

CARACTERIZAÇÃO PETROGRÁFICA, DE ÍNDICES FÍSICOS E DA EXALAÇÃO DE RADÔNIO EM ROCHAS ORNAMENTAIS DO ESTADO DO CEARÁ, BRASIL

Leiliane Rufina Pereira de AZEVEDO¹, Antonio Carlos ARTUR², Daniel Marcos BONOTTO², José de Araújo NOGUEIRA NETO³

- (1) Programa de Pós-Graduação em Geociências, Instituto de Geociências e Ciências Exatas, Universidade Estadual Paulista (UNESP), Av. 24-A Nº 1515, C.P. 178, CEP 13506-900. Rio Claro, São Paulo, Brasil. Endereço eletrônico: leili_ane@hotmail.com
(2) Departamento de Petrologia e Metalogenia, Instituto de Geociências e Ciências Exatas, Universidade Estadual Paulista (UNESP), Av. 24-A Nº 1515, C.P. 178, CEP 13506-900. Rio Claro, São Paulo, Brasil. Endereços eletrônicos: acartur@rc.unesp.br; dbonotto@rc.unesp.br
(3) Departamento de Geologia, Centro de Ciências e Ciências Exatas, Universidade Federal do Ceará (UFC), Av. Humberto Monte, s/n, CEP 60455-790, Campus do Pici, Blocos 912/913. Fortaleza, Ceará, Brasil. Endereço eletrônico: nogueira@ufc.br

Introdução
Materiais e métodos
Métodos
Rochas ornamentais estudadas
Resultados e discussões
Índices físicos
Exalação do gás radônio e teores de urânio
Eficiência da emanação do gás radônio
Simulação da adição de radônio em ambientes fechados
Conclusões
Agradecimentos
Referências bibliográficas

RESUMO - O presente trabalho descreve a quantificação da exalação do gás radônio em rochas ornamentais e para revestimento exploradas no Estado do Ceará, Brasil. Foram realizados ensaios de índices físicos, espectrometria de massa com plasma indutivamente acoplado (ICP-MS), análises petrográficas e monitoramento da exalação do gás radônio em 15 tipos distintos de rochas. Em sua composição mineralógica, as rochas apresentam concentrações de radionuclídeos como ²³²Th, ²³⁵U e ²³⁸U, os quais, por decaimento radioativo, geram os isótopos ²²⁰Rn, ²¹⁹Rn e ²²²Rn, respectivamente, sendo o ²²²Rn o de maior importância para a pesquisa por apresentar a maior meia-vida (3,85 dias) em relação aos outros isótopos de radônio. A Agência de Proteção Ambiental dos Estados Unidos (USEPA) recomenda o limite de 4 pCi/L para a exalação de radônio pelos materiais rochosos utilizados como revestimentos em ambientes de interiores de residências e de edificações comerciais e públicas com baixa circulação de ar. As rochas estudadas apresentaram valores de exalação entre 0,04 pCi/L e 2,59 pCi/L num ambiente fechado, os quais estão abaixo do máximo recomendado pela USEPA. Portanto, elas são indicadas como materiais de revestimento em interiores de ambientes com baixa circulação de ar.

Palavras-chave: Exalação, Gás radônio, Rochas ornamentais.

ABSTRACT – L. R. P. Azevedo, A. C. Artur, D. M. Bonotto, J. A. Nogueira Neto - *Characterization of the petrography, physical indices and radon exhalation in dimensional stones of Ceará State, Brazil.* This paper deals with the quantification of the radon gas exhalation in dimension stones exploited in the state of Ceará, Brazil. It has been reported tests of physical indices, mass spectrometry with inductively coupled plasma (ICP-MS), petrographic analysis and monitoring of the radon gas exhalation in 15 different types of rocks. In their mineralogical composition, the rocks have concentrations of certain radionuclides such as ²³²Th, ²³⁵U and ²³⁸U, which generate ²²⁰Rn, ²¹⁹Rn and ²²²Rn, respectively, and ²²²Rn is the most important in this study due to its highest half-life (3.85 days), in relation to that of other radon isotopes. The Environmental Protection Agency of the United States (USEPA) recommends a limit of 4 pCi/L for the radon exhalation by rocky materials utilized as coatings in indoor environments of residences and commercial/public constructions. The rocks studied showed exhalation values ranging from 0.04 pCi/L to 2.59 pCi/L in a closed environment, which are below the maximum value proposed by the USEPA. Therefore, they are suitable as coating materials in indoor environments with low air circulation.

Keywords: Exhalation, Radon gas, Dimension stones.

INTRODUÇÃO

O ²²²Rn é um gás insípido, inodoro e incolor à temperatura ambiente, que emite partículas alfa altamente ionizantes, mas com pouco poder de penetração, não sendo capaz de atravessar a

pele humana. Entretanto, o seu acúmulo em ambientes fechados com pouca ou nenhuma circulação de ar pode se tornar um risco para a saúde de quem reside e/ou trabalha nestes

locais. Ao ser inalado, o gás ^{222}Rn pode ficar retido nos pulmões, desintegrando-se inicialmente pela emissão de uma partícula α para ^{218}Po , que não é inerte quimicamente e tende a permanecer nos pulmões até sofrer novo decaimento α , e, assim por diante, até ser atingido o ^{206}Pb na série do ^{238}U (Young & Freedman, 2009).

Apesar da sua curta meia-vida, aproximadamente 3,85 dias, o ^{222}Rn é produzido continuamente pelo decaimento do ^{226}Ra , tratando-se de uma situação de equilíbrio dinâmico, na qual a taxa de produção é igual à taxa do decaimento (Young & Freedman, 2009).

De acordo com a Comissão Internacional de Proteção Radiológica (ICRP), cerca de 55% da radiação incidente sobre o ser humano provém do radônio e seus descendentes, mas a concentração desse gás no ar varia muito de um lugar para outro em função da variabilidade da composição dos solos e das rochas. Segundo dados da U. S. Environmental Protection Agency - EPA (2003) o gás radônio seria a causa número 2 de câncer pulmonar nos Estados Unidos, perdendo apenas para o cigarro.

Matérias divulgadas por algumas agências de comunicação norte-americanas em 2008, com destaque para o New York Times (MURPHY, 2008), relataram que altos níveis de gás radônio encontrados no interior de residências poderiam estar relacionados à utilização de rochas graníticas em pias, bancadas, soleiras e pisos. Tais notícias causaram grandes preocupações para o setor produtivo de rochas ornamentais em nosso país, tendo em vista que o Brasil é o maior fornecedor de rochas graníticas processadas para os Estados Unidos.

Estes fatos, aliados à crescente utilização de rochas como materiais de revestimento em

interiores de ambientes, geralmente com pouca ventilação que favorece o acúmulo do radônio que é cancerígeno, despertaram a atenção do setor brasileiro de rochas ornamentais para a sua quantificação e conhecimento dos mecanismos de sua transferência para o ar. Dentre os trabalhos no Brasil voltados para investigações radiométricas e de emanção do gás radônio em rochas ornamentais silicáticas estão os de Anjos et al. (2005), Moura (2005), Moura et al. (2005, 2011); Amaral (2011), Amaral et al. (2012), Artur et al. (2013) e Azevedo (2013).

Neste contexto, este artigo descreve a quantificação da exalação do gás ^{222}Rn em rochas ornamentais do Estado do Ceará utilizadas para fins ornamentais e de revestimento, com o intuito de se avaliar a sua contribuição para ambientes com baixa circulação de ar. Existe longa tradição de extração de rochas ornamentais no estado do Ceará, grande parte das quais provenientes de granitos evoluídos, dos tipos tardi a pós-orogênicos, e, portanto, susceptíveis a teores mais elevados de urânio por processos de fracionamento magmático durante as respectivas cristalizações.

A quantificação da exalação do gás radônio de uma rocha (gás que é liberado da superfície do material para o ar circundante) depende de fatores como o teor de urânio presente na rocha e a influência das feições texturais e estruturais do material utilizado, principalmente relacionadas ao desenvolvimento de redes porosas mais ou menos interligadas resultantes de microdescontinuidades como poros, fraturas, microfissuras e tipos de contatos minerais. Ressalta-se que o ^{238}U representa 99,3% dos isótopos de U, sendo também o radionuclídeo que produz por decaimento o ^{222}Rn , que é o alvo principal do presente estudo.

MATERIAIS E MÉTODOS

Métodos

O procedimento adotado para a realização da pesquisa envolveu a análise petrográfica, determinação de índices físicos (com ênfase para a porosidade das rochas) e do teor de U e o monitoramento da exalação do gás ^{222}Rn , isto com o intuito de avaliação do escape do

referido gás radioativo em função das propriedades petrográficas inerentes às rochas estudadas. De posse dos valores de exalação, foram efetuadas simulações das adições do gás ^{222}Rn produzido, considerando-se a aplicação de cada variedade de rocha estudada em ambiente padrão com baixa circulação de ar.

A análise petrográfica foi realizada no Laboratório de Microscopia do Departamento de Petrologia e Metalogenia (DPM) do IGCE/UNESP, onde foi identificada a composição mineralógica (minerais essenciais, acessórios e secundários e suas quantidades), a textura (dimensão, forma, distribuição e arranjo dos minerais), estado de alteração dos minerais (inalterados/alterados e, se alterados, tipos e intensidade de alteração), estrutura (anisotropia ao nível macro e microscópico), bem como o tipo e intensidade de microfissuramentos (intragrãos, intergrãos, transgranulares, fissuras abertas ou preenchidas e tipos de preenchimento). Os critérios para as análises petrográficas seguiram as diretrizes da norma da ABNT NBR 15845 - anexo A (ABNT, 2010a) e as recomendações contidas em Rodrigues et al. (1997) e Navarro (1998).

A determinação dos índices físicos, inerentes à densidade aparente, porosidade aparente e absorção de água, foi realizada no Laboratório de Rochas Ornamentais do DPM/IGCE/UNESP, de acordo com os procedimentos da norma ABNT NBR 15845 - anexo B (ABNT 2010b). Os índices físicos fornecem, indiretamente, indicações importantes sobre o estado de sanidade e a presença de micro-descontinuidades nas rochas, as quais propiciam e facilitam a percolação de fluidos e, conseqüentemente, a difusão do gás radônio.

Os teores de U foram obtidos por espectrometria de massa com plasma indutivamente acoplado (ICP-MS) na Acme Analytical Laboratories Ltd., no Canadá.

O monitoramento para quantificar a exalação do gás radônio das rochas foi efetuado segundo a rotina do Laboratório de Rochas Ornamentais do DPM/IGCE/UNESP, descrita em Artur et al. (2013). Consiste de circuito fechado utilizando-se a técnica da detecção ativa onde as amostras são colocadas dentro de garrafões de vidro Pyrex[®] (19 litros) e acondicionadas a vácuo superior a 400 mm Hg, em determinados ciclos de períodos de tempo (5, 10, 15, 20 e 25 dias). Para cada rocha estudada foram utilizados 4 filetes, com dimensões de 30 cm x 4 cm x 2 cm, retirados de placas com uma das superfícies

polida. Depois de cortadas, as amostras foram limpas com um pano umedecido em álcool e colocadas em estufa a 70°C por 24 horas. Após cada período de descanso dos corpos-de-provas das rochas em condições de vácuo, correspondente aos ciclos de 5, 10, 15, 20 e 25 dias, a quantificação da exalação do gás radônio foi realizada utilizando-se o equipamento AlphaGUARD (Professional Radon Monitor), fabricado pela Empresa Genitron Instruments.

Rochas ornamentais estudadas

Para os estudos foram selecionadas 15 rochas ornamentais quartzo-feldspáticas com diferentes aspectos texturais e estruturais (Prancha 1), exploradas no Estado do Ceará, nordeste do Brasil. As rochas são detentoras de padrões estéticos valorizados e com grande aceitação pelos mercados nacional e internacional e são extraídas em diversas frentes de lavra de sete localidades do Estado do Ceará (Figura 1).

Dentre as rochas selecionadas, treze correspondem a variedades de granitóides (duas delas com estruturas miloníticas e brechóides superimpostas) comercialmente designadas de Green Galaxy (GG), Juparaná Gold (JG), Verde Ceará (VC), Verde Light (VL), Vermelho Filomena (VF), Red Dragon (RD), Yellow Tropical (YT), Branco Cristal Quartzo (BCQ), Rosa Iracema (RI), Cinza Prata (CP), Branco Ceará (BC), Branco São Paulo (BSP) e Cinza Ouro Branco (COB), além de um pegmatito com estrutura brechóide denominado de Infinity Gold (IG) e de um conglomerado polimíctico comercializado como Bourdeaux Terracota (BT). As características petrográficas principais das rochas investigadas são apresentadas na Tabela 1.

A rocha **Green Galaxy** (Prancha 1-GG) é um ultramilonito quartzo-feldspático de coloração verde acinzentada explorado no município de Marco, região noroeste do Ceará. Localizado no interior da zona de cisalhamento Água Branca, o ultramilonito é o resultado de intensa deformação tectônica sobre pequeno corpo granítico intrusivo no embasamento cristalino Domínio Noroeste do Ceará (CPRM, 2003).

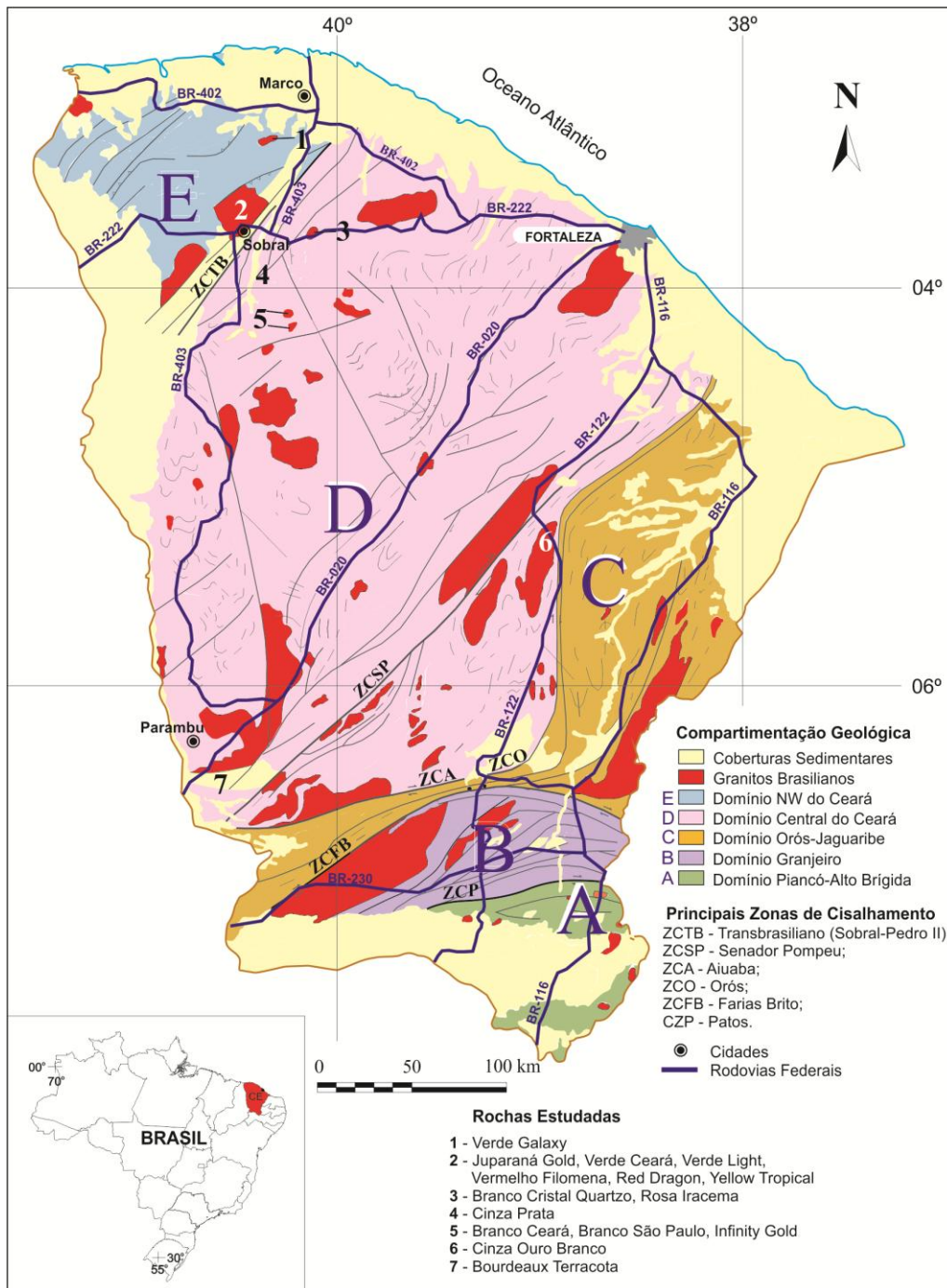
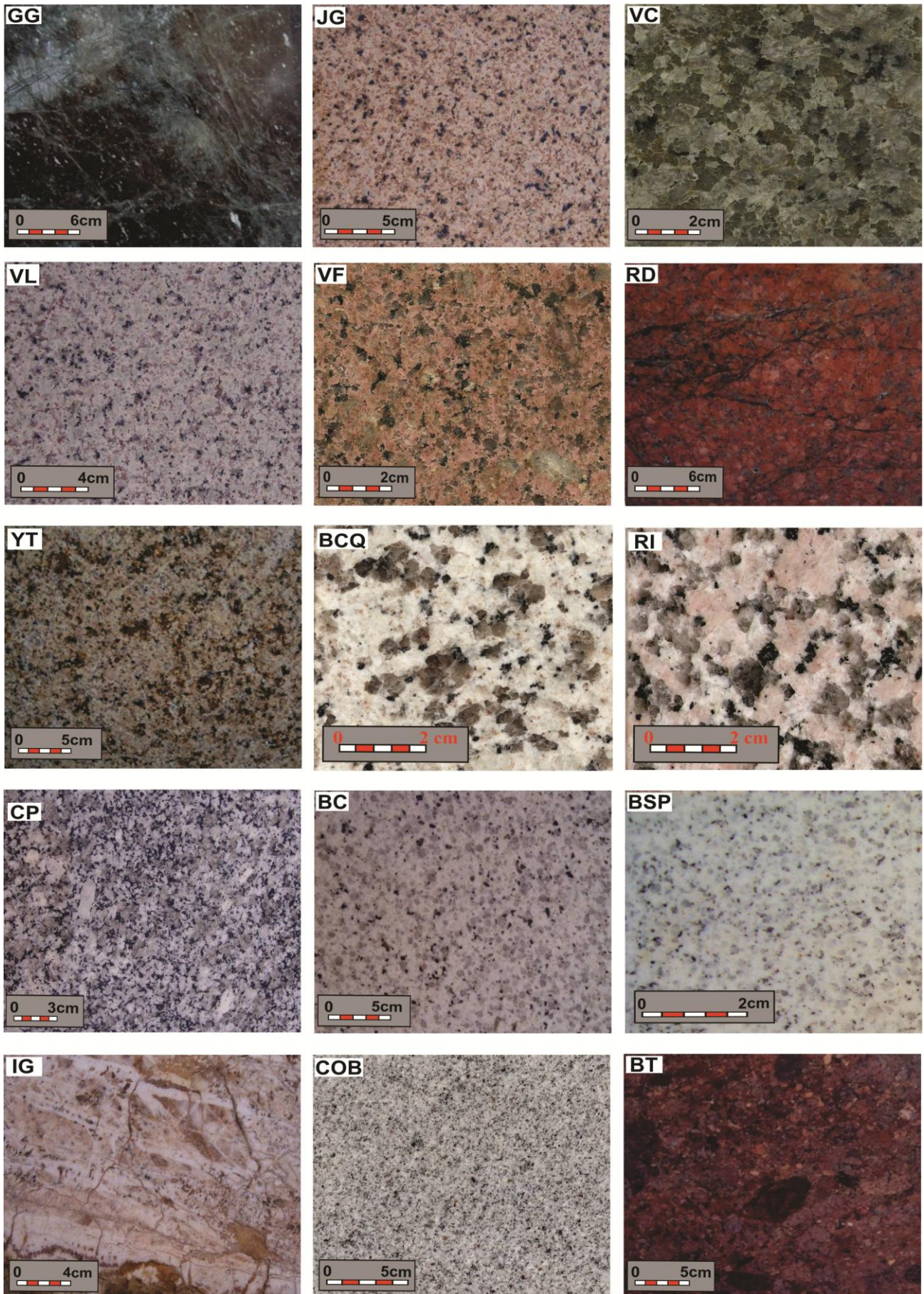


Figura 1 - Principais Domínios dos Terrenos Pré-Cambrianos do Estado do Ceará (Fonte: CPRM, 2003) com localização das amostras selecionadas.

As rochas Juparaná Gold, Verde Ceará, Verde Light, Vermelho Filomena, Red Dragon e Yellow Tropical correspondem a diferentes faciologias graníticas do batólito granítico Meruóca (Sial et al., 1981), situado a noroeste da cidade de Sobral. A variedade **Juparaná Gold** (ortoclásio sienogranito; Prancha 1-JG) apresenta estrutura isotrópica e textura inequigranular hipidiomórfica de granulação média a média-grossa, entre 0,3 mm e 15 mm, com predomínio entre 1 e 10 mm. A **Verde Ceará** (ortoclásio sienogranito com hornblenda

e fayalita; Prancha 1-VC) apresenta estrutura isotrópica e granulação média a média-grossa, com aspecto estético homogêneo. Exibe textura fanerítica inequigranular, hipidiomórfica, com granulação entre 3 mm e 25 mm e predomínio entre 4 mm e 10 mm. A **Verde Light** (ortoclásio sienogranito com hornblenda; Prancha 1-VL) apresenta estrutura isotrópica pouco inequigranular, hipidiomórfica, com granulação oscilando entre 0,2 mm a aproximadamente 25 mm, com predomínio entre 3 mm e 6 mm.



Prancha 1. Placas polidas das rochas ornamentais selecionadas. GG - Green Galaxy; JG - Juparaná Gold; VC - Verde Ceará; VL - Verde Light; VF - Vermelho Filomena; RD - Red Dragon; YT - Yellow Tropical; BCQ - Branco Cristal Quartzo; RI - Rosa Iracema; CP - Cinza Prata; BC - Branco Ceará; BSP - Branco São Paulo; IG - Infinity Gold; COB - Cinza Ouro Branco; BT - Bourdeaux Terracota.

A rocha **Vermelha Filomena** (ortoclásio sienogranito com hornblenda; Prancha 1-VF) apresenta estrutura isotrópica e textura fanerítica discretamente inequigranular, hipidiomórfica, média a média-grossa. A granulação média oscila de 0,2 mm a 12 mm, com predominância de 2 mm a 4,5 mm. A **Red Dragon** (sienogranito brechóide; Prancha 1-RD) se caracteriza pela coloração vermelho carne devida a forte oxidação do ferro presente nos cristais de feldspato potássico. A intensidade de cataclase é variável, com porções praticamente preservadas exibindo estrutura isotrópica e textura fanerítica inequigranular de granulação grossa a muito grossa e frações menores, de aspecto anastomosado, fortemente cataclásticas. Os cristais de feldspato potássico apresentam dimensões seriadas oscilando de 2 mm a 25 mm, com predominância entre 10 mm e 20 mm. A **Yellow Tropical** (ortoclásio sienogranito com hornblenda e fayalita; Prancha 1-YT) apresenta estrutura isotrópica com textura fanerítica inequigranular a megaporfirítica serial com granulação variando de poucos milímetros a 25 mm, e predomínio de 0,4 mm a 15 mm.

As variedades Branco Cristal Quartzo e Rosa Iracema são exploradas no *stock* granítico Serra do Barriga (Mattos, 2005; Mattos et al., 2013), no município de Sobral, região NNW do Estado do Ceará. A **Branco Cristal Quartzo** (sienogranito com hornblenda; Prancha 1-BCQ) exibe estrutura isotrópica e textura fanerítica inequigranular hipidiomórfica, granulação média a média-grossa com dimensões entre 0,5 mm e 35 mm, e predominância de 2 mm a 5 mm. A rocha **Rosa Iracema** (sienogranito com hornblenda; Prancha 1-RI) apresenta estrutura isotrópica com textura fanerítica inequigranular hipidiomórfica a xenomórfica, com granulação de submilimétrica a cerca de 30 mm e 40 mm e predominância entre 5 mm e 15 mm.

A rocha **Cinza Prata** (Prancha 1-CP) é um granodiorito contendo hornblenda, com estrutura isotrópica e textura fanerítica inequigranular a porfirítica seriada, com grã de 0,2 mm a 25 mm e predomínio entre 3 mm e 8 mm. Localizado ao sul do município de Sobral (Figura 1) integra um conjunto de pequenos corpos granitóides como biotita granitos,

monzogranitos, sienitos, quartzo monzonitos e granitos porfiríticos cartografados pela CPRM (2003).

As rochas ornamentais Branco Ceará, Branco São Paulo e Infinity Gold são exploradas em pequenos corpos graníticos na região centro-noroeste do estado do Ceará, inseridos no Complexo Migmatítico Santa Quitéria, do Domínio Central do Ceará (CPRM, 2003). O **Branco Ceará** (microclínio-albita granito; Prancha 1-BC) é um álcali-granito hololeucocrático com estrutura maciça a discretamente orientada, pouco inequigranular, com granulação de 1 mm e 7 mm, e predomínio entre 3 mm e 5 mm. O **Branco São Paulo** (microclínio-albita granito; Prancha 1-BSP) é um álcali-granito com estrutura maciça e granulação fina a média-fina, entre 0,2 mm e 3,5 mm, com predominância de 0,3 mm a 0,7 mm. Imersos na matriz ocorrem cristais de quartzo com formas prismáticas e subhexagonais. O **Infinity Gold** (Prancha 1-IG) corresponde a um albita pegmatito granítico brechóide bastante alterado (argilizado) de coloração bege esbranquiçada com partes creme amarelada devidas a presença de óxidos e hidróxidos de ferro. Apresenta poros e cavidades com dimensões variadas causadas pela desagregação da biotita e feldspatos argilizados. Exibe textura pegmatítica heterogênea, com granulação desde gigante a localmente com porções de granulação média a média-grossa. A fração pegmatóide é dominante, com cristais de albita com dimensões que superam a 10 cm de extensão contendo frequentes inclusões de cristais de quartzo com até 1 cm ou maiores e de pequenos agregados biotíticos.

O **Cinza Ouro Branco** (Prancha 1-COB) é um monzogranito com muscovita e biotita explorado no maciço granítico de Banabuiú (Lima et al., 2010), no município homônimo, região centro-leste do Ceará. Exibe estrutura isotrópica com textura hipidiomórfica equigranular de granulação fina a fina-média, entre submilimétrica e 5 mm, com predominância de 0,3 mm a 2 mm.

O tipo comercial **Bourdeaux Terracota** (Prancha 1-BT) é um conglomerado polimíctico pertencente à Formação Angico Torto, integrante do Grupo Rio Jucá, da Bacia do

Tabela 1. Síntese das propriedades petrográficas das rochas ornamentais estudadas.

Mineralogia (%)	Green Galaxy (GG)	Juparaná Gold (JG)	Verde Ceará (VC)	Verde Light (VL)	Vermelho Filomena (VF)
Quartzo	26,5	31,0	33,0	35,0	35,0
Plagioclásio	60,0 (Plag. + FK)	6,5	11,4	11,7	9,0
Feldspato Potássico		53,0	47,0	45,0	48,0
Biotita	--	5,9	1,5	3,5	2,6
Hornblenda	--	--	3,0	2,0	2,0
Fayalita	--	--	0,4	--	--
Opacos	--	0,4	Tr	0,6	0,3
Apatita	--	Tr	Tr	Tr	Tr
Titanita	Tr	--	0,2	Tr	Tr
Allanita	Tr	--	Tr	Tr	Tr
Zircão	Tr	0,2	0,4	0,2	0,2
Fluorita	--	0,5	0,4	0,5	0,4
Secundários: clorita, sericita, epidoto, carbonato, iddingsita, hidróxido de ferro, argilomineral	13,5	2,5	2,7	1,5	2,5
Minerais Pesados (%)	13,5	9,5	8,6	8,3	8,0
Estrutura	milonítica	isotrópica	isotrópica	isotrópica	isotrópica
Textura	inequigranular	inequigranular	inequigranular	inequigranular	inequigranular
Granulação (mm)					
Variação	0,1 – 15,0	0,3 – 15,0	0,3 – 25,0	0,2 – 25,0	0,2 – 12,0
Predominância	0,2 – 0,4	1,0 – 10,0	4,0 – 10,0	3,0 – 6,0	2,0 – 4,5
Microfissuras/mm ²	1,2	0,68	0,55	0,25	0,25
Microfissuras (%)					
Intragrãos Preenchidas	20,3	49,2	55,3	25,0	22,9
Intragrãos Não Preenchidas	10,0	31,2	21,7	54,3	62,6
Intergrãos Preenchidas	64,3	7,0	11,1	8,6	6,1
Intergrãos Não Preenchidas	5,4	12,6	11,9	12,1	8,4
Alteração Mineral					
Feldspato Potássico	Moderada	Moderada	Moderada	Fraca a Moderada	Moderada
Plagioclásio	Moderada	Fraca a Moderada	Fraca a Moderada	Moderada	Moderada
Biotita	Moderada	Moderada	Moderada	Moderada	Moderada
Contatos (%)					
Planos	4	13	5	11	12
Serrilhados	61	39	48	47	48
Côncavo-convexos	37	48	47	42	40
Classificação Petrográfica	Ultramilonito quartzo-feldspático	Ortoclásio sienogranito	Ortoclásio sienogranito c/ hornbl. e fayalita	Ortoclásio sienogranito c/ hornblenda	Ortoclásio sienogranito c/ hornblenda

Tabela 1. continuação.

Mineralogia (%)	Red Dragon (RD)	Yellow Tropical (YT)	Branco Cristal Quartz (BCQ)	Rosa Iracema (RI)	Cinza Prata (CP)
Quartzo	25,0	34,0	34,0	31,0	35,0
Plagioclásio	21,0	6,1	18,0	17,1	40,0
Feldspato Potássico	45,0	52,0	40,0	42,0	12,2
Biotita	--	1,3	5,0	6,0	8,0
Hornblenda	--	2,5	Tr	0,5	2,0
Fayalita	--	0,5	--	--	--
Opacos	Tr	0,4	0,4	0,3	Tr
Apatita	Tr	0,2	Tr	0,3	0,5
Titanita	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr
Allanita	--	Tr	Tr	Tr	Tr
Zircão	Tr	0,2	0,2	0,3	0,3
Fluorita	--	--	0,4	Tr	--
Secundários: clorita, sericita, iddingsita, epidoto, hidróxido de ferro, argilominerais	9,0	2,8	2	2,5	2
Minerais Pesados (%)	9,0	7,9	8,0	9,9	12,8
Estrutura	maciça	isotrópica	isotrópica	isotrópica	isotrópica
Textura	inequigranular	inequigranular	inequigranular	inequigranular	fanerítica
Granulação (mm)					
Variação	0,2 – 25,0	0,4 – 15,0	0,5 – 35,0	0,5 – 35,0	0,2 – 25,0
Predominância	0,3 – 10,0	1,0 – 3,5	2,0 – 5,0	5,0 – 15,0	3,0 – 8,0
Microfissuras/mm ²	1,1	0,71	0,35	0,25	0,39
Microfissuras (%)					
Intragrãos Preenchidas	26	30,9	26,6	43,4	54,7
Intragrãos Não Preenchidas	35	50,5	62,0	38,9	22,7
Intergrãos Preenchidas	17,5	6,5	2,5	5,0	15,6
Intergrãos Não Preenchidas	21,5	12,1	8,9	12,7	7,0
Alteração Mineral					
Feldspato Potássico	Moderada a Alta	Moderada	Fraca	Fraca	Fraca
Plagioclásio	Moderada a Alta	Moderada	Moderada	Moderada	Moderada
Biotita	Moderada a Alta	Moderada	Moderada	Moderada	Fraca
Contatos (%)					
Planos	4	6	12	17	18
Serrilhados	47	48	52	54	38
Côncavo-convexos	49	46	36	29	44
Classificação Petrográfica	Sienogranito Brechóide	Ortoclásio sienogranito c/ hornbl. e fayalita	Sienogranito com hornblenda	Sienogranito com hornblenda	Granodiorito com hornblenda

Tabela 1. continuação.

Mineralogia (%)	Branco Ceará (BC)	Branco São Paulo (BSP)	Infinity Gold (IG)	Cinza Ouro Branco (COB)	Bourdeux Terracota (BT)
Quartzo	33,5	32,0	35,0	36,0	36
Plagioclásio	35,0 (albita)	45,0 (albita)	60 (albita)	27,5	10
Feldspato Potássico	23	13,9	--	28,0	46,6
Biotita	--	--	5,0	4,0	--
Hornblenda	--	--	--	--	--
Muscovita	1,5	3,0	Tr	3,5	2,0
Zinnwaldita	4,0	4,5	--	--	--
Opacos	Tr	Tr	--	Tr	0,5
Apatita	Tr	0,2	--	Tr	0,5
Titanita	--	--	--	--	--
Allanita	--	--	--	--	0,4
Zircão	0,5	Tr	--	Tr	Tr
Fluorita	1,5	0,5	--	--	--
Topázio	0,5	0,4	--	--	--
Secundários: clorita, sericita, epidoto, carbonato, hidróxido de ferro, argilominerais	0,5	0,5	Tr	1	4
Minerais Pesados (%)	8,5	9,1	5,0	8,5	7,4
Estrutura	isotrópica	isotrópica	isotrópica	isotrópica	maciça
Textura	inequigranular	inequigranular	pegmatítica	inequigranular	clástica
Granulação (mm)					
Variação	1,0 – 7,0	0,2 – 3,5	0,4 – 100,0	0,1 – 5,0	0,2 – 60,0
Predominância	3,0 – 5,0	0,3 – 0,7	0,8 – 15,0	0,3 – 2,0	0,1 – 2,5
Microfissuras/mm ²	0,18	0,20	1,3	0,38	0,53
Microfissuras (%)					
Intragrãos Preenchidas	22,5	10,6	17,4	16,6	18,3
Intragrãos Não Preenchidas	61,2	83,0	30,4	74,5	45,2
Intergrãos Preenchidas	2,0	2,1	8,7	4,0	15,0
Intergrãos Não Preenchidas	14,3	4,3	43,5	4,9	21,5
Alteração Mineral					
Feldspato Potássico	Moderada	Incipiente	Alta	Moderada	Moderada
Plagioclásio	Incipiente	Incipiente	Alta	Moderada	Fraca a Moderada
Biotita	Incipiente	Incipiente	Alta	Moderada	Incipiente
Contatos (%)					
Planos	5	8	32	11	15
Serrilhados	75	86	30	58	50
Côncavo-convexos	20	6	38	31	35
Classificação Petrográfica	Microclínio-albita Granito	Microclínio-albita Granito	Pegmatito granítico brechóide	Monzogranito com muscovita e biotita	Conglomerado Polimítico

Cococi (CPRM, 2003). Rocha de coloração vermelha escura, de natureza sedimentar clástica com moderado grau de seleção. É composta por sedimentos terrígenos e exibe estrutura maciça e textura clástica, onde os fragmentos/clastos perfazem cerca de 70% que ocorrem dispersos em matriz de granulação fina, entre 0,1 mm a menores de 2 mm, com

cimento areno-argiloso, ferruginoso e carbonático responsável pela coesão da rocha. Imersos na matriz ocorrem clastos subarredondados e subangulosos de baixa esfericidade, constituídos por megacristais de quartzo e de feldspatos e por fragmentos de rochas de composição variada, cujas dimensões variam de 2 mm a 60 mm.

RESULTADOS E DISCUSSÕES

Índices físicos

Os resultados dos índices físicos (Tabela 2; Figuras 2 e 3) revelam, com exceção do pegmatito Infinity Gold e do conglomerado Bourdeux Terracota, que os demais granitos apresentam valores médios que superam os sugeridos pela norma ABNT NBR 15844 (2010c) como requisitos para granitos, ou seja, apresentam valores de porosidade aparente <1%, absorção de água <0,4% e massa específica seca >2.560kg/m³.

A rocha Infinity Gold (IG) com densidade seca aparente média de 2.314 kg/m³ e com

porosidade aparente e absorção de água de 5,68% e 2,46%, respectivamente, corresponde a um pegmatito granítico brechóide fortemente afetado por processos intempéricos e intensamente microfissurado e fraturado, com cristais de feldspato em avançado estágio de argilização (Prancha 1-IG; Tabela 1). É conveniente destacar que a representação das barras para a porosidade aparente e absorção de água do Infinity Gold (IG) na Figura 3 sofreu uma redução de 4 vezes em suas alturas em relação aos valores das demais rochas representadas.

Tabela 2. Resultados médios dos índices físicos.

Amostra	Densidade aparente seca (kg/m ³) ± DV (CV)	Densidade aparente saturada (kg/m ³) ± DV (CV)	Porosidade aparente (%) ± DV (CV)	Absorção de água (%) ± DV (CV)
Green Galaxy (GG)	2695 ± 8 (0,3)	2697 ± 8 (0,3)	0,14 ± 0,04 (31,4)	0,05 ± 0,02 (31,5)
Juparaná Gold (JG)	2612 ± 2 (0,1)	2618 ± 2 (0,1)	0,67 ± 0,03 (4,8)	0,26 ± 0,01 (4,8)
Verde Ceará (VC)	2624 ± 5 (0,2)	2628 ± 5 (0,2)	0,41 ± 0,03 (7,6)	0,16 ± 0,01 (7,7)
Verde Lihgt (VL)	2616 ± 2 (0,10)	2621 ± 1 (0,1)	0,50 ± 0,05 (10,1)	0,19 ± 0,02 (10,2)
Vermelho Filomena (VF)	2605 ± 2 (0,1)	2610 ± 2 (0,1)	0,51 ± 0,02 (4,3)	0,19 ± 0,01 (4,3)
Red Dragon (RD)	2610 ± 9 (0,3)	2618 ± 8 (0,3)	0,77 ± 0,15 (19,3)	0,30 ± 0,06 (19,3)
Yellow Tropical (YT)	2613 ± 6 (0,2)	2621 ± 6 (0,2)	0,79 ± 0,05 (6,0)	0,30 ± 0,02 (6,1)
Branco Cristal Quartzo (BCQ)	2613 ± 2 (0,1)	2619 ± 2 (0,1)	0,51 ± 0,02 (3,8)	0,20 ± 0,01 (3,8)
Rosa Iracema (RI)	2631 ± 4 (0,1)	2636 ± 4 (0,1)	0,48 ± 0,03 (6,7)	0,18 ± 0,01 (6,8)
Cinza Prata (CP)	2685 ± 8 (0,3)	2688 ± 8 (0,3)	0,38 ± 0,04 (9,2)	0,14 ± 0,01 (9,3)
Branco Ceará (BC)	2608 ± 2 (0,1)	2616 ± 1 (0,1)	0,78 ± 0,08 (10,8)	0,30 ± 0,03 (10,8)
Branco São Paulo (BSP)	2635 ± 7 (0,3)	2642 ± 7 (0,3)	0,74 ± 0,10 (14,0)	0,28 ± 0,04 (14,1)
Infinity Gold (IG)	2314 ± 30 (1,3)	2371 ± 22 (0,9)	5,68 ± 0,95 (16,7)	2,46 ± 0,44 (18,1)
Cinza Ouro Branco (COB)	2609 ± 1 (0,1)	2618 ± 1 (0,04)	0,89 ± 0,04 (4,2)	0,34 ± 0,01 (4,3)
Bourdeaux Terracota (BT)	2595 ± 4 (0,2)	2607 ± 3 (0,1)	1,26 ± 0,14 (11,0)	0,48 ± 0,05 (11,1)

Para a rocha Bourdeaux Terracota (BT), um conglomerado polimíctico, suas elevadas porosidade aparente (1,26%) e absorção de água (0,48%) refletem sua origem sedimentar terrígena clástica dada por uma matriz areno-argilosa contendo quantidades variadas de clastos subarredondados e subangulosos (30% a 70%) de baixa esfericidade representados tanto por minerais (quartzo e feldspatos) quanto por fragmentos de rochas diversas (graníticas, gnáissicas, quartzíticas) com dimensões de 2 mm a 60 mm (Prancha 1-BT).

A Figura 2 mostra a boa correlação entre as densidades aparentes seca e saturada e correspondentes teores de minerais pesados. Destaca-se que a baixa densidade aparente fornecida pela rocha Infinity Gold (2.314 kg/m³ na condição seca) deve-se à sua elevada alteração intempérica e intenso grau de fraturamento, o que, inclusive, se reflete no considerável aumento de sua densidade no estado saturado (2.371 kg/m³) em relação ao verificado para as demais rochas.

Já a discrepância entre o grau de microfissuramento e respectivas porosidades e absorções de água entre as rochas (Figura 3) estaria relacionada a determinados aspectos petrográficos como a variação da granulação, do grau de sanidade dos materiais, dos tipos e dimensões das microfissuras presentes (intragranular, intergranular, transgranular) e

respectivas intensidades de preenchimento por minerais secundários (Tabela 1), os quais influenciam na permeabilidade das rochas. Assim, por exemplo, o ultramilonito Green Galaxy (GG) com o maior grau de microfissuramento (1,2 microfissuras/mm²) dentre as rochas inalteradas (só menor que o pegmatito intemperizado Infinity Gold) e com as menores percentagens de porosidade (0,14%) e de absorção de água (0,05%) (Tabela 3) é a rocha com a maior percentagem de microfissuras preenchidas e detentora da menor granulação dentre as rochas estudadas (Tabela 1).

**Figura 2.** Relação entre a densidade aparente e o teor de minerais pesados.

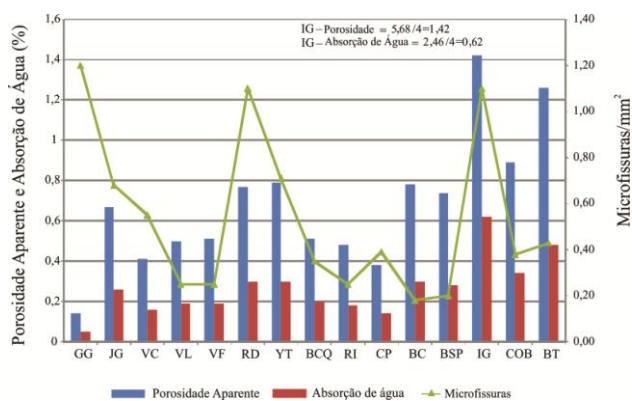


Figura 3. Relação entre a porosidade, absorção de água e as microfissuras.

Exalação do gás radônio e teores de urânio

A quantificação da exalação do gás radônio foi obtida através do monitoramento da evolução temporal do referido gás em circuito fechado por meio de ciclos pré-definidos de 5, 10, 15, 20 e 25 dias (Tabela 3). O teor de U nas rochas (Tabela 3) variou de 0,2 a 13,6 ppm.

No geral as rochas estudadas apresentaram baixos valores de exalação de radônio, sendo que após o ciclo de 25 dias de confinamento nove rochas forneceram valores de exalação inferiores a 150 Bq/m^3 . Valores superiores a 150 Bq/m^3 ao final do ciclo de 25 dias foram fornecidos por 6 rochas, correspondentes aos sienogranitos: Juparaná Gold ($321,67 \text{ Bq/m}^3$), Vermelho Filomena ($199,00 \text{ Bq/m}^3$), Yellow Tropical ($153,33 \text{ Bq/m}^3$), Branco Cristal Quartzo ($715,33 \text{ Bq/m}^3$), Rosa Iracema ($244,33 \text{ Bq/m}^3$) e pelo albita granito Branco São Paulo ($199,33 \text{ Bq/m}^3$). O pegmatito granítico Infinity Gold (IG) foi o que apresentou os menores valores de exalação de ^{222}Rn dentre as rochas estudadas, do primeiro ao último ciclo do monitoramento, isto é, o radônio exalado variou de $7,33 \text{ Bq/m}^3$ a $19,67 \text{ Bq/m}^3$. Já, o sienogranito Branco Cristal Quartzo (BCQ) foi a rocha que forneceu os valores mais elevados, com uma variação de $329,33 \text{ Bq/m}^3$ a $715,33 \text{ Bq/m}^3$.

Tabela 3. Teor de U (ppm) e concentração de atividade do gás ^{222}Rn exalado pelas rochas ao final de cada ciclo.

Nome Comercial	Classificação Petrográfica	$^{222}\text{Rn} \text{ (Bq/m}^3\text{)}$					U (ppm)
		5 dias	10 dias	15 dias	20 dias	25 dias	
Green Galaxy (GG)	Ultramilonito quartzo-feldspático	9,33	19,00	48,00	17,00	60,00	5,1
Juparaná Gold (JG)	Ortoclásio sienogranito	213,00	273,00	314,00	305,33	321,67	4,7
Verde Ceará (VC)	Ortoclásio sienogranito com hornblenda e fayalita	35,33	59,67	62,67	71,33	52,67	3,5
Verde Lihgt (VL)	Ortoclásio sienogranito com hornblenda	72,00	82,67	77,33	140,00	94,00	5,0
Vermelho Filomena (VF)	Ortoclásio sienogranito com hornblenda	78,00	153,67	136,33	178,33	199,00	4,3
Red Dragon (RD)	Sienogranito brechóide	37,33	42,67	45,33	74,33	54,33	3,1
Yellow Tropical (YT)	Ortoclásio sienogranito c/ hornblenda e fayalita	195,67	251,67	181,33	178,33	153,33	4,0
Branco Cristal Quartzo (BCQ)	Sienogranito c/ hornblenda	329,33	592,00	462,00	481,33	715,33	13,6
Rosa Iracema (RI)	Sienogranito c/ hornblenda	91,00	133,00	287,33	256,00	244,33	4,2
Cinza Prata (CP)	Granodiorito c/ hornblenda	54,33	54,00	74,67	124,00	72,33	1,5
Branco Ceará (BC)	Microclínio-albita granito	56,33	66,33	85,00	83,00	129,33	11,9
Branco São Paulo (BSP)	Microclínio-albita granito	102,33	139,67	159,33	102,67	199,33	8,1
Infinity Gold (IG)	Pegmatito granítico brechóide	7,33	14,33	10,33	19,67	11,33	0,2
Cinza Ouro Branco (COP)	Monzogranito c/ muscovita e biotita	51,00	41,33	40,33	54,00	39,67	3,2
Bourdeaux Terracota (BT)	Conglomerado polimíctico	54,67	63,33	54,67	93,00	81,33	2,7

Os resultados dos cinco ciclos de monitoramento de exalação de Rn para cada rocha estão representados na Figura 4 por diferentes curvas de evolução que mostram que não ocorre uma constante emanção ao longo dos ciclos e nem estabilização da exalação do gás ao se atingir o 25º dia de monitoramento, período este correspondente à condição de

equilíbrio radioativo para a geração do ^{222}Rn a partir do ^{226}Ra . Esta constatação, também verificada por Amaral et al. (2012) para rochas ornamentais do Espírito Santo, sugere que o radônio gerado na rocha não consegue alcançar esse equilíbrio devido uma boa parcela do gás ficar retida na rede cristalina dos minerais e na trama da rocha.

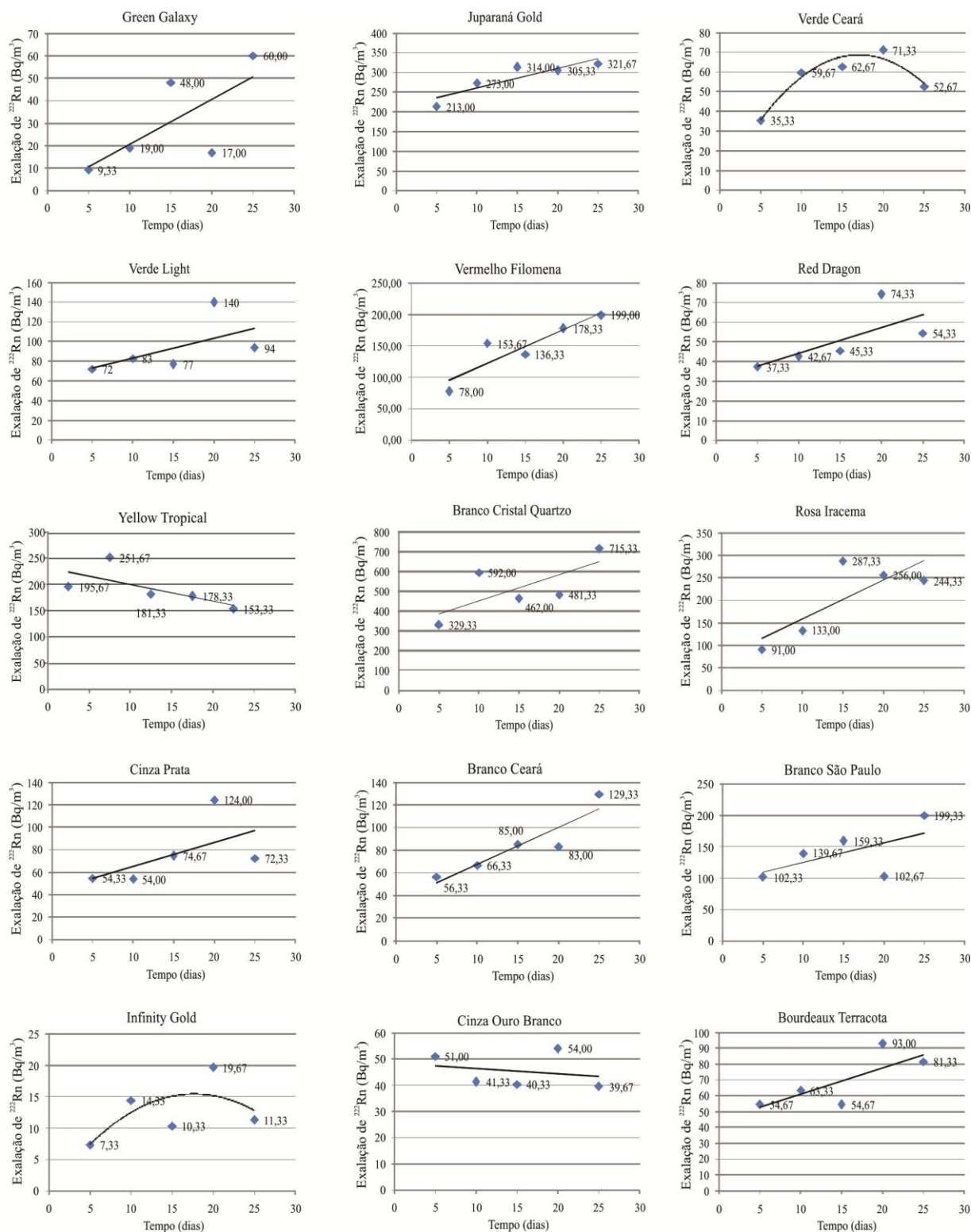


Figura 4. Evolução da exalação de ^{222}Rn nos diferentes ciclos de monitoramento em condições de vácuo

A Figura 5, reunindo as curvas de evolução de exalação do Rn para as rochas estudadas, evidencia a variação de comportamento do gás entre as diferentes rochas pesquisadas e as oscilações na concentração de atividade do gás

^{222}Rn nos diferentes ciclos de monitoramento, mostrando também que na maioria dos casos não há uma estabilização da exalação do gás ao longo dos ciclos. Este fato, realçado pelo comportamento do granito Branco Cristal

Quartzo (BCQ), caracterizado pela maior exalação do gás Rn dentre as rochas estudadas ($715,33 \text{ Bq/m}^3$), estaria relacionado à velocidade/tempo para a difusão do gás Rn gerado no interior da rocha até o meio exterior, isto é, seria necessário um tempo maior de monitoramento da amostra, em condições de

vácuo, para se atingir um valor constante da exalação do gás Rn. Conclui-se, desta forma, que a exalação do gás Rn pelas rochas estudadas pode ser maior que a obtida nos 25 dias de monitoramento, sobretudo para aquelas com rede porosa mais pronunciada.

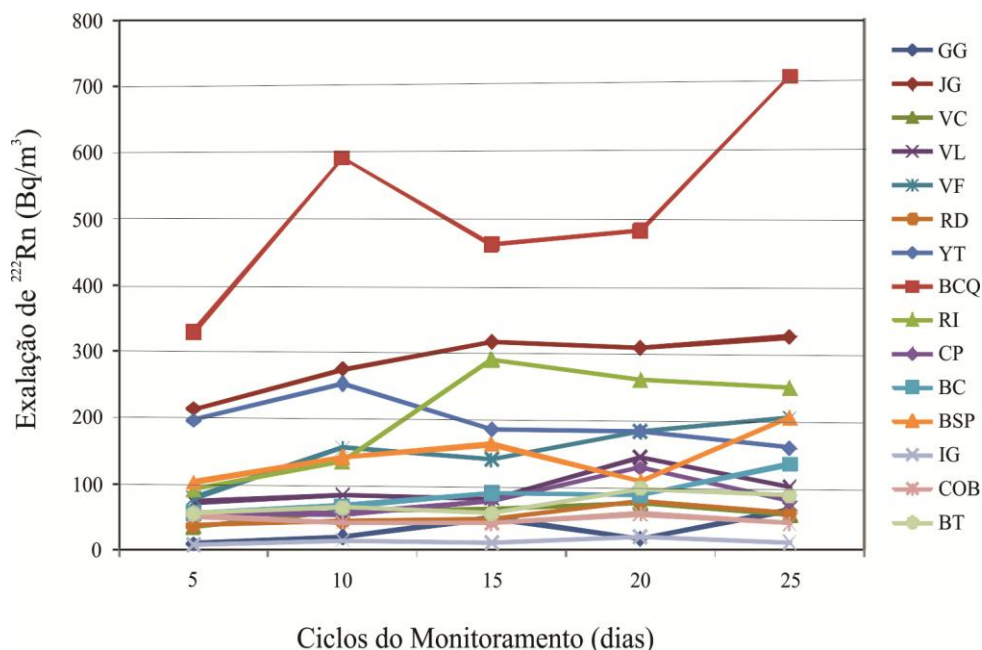


Figura 5. Evolução da exalação de ^{222}Rn (Bq/m^3) em todos os ciclos monitorados.

O gráfico da Figura 6 mostra a relação entre o teor de U e a exalação de ^{222}Rn após 25 dias de monitoramento de cada amostra estudada. Não há correlação significativa entre estes parâmetros, embora o maior valor de urânio para o granito Branco Cristal Quartzo (BCQ) está associado a uma maior exalação de Rn.

Observa-se, portanto, que nem sempre o teor mais elevado de U corresponde à maior exalação do gás ^{222}Rn da rocha. Por exemplo, a rocha Cinza Ouro Branco (COB) com um teor de 3,2 ppm de U exala menos gás radônio (40 Bq/m^3) que o Cinza Prata (CP) com 1,5 ppm de U e exalação de Rn de 72 Bq/m^3 . Por outro lado, o Branco Cristal Quartzo (BCQ) e o Branco Ceará (BC) com teores de urânio bastante próximos, respectivamente, 13,6 ppm e 11,9 ppm, apresentam exalação de gás radônio significativamente distinta ($715,3 \text{ Bq/m}^3$ para o BCQ e $129,3 \text{ Bq/m}^3$ para o BC). Assim, fatores relacionados aos aspectos texturais e estruturais da rocha como a intensidade e tipos de microfissuramento (intragranular, intergranular, transgranular) e respectivos preenchimentos, a

granulação mais desenvolvida das rochas com consequentes interfaces minerais mais frouxas, dentre outros aspectos petrográficos, interferem na maior ou menor difusão do gás radônio do interior da rocha até a sua superfície.

A distribuição de urânio na rocha também é outro fator de grande relevância, pois, se o U for incorporado por minerais mais susceptíveis a alterações ou precipitado em materiais de preenchimento de microfissuras ou, ainda, como adsorção em determinados minerais, poderá facilitar a difusão do gás radônio então gerado. Neste contexto, uma rocha mais intensamente fraturada pode conter maiores quantidades de materiais de preenchimento portadores de elementos radioativos e, portanto, liberar o gás gerado diretamente na rede porosa da rocha.

Minerais como zircão e allanita com U em sua constituição química podem sofrer processos de metamictização que levam, inclusive, à destruição parcial das estruturas cristalinas dos minerais circunvizinhos, sendo normalmente acompanhada de irradiação

microporosa que pode facilitar a migração do gás Rn gerado. Também há de se considerar que a biotita pode reter de 19% a 22% do total de U da rocha, enquanto que o feldspato potássico pode conter de 2 a 3 ppm do U total

(Moreira-Nordemann, 1977). Estes minerais são bastante susceptíveis a alterações, sendo a biotita detentora de sistema de clivagem proeminente que pode conduzir a maior difusão do radônio.

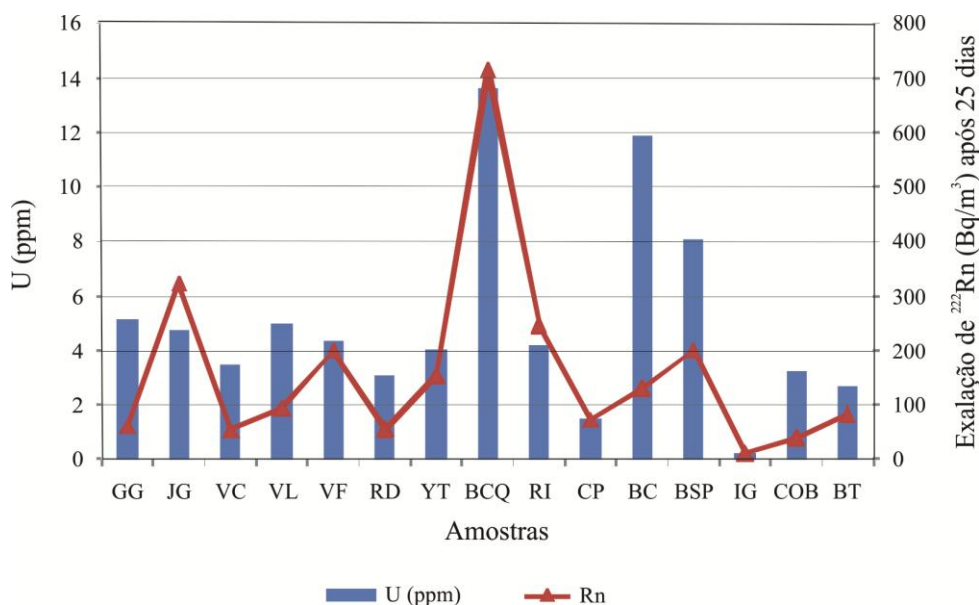


Figura 6. Relação entre o teor de U e o ²²²Rn exalado após 25 dias.

Eficiência da emanção do gás radônio

A eficiência de emanção do gás radônio, *E*, como definida por Wanty et al. (1992), pode ser expressa pela equação:

$$E = \frac{({}^{222}\text{Rn})_{\text{ar}}}{({}^{222}\text{Rn})_{\text{ar}} + ({}^{222}\text{Rn})_{\text{rocha}}}$$

Wanty et al. (1992) consideraram que o fator de eficiência de emanção *E* é sempre menor que 0,5 e, ao atingir este nível, o material estaria exalando todo o gás radônio produzido. Para rochas, rotineiramente este fator se situa abaixo de 0,3, valor este que indicaria que a exalação é de aproximadamente a metade do gás ²²²Rn gerado pela rocha.

A concentração de atividade de ²²⁶Ra (em Bq/kg) pode ser determinada multiplicando-se a concentração de U (ppm) presente na rocha por 12,34. Pela condição de equilíbrio radioativo secular, ela equivale à concentração de

atividade de ²²²Rn gerado na rocha a partir de seu pai, o ²²⁶Ra.

A conversão do radônio exalado no ar pela rocha (em Bq/m³) para Bq/kg é feita pela equação:

$${}^{222}\text{Rn} \left(\frac{\text{Bq}}{\text{kg}} \right) = \frac{{}^{222}\text{Rn} \left(\frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} \right) \times V}{\text{peso da amostra (kg)}}$$

onde: *V* = volume do garrafão (19 L)

Os resultados obtidos (Tabela 4) demonstram que a quantidade do gás ²²²Rn efetivamente emanado das rochas estudadas é extremamente ínfima em relação à quantidade total de ²²²Rn gerada pelas rochas. Dentre as rochas analisadas, oito delas (GG, VC, VL, RD, BC, BSP, COB e BT) forneceram um fator *E* menor que 0,02, três rochas (YT, RI e CP) forneceram um fator *E* entre 0,02 e 0,03 e quatro rochas (JG, VF, BCQ e IG) forneceram um fator *E* superior a 0,03.

Tabela 4. Eficiência de emanção do gás ^{222}Rn a partir do ^{222}Rn calculado e exalado pelas rochas

Amostras	U (ppm)	Teores de ^{226}Ra e ^{222}Rn calculados a partir do Urânio		^{222}Rn exalado da amostra após 25 dias de confinamento		Fator E - eficiência de exalação de ^{222}Rn
		^{226}Ra (Bq/kg)	^{222}Rn gerado (Bq/kg)	^{222}Rn (Bq/m ³)	^{222}Rn (Bq/kg)	
Green Galaxy (GG)	5,1	62,93	62,93	60,00	0,40	0,006
Juparaná Gold (JG)	4,7	58,00	58,00	321,67	2,46	0,041
Verde Ceará (VC)	3,5	43,19	43,19	52,67	0,44	0,010
Verde Lihgt (VL)	5,0	61,70	61,70	94,00	0,70	0,011
Vermelho Filomena (VF)	4,3	53,06	53,06	199,00	1,91	0,035
Red Dragon (RD)	3,1	38,25	38,25	54,33	0,40	0,010
Yellow Tropical (YT)	4,0	49,36	49,36	153,33	1,14	0,023
Branco Cristal Quartzo (BCQ)	13,6	167,82	167,82	715,33	6,04	0,035
Rosa Iracema (RI)	4,2	51,83	51,83	179,00	1,18	0,022
Cinza Prata (CP)	1,5	18,51	18,51	72,33	0,51	0,027
Branco Ceará (BC)	11,9	146,85	146,85	129,33	0,95	0,006
Branco São Paulo (BSP)	8,1	99,95	99,95	54,33	0,38	0,004
Infinity Gold (IG)	0,2	2,47	2,47	11,33	0,09	0,034
Cinza Ouro Branco (COP)	3,2	39,49	39,49	39,67	0,39	0,010
Bordeaux Terracota (BT)	2,7	33,32	33,32	81,33	0,55	0,016

Conforme referido, para a rocha exalar pelo menos metade do radônio gerado seu fator E teria que ser igual a 0,3. No caso das rochas pesquisadas, o fator E varia de 0,004 a 0,041, o que representaria uma exalação máxima de apenas 4% do total do radônio gerado pela rocha. O ^{222}Rn tem uma meia-vida curta, aproximadamente 3,85 dias, portanto, ele teria pouco tempo para escapar da rocha antes de decair para o radionuclídeo ^{218}Po . Além disso, a difusão (escape) do gás radônio depende de outros fatores, como a rede porosa (microfissuras, fraturas, poros), relações de contatos minerais e estado de alteração da rocha.

A comparação dos teores de U e os respectivos valores do fator E obtidos para as rochas (Tabela 4) evidencia que rochas com teores mais elevados de U não são as que necessariamente apresentam as maiores eficiências na exalação do gás radônio. Esta situação pode ser ilustrada pelo sienogranito Juparaná Gold (JG) e albita granito Branco Ceará (BC). A primeira rocha apresenta 4,7 ppm de U e a segunda 11,9 ppm de U, e, no entanto, a primeira apresenta $E = 0,041$ (equivalente à exalação de 2,46 Bq/kg do total de 58 Bq/kg do Rn gerado pela rocha) e a segunda $E = 0,006$ (equivalente à exalação de 0,95 Bq/kg do total de 146,8 Bq/kg do Rn

gerado). Como discutido anteriormente, tais disparidades estão relacionadas às microdescontinuidades presentes nas rochas, favorecendo ou não o escape do gás radônio. A amostra do albita granito Branco Ceará (BC) apresenta um microfissuramento baixo (0,18 microfissuras/mm²) enquanto o sienogranito Juparaná Gold (JG) exibe um microfissuramento mais elevado (0,68 microfissuras/mm²) (Tabela 1).

Outro exemplo ilustrativo é o de rochas apresentando teores de U similares ou próximos, mas fatores de eficiência E bem diferentes. É o caso do sienogranito Vermelho Filomena (VF) com 4,3 ppm de U e do ultramilonito Green Galaxy (GG) com 5,1 ppm de U (Tabela 4). O primeiro exibe fator E de 0,035 (equivalente à exalação de 1,9 Bq/kg do total de 53 Bq/kg do Rn gerado pela rocha), bem maior que o do ultramilonito Green Galaxy (GG), com fator E de 0,006 (equivalente à exalação de 0,4 Bq/kg do total de 62,9 Bq/kg do Rn gerado), o que estaria relacionado aos distintos aspectos petrográficos dos referidos materiais pétreos. Neste sentido, destaca-se que o sienogranito Vermelho Filomena apresenta uma porosidade (0,51%) bem mais elevada que o ultramilonito Green Galaxy (0,14%) (Tabela 2), reflexo da predominante granulação extremamente fina

(0,2 mm e 0,4mm) e maior quantidade de microfissuras preenchidas (84,6%) do Green Galaxy em relação ao Vermelho Filomena de granulação média-grossa (predominância entre 2 mm e 4,5 mm) com menos de 30% de microfissuras com preenchimento (Tabela 1).

A rocha que apresentou a maior eficiência de escape do gás radônio foi o sienogranito Juparaná Gold (JG) com fator $E = 0,041$, equivalente ao escape de 4% do ^{222}Rn gerado, mesmo não sendo a rocha com maior teor de gás radônio gerado (58 Bq/kg).

A rocha com a maior concentração de atividade de gás radônio gerado foi o sienogranito Branco Cristal Quartzo (BCQ) com 167,82 Bq/kg, apresentando uma

eficiência de 0,035. Também foi a rocha que mais deixou escapar gás radônio, exalando 6,04 Bq/kg de ^{222}Rn após 25 dias de confinamento, o que equivale a aproximadamente 3,6% do gás radônio gerado pela rocha.

Apesar do sienogranito Juparaná Gold (JG) apresentar maior eficiência de exalação do gás radônio em relação ao sienogranito Branco Cristal Quartzo (BCQ), a primeira rocha apresenta mais da metade das microfissuras preenchidas (56,2%), dificultando o escape do referido gás. Entretanto, a rocha Branco Cristal Quartzo (BCQ) apresenta 70,9% de suas microfissuras abertas e sem preenchimento o que pode ter facilitado o escape do gás radônio até a superfície da rocha.

SIMULAÇÃO DA ADIÇÃO DE RADÔNIO EM AMBIENTES FECHADOS

Um dos grandes problemas relacionados ao gás radônio é a sua acumulação em ambientes fechados e/ou de pouca circulação de ar. Em países com clima temperado, as residências passam por longos períodos fechados, e a atual tendência do uso de sistemas de ar refrigerado em estabelecimentos comerciais como agências bancárias, shoppings e escritórios implica numa baixa troca de ar com o ambiente exterior. Tais situações têm conduzido a preocupações com relação aos níveis de concentração do gás radônio nestes ambientes fechados, levando órgãos como a Agência de Proteção Ambiental dos Estados Unidos - United States Environmental Protection Agency (EPA, 2003) a estipular um valor máximo de dose para a exalação do gás ^{222}Rn , isto é, 148 Bq/m³, o que equivale a 4,0 pCi/L.

A avaliação da dose devida ao gás radônio em determinado ambiente é função da exalação do ^{222}Rn pelos materiais aplicados e do volume de ar do referido ambiente. Estudos envolvendo a avaliação da contribuição da rocha para a adição do gás radônio ao ambiente são escassos, destacando-se os de Bonotto & Andrews (1997), Chyi (2008), Moura et al. (2011), Amaral (2011) e Amaral et al. (2012).

Neste contexto, com base na metodologia contida em Chyi (2008) e, posteriormente adaptada por Amaral (2011) e Amaral et al. (2012), pode-se efetuar uma simulação da adição do gás radônio produzido pelas rochas

estudadas em um ambiente padrão sem troca de ar com o meio exterior. Para tanto, considerou-se a aplicação de cada rocha estudada como piso num ambiente fechado com 100 m² de área e altura de 2,80 m.

A equação utilizada para a avaliação do gás ^{222}Rn acumulado no ambiente é expressa como:

$$Rn_{Amb} = \frac{Qtd \left(\frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} \right) \times F2}{F1} = \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3}$$

onde: Qtd (Bq/m³) constitui o ^{222}Rn exalado pela rocha;
 $F1$ é o fator de dissipação de ar;
 $F2$ é o fator de amplificação do material utilizado.

O fator $F1$ (fator de diluição no ar) corresponde ao volume de ar no interior do ambiente considerado em relação ao volume de ar interno do garrafão, dado por:

$$F1 = \frac{V_{ar\ Amb}}{V_{ar\ Gar}}$$

onde: $V_{ar\ Amb}$ é o volume de ar no ambiente;
 $V_{ar\ Gar}$ é o volume de ar no garrafão.

O fator $F2$ (fator de amplificação do material) é a razão do material aplicado (m²) no ambiente pela relação da metragem das amostras utilizadas no monitoramento do ^{222}Rn , isto é:

$$F2 = \frac{A_{Apl}}{A_{Mon}}$$

onde: A_{Apl} é a área do ambiente com rocha aplicada (m^2);
 A_{Mon} é a área das amostras monitoradas (m^2).

Os resultados obtidos com a simulação (Tabela 5) revelam que todas as rochas analisadas apresentam valores inferiores a 4,0 pCi/L, que equivale a 148 Bq/m³, conforme estipulado pela EPA (2003). Os valores exibidos pelas rochas em questão variam de

0,04 pCi/L a 2,59 pCi/L, ou 1,45 Bq/m³ a 110,32 Bq/m³, respectivamente. A maior parte das rochas apresentou valores inferiores a 1,0 pCi/L, sendo que somente duas amostras apresentaram valores superiores a este, isto é, os sienogranitos Branco Cristal Quartzo (2,59 pCi/L) e Juparaná Gold (1,22 pCi/L).

A adição de radônio num ambiente, em se tratando de rochas ornamentais, está relacionada com a área de exposição da rocha utilizada, ou seja, quanto maior a área de rocha aplicada maior será a adição do gás radônio no ambiente.

Tabela 5. Valores de ²²²Rn obtidos na simulação de um ambiente padrão de 100 m².

AMOSTRA	Rocha utilizada (m ²)	Área do ambiente (m ²)	Rn exalado (Bq/m ³) após 25 dias	²²² Rn exalado no ambiente	
				(Bq/m ³)	(pCi/L)
Green Galaxy (GG)	100	100	60,00	7,14	0,21
Juparaná Gold (JG)	100	100	321,67	46,44	1,22
Verde Ceará (VC)	100	100	52,67	8,04	0,19
Verde Light (VL)	100	100	94,00	13,15	0,35
Vermelho Filomena (VF)	100	100	199,00	35,07	0,73
Red Dragon (RD)	100	100	54,33	7,52	0,20
Yellow Tropical (YT)	100	100	153,33	21,45	0,58
Branco Cristal Quartzo (BCQ)	100	100	715,33	110,32	2,59
Rosa Iracema (RI)	100	100	179,00	22,29	0,67
Cinza Prata (CP)	100	100	72,33	9,53	0,26
Branco Ceará (BC)	100	100	129,33	17,37	0,47
Branco São Paulo (BSP)	100	100	54,33	7,09	0,20
Infinity Gold (IG)	100	100	11,33	1,45	0,04
Cinza Ouro Branco (COB)	100	100	39,67	7,38	0,15
Bourdeaux Terracota (BT)	100	100	81,33	9,94	0,29

A simulação realizada mostra que os materiais estudados estão de acordo com a recomendação indicada pela EPA (2003), já que nenhuma das rochas ultrapassou o limite de 4,0 pCi/L. Contudo os cuidados quanto à especificação de materiais rochosos utilizados como rochas ornamentais e para revestimento, sobretudo em ambientes fechados, devem ser

considerados, e um dos fatores a serem avaliados é o de exalação do gás radônio.

No caso da utilização desses materiais em ambientes externos ou que tenham bastante ventilação, todas as rochas são recomendadas, tendo em vista que o gás ²²²Rn exalado dissipa facilmente na atmosfera e exibe uma curta meia-vida, cerca de 3,85 dias.

CONCLUSÕES

A quantificação da exalação do gás radônio nas rochas estudadas permitiu constatar que nem sempre o teor de urânio pode ser usado

como parâmetro para definir a concentração de atividade do gás exalado pela rocha, sendo necessário também considerar o conjunto de

fatores relacionados aos aspectos petrográficos envolvendo a rede microporosa da rocha e demais aspectos texturais e estruturais da rocha.

Em relação ao gás radônio gerado pela rocha e aquele que foi efetivamente exalado, determinado pelo fator de eficiência de emissão (*E*), verifica-se que a quantidade de gás efetivamente exalada é pequena quando comparada com a quantidade do gás gerado na rocha, reforçando que os aspectos petrográficos, texturais e estruturais influenciam na maior ou menor difusão do gás

radônio. Esta constatação realça o fato de que uma rocha mais enriquecida em U nem sempre é a que exala uma maior quantidade do gás ^{222}Rn .

Por fim, cabe destacar que o conjunto de rochas estudadas exala radônio entre 0,04 pCi/L e 2,59 pCi/L num ambiente fechado, atendendo às recomendações da Agência de Proteção Ambiental dos Estados Unidos (valor máximo de 4 pCi/L). Portanto, elas podem ser utilizadas como materiais de revestimento em interiores de ambientes com baixa circulação de ar.

AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem ao CNPq e à CAPES, através do PROCAD-NF 08/2008, pelo apoio e suporte financeiro relacionado ao desenvolvimento da presente pesquisa.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. ABNT - ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. Rochas para revestimento: Análise petrográfica. **NBR 15845** - anexo A (normativo). Rio de Janeiro, p. 3-5, 2010a.
2. ABNT - ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. Rochas para revestimento: Densidade aparente, porosidade aparente e absorção de água. **NBR 15845** - anexo B (normativo). Rio de Janeiro, p. 6-8. 2010b.
3. ABNT - ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. Rochas para revestimento: Requisitos para granitos. **NBR 15844**. Rio de Janeiro, p. 1-2, 2010c.
4. AMARAL, P. G. Q. **Caracterização Radiométrica e de Exalação de Radônio em Rochas Ornamentais Silicáticas Beneficiadas no Estado do Espírito Santo**. Rio Claro, 2011. 193 p. Dissertação (Mestrado em Geologia Regional) - Instituto de Geociências e Ciências Exatas, Universidade Estadual Paulista.
5. AMARAL, P. G. Q.; GALEMBECK, T. M. B.; BONOTTO, D. M.; ARTUR, A. C. Uranium distribution and radon exhalation from Brazilian dimension stones. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 70, n° 4, p. 808-817, 2012.
6. ANJOS, R. M.; VEIGA, R.; SANTOS, A. M. A.; AGUIAR, J. G.; FRASCA, M. H. B. O.; BRAGE, J. A. P.; UZÊDA, D.; MANGIA, L.; FACURE, A.; MOSQUERA, B.; CARVALHO, C. Natural radionuclide distribution in Brazilian commercial granites. **Radiation Measurements**, n° 39, p. 245-253, 2005.
7. ARTUR, A.C.; BONOTTO, D.M.; AMARAL, P.G.Q.; GALEMBECK, T.M.B. 2013. Metodologia para a quantificação da exalação do gás radônio em rochas ornamentais. **Geociências**, v. 32, n. 1, p. 166-180, 2013.
8. AZEVEDO, L. R. P. **Emissão de Radônio em Rochas Ornamentais e para Revestimento do Estado do Ceará, Brasil**. 2013. 186 p. Tese (Doutorado em Geologia Regional) - Instituto de Geociências e Ciências Exatas, Universidade Estadual Paulista, Rio Claro - SP.
9. BONOTTO, D. M. & ANDREWS, J. N. 1997. The implications of laboratory ^{222}Rn flux measurements to the radioactivity in groundwaters: the case of a karstic limestone aquifer. **Applied Geochemistry**, v. 12, p. 715-726.
10. CHYI, L.L. **Radon Testing of Various Countertop Materials Final Report**. Akron: University of Akron, 15 p., 2008.
11. CPRM – COMPANHIA DE PESQUISA DE RECURSOS MINERAIS - SERVIÇO GEOLÓGICO DO BRASIL. **Mapa geológico do estado do Ceará, escala 1:500.000**. Fortaleza: Convênio Secretaria Estadual dos Recursos Hídricos / Companhia de Pesquisa de Recursos Minerais - Serviço Geológico do Brasil, mapa geológico, 2003.
12. EPA - UNITED STATES ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY **Assessment of Risks From Radon in Homes**. Washington, DC: 99 p, 2003.
13. LIMA, M. N.; NOGUEIRA NETO, J. A.; AZEVEDO, M. R.; AGUADO, B. V. Geología y geocronología U-Pb del granito de Banabuiú, Noreste de Ceará, Brasil. **Estudios Geológicos**, v. 66, n. 1, p. 35-44, 2010.
14. MATTOS, I. C. **Geologia, petrografia, geoquímica, comportamento físico-mecânico e alterabilidade das rochas ornamentais do stock granítico Serra do Barriga, Sobral (CE)**. 2005. 260 f. Tese (Doutorado em Geologia Regional) – Instituto de Geociências e Ciências Exatas, Universidade Estadual Paulista, Rio Claro – SP. 2005.
15. MATTOS, I.C.; ARTUR, A.C.; NOGUEIRA NETO, J. DE A. Caracterização petrográfica e tecnológica de granitos ornamentais do *stock* granítico Serra do Barriga, Sobral/CE. **Geociências**, v. 32, n. 2, p.247-268, 2013.
16. MOREIRA-NORDEMANN, L. M. **Etude de la vitesse d'alteration des roches au moyer de l'uranium utilize comme traceur naturel. Application a deux bassins du nordest Du Bresil**. Paris, 1977. 162 p. Tese (Doctorat d' État). Université Pierre et Marie Curie.
17. MOURA, C. L., **Radioatividade natural e emissão de ^{222}Rn em rochas ornamentais provenientes de diferentes séries magmáticas utilizadas como revestimento interno**. Rio Claro, 2005. 195 p. Tese (Doutorado em Geociências) - Instituto de Geociências e Ciências Exatas, Universidade Estadual Paulista.
18. MOURA, C. L.; ARTUR, A. C.; BONOTTO, D. M. Radioatividade natural em rochas ornamentais provenientes de diferentes séries magmáticas. In: CONGRESSO INTERNACIONAL DE ROCHAS ORNAMENTAIS, 2005, Guarapari - ES. *Anais...* Guarapari - ES (Realização: CETEM/CETEMAG), CD-ROOM (6 páginas), Ref. 072. 2005.
19. MOURA, C. L.; ARTUR, A. C.; BONOTTO, D. M.; GUEDES, S.; MARTINELLI, C. D. Natural radioactivity and

radon exhalation rate in Brazilian igneous rocks. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 69, p. 1094-1099. 2011.

20. MURPHY, K. **What's Lurking in Your Countertop?** The New York Times. Published: July 24, 2008. Disponível em:

http://www.nytimes.com/2008/07/24/garden/24granite.html?pagewanted=1&_r=1&sq=radon&st=cse&scp=1. Acesso em: 31/09/2013.

21. NAVARRO, F. C. Granitos ornamentais: análise petrográfica na previsão do comportamento físico-mecânico. In: CONGRESO URUGUAYO DE GEOLOGIA, 2., Punta del Este. **Actas...** Montevideu: Sociedad Uruguaya de Geologia; Facultad de Ciências, 1998. , p. 103-107.

22. RODRIGUES, E.P.; CHIODI FILHO, C.; COUTINHO, J.J.M. Importância da petrografia para a previsão do comportamento e da durabilidade de rochas ornamentais. Lisboa: **Rochas e Equipamentos**, v. 47, 2 p., 1997.

23. SIAL, A. N.; FIGUEIREDO, M. C. H.; LONG, L. Rare-earth element geochemistry of the Meruoca and Mucambo plutons, Ceará, Northeast Brazil. **Chemical Geology**, v. 31, p. 271-283. 1981.

24. WANTY, R. B.; LAWