical use of the concepts of clearance and exemption. Part II: Application of the concepts of exemption and clearance to natural radiation sources, Luxembourg.

FERREIRA, N.; IGLESIAS, M.; NORONHA, E.; PEREIRA, E.; RIBEIRO, A.; RIBEIRO, M.L. (1987a) - Granitoides da Zona Centro Ibérica e seu enquadramento geodinâmico. In: BEA, F.; CARNICERO, A.; GONZALO, J.C.; LOPEZ PLAZA, M. & RODRIGUEZ ALONZO, M.D. (Eds.), *Geología de des granitoides y rocas asociadas del Macizo Hespérico*. Ed. Rueda, Madrid, pp. 37-51.

FERREIRA, N.; DIAS, G.; MEIRELES, C.A.P.; SEQUEIRA BRAGA, M.A. (2000) – Carta Geológica de Portugal na escala 1/50.000. Notícia Explicativa da Folha 5-D Braga. Departamento de Geologia, Instituto Geológico e Mineiro, Lisboa.

FERTL, W.H. (1983) – Gamma ray spectral logging: a new evaluation frontier. *World Oil*, 79-91.

FLUGGE, S.; ZIMENS, K.E. (1939) - Determination of grain sizes and diffusion constants from active emanation (the theory of emanation), *Journal of physical chemistry (Leipzig)*, B42, 149 – 220.

GASCOYNE, M. (1992) - Geochemistry of the actinides and their daughters. In: Ivanovich, M., Harmon, R.S. (Eds.), *Uranium-series Disequilibrium: Applications to Earth, Marine and Environmental Sciences*. Clarendon Press, Oxford, pp.34 e 61.

GOMES VILELA, S.A. (2009) - Estudo geoquímico de alguns marcadores de poluição no ambiente construído (Braga, Évora, Torre de Moncorvo - Portugal). Tese de Mestrado, Universidade do Minho.

HASSAN, N.M. ISHIKAWA, T.; HOSODA, M.; IWAOKA, K. SORIMACHI, A.; SAHOO, S.K.; JANIK, M.; KRANROD, C.; YONEHARA, H.; FUKUSHI, M.; TOKONAMI, S. (2011) - The effect of water content on the radon emanation coefficient for some building materials used in Japan. *Radiation Measurements*, 46(2), 232–237. doi:10.1016/j.radmeas.2010.11.006

HEIER, K.S. (1975) - The movement of uranium during higher grade metamorphic processes. *Theoretical and Practical Aspects of Uranium Geology: Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences*, vol. 291, No. 1381, pp. 413–421.

HUDA, A. (2011) - Determination of Natural Radioactivity Levels in the State of Qatar Using High-Resolution Gamma-ray Spectrometry. Ph.D. Thesis. University of Surrey, UK.

IAEA - International Atomic Energy Agency: Guidelines for radioelement mapping using gamma ray spectrometry data. IAEA-TECDOC-1363, Vienna 2003. [http://www-pub.iaea.org/mtcd/publications/pdf/te\\_1363\\_web.pdf](http://www-pub.iaea.org/mtcd/publications/pdf/te_1363_web.pdf)

ISRM (1981) – Basic Geotechnical Description of Rock Masses. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci. & Geomech. Abstr.*, v. 18, pp. 85-110.

KLEIN, C.; HURLBUT Jr, C.S. (1999) - *Manual of mineralogy* (after James D. Dana). 21th ed. rev, New York: John Wiley & Sons.

KOBLINGER, L. (1979) - Calculation of exposure rate from gamma sources in walls of buildings. *Health Physics* 34, 459 – 463.

KRIEGER, R. (1981) - Radioactivity of construction materials. *Betonwerk und Fertigteil Technik* 47, 468 – 473.

LANGMUIR, D. (1978) - Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol.42, pp. 547-569.

LANGMUIR, D.; HERMAN, J.S. (1980) - The mobility of thorium in natural waters at low temperatures. *Geochimica et Cosmochimica Acta*. 44. 1753-1766.

MARKKANEN, M. (1995) - Radiation Dose Assessments for Materials with Elevated Natural Radioactivity. STUK-BSTO 32, Finnish Center for Radiation and Nuclear Safety, Helsinki. <http://www.stuk.fi/julkaisut/stuk-b/stuk-b-sto32.pdf>

MAROCCHI, M.; RIGHI, S.; MARIA BARGOSSO, G.; GASPAROTTO, G. (2011) - Natural radionuclides content and radiological hazard of commercial ornamental stones: An integrated radiometric and mineralogical-petrographic study. *Radiation Measurements*, 46(5), 538–545. doi:10.1016/j.radmeas.2011.03.017

MARTINS, L.; GOMES, E.; NEVES, N.; SOUSA, L.; OLIVEIRA, A. (2010) - Dados preliminares da radioactividade natural na região de Amarante (Norte de Portugal), *e-terra* 13 (4), 1–4.

MOURA, C.L.; ARTUR, A.C.; BONOTTO, D.M.; GUEDES, S.; MARTINELLI, C.D. (2011) - Natural radioactivity and radon exhalation rate in Brazilian igneous rocks. *Applied radiation and isotopes: including data, instrumentation and methods for use in agriculture, industry and medicine*, 69(7), 1094–9. doi:10.1016/j.apradiso.2011.03.004.

PLANT, J.A.; SIMPSON, P.R.; SMITH, B.; WINDLEY, B.F. (1999) - Uranium ore deposits – products of the radioactive Earth in BURNS, P. & FINCH, R. *Uranium: Mineralogy, Geochemistry and the Environment*, *Reviews in Mineralogy*, Mineralogical Society of America, Vol. 38, pp 255-319.

POPPER, K. R. (1935) - The logic of scientific discovery. Tradução inglesa (2.ª Edition) of *Logik der Forschung*, Routledge Classics: London 2002; 513 p.

PRAZERES, M.C. (2011) - Caracterização geoquímica, radiométrica e mineralógica de algumas mineralizações de urânio da região de Nisa. Tese de Mestrado, Universidade de Lisboa, Faculdade de Ciências, Departamento de Geologia, Lisboa, U. D. E. (2011).



RIGHI, S.; BRUZZI, L. (2006) - Natural radioactivity and radon exhalation in building materials used in Italian dwellings. *Journal of Environmental Radioactivity* 88, 158–170. doi:10.1016/j.jenvrad.2006.01.009

RISICA, S.; BOLZAN, C.; NUCCETELLI, C. (2001) - Radioactivity in building materials: room model analysis and experimental methods. *The Science of the total environment*, 272(1-3), 119–26. Retrieved from <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/11379899>

SCHUMANN, R.R.; GUNDERSEN, L.C.S. (1996) - Geologic and climatic controls on the radon emanation coefficient. *Environment International*, 22, 439–446. doi:10.1016/S0160-4120(96)00144-4.

SEQUEIRA BRAGA, M.A.; PAQUET, H.; BERGONHA, A. (2002) - Weathering of granites in a temperate climate (NW Portugal): granitic saprolites and arenization, *CATENA*, Volume 49, Issues 1–2, 31 August 2002, Pages 41-56, ISSN 0341-8162, [http://dx.doi.org/10.1016/S0341-8162\(02\)00017-6](http://dx.doi.org/10.1016/S0341-8162(02)00017-6).

SIMÕES, P.P. (2000) - Instalação, geocronologia e petrogénese de granitóides biotíticos hercínicos associados ao cisalhamento Vigo-Réguia (ZCI, Norte de Portugal). Tese de doutoramento, Universidade do Minho, Braga, Portugal/Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, França, 351 p

SONKAWADEA, R.G.; KANTB, K.; MURALITHARA, S.; KUMARA, R.; RAMOLA, R.C. (2008) - Natural radioactivity in common building construction and radiation shielding materials. *Atmospheric Environment* 42, 2254–2259.

SROOR, A.; AFIFI, S.Y.; ABDEL-HALEEM, A. S.; SALMAN, A. B.; ABDEL-SAMMAD, M. (2002) - Environmental pollutant isotope measurements and natural radioactivity assessment for North Tushki area, south Western desert, Egypt. *Appl Radiat Isot* 57(3):427–436

STEINHAUSLER, F. (1996) - Environmental  $^{220}\text{Rn}$ : a review. *Environment International* 22, S1111 - S1123.

STRANDEN, E. (1979) - Radioactivity of building materials and the gamma radiation in dwellings. Phys. Med, Biol. 24, 921-930.

TORRES, L.; LEOTE, J.; SILVA, M. (1997) – Carta de Radiação Gama Natural, na escala 1/200.000, Folha 1, Porto. Departamento de Geologia, Instituto Geológico e Mineiro, Lisboa.

TZORTZIS, M.; TSERTOS, H. (2004) - Determination of thorium, uranium and potassium elemental concentrations in surface soils in Cyprus. J. Environ. Radioact. 77, 325 – 338.

UNSCEAR- United Nations Scientific Committee of the Effect of Atomic Radiation, (1988) - Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiations, United Nations, New York.

UNSCEAR- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, (2000) - Dose assessment methodologies, Annex A, United Nations, New York.

UNSCEAR- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, (2000) - Exposures from Natural Radiation Sources, Annex B, United Nations, New York.

UNSCEAR- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, (2008) - Sources and effects of ionizing radiation, United Nations, New York.

UNSCEAR- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, (2010) - Report to the General Assembly, with scientific annexes, United Nations, New York.

VEIGA, R.; SANCHES, N.; ANJOS, R.M.; MACARIO, K.; BASTOS, J.; IGUATEMY, M.; AGUIAR, J.G.; SANTOS, A.M.A.; MOSQUERA, B.; CARVALHO, C.; BAPTISTA FILHO, M.; UMISEDIO, N.K. (2006) - Measurement of natural radioactivity in Brazilian beach sands. Radiation Measurements 41, 189 e 196.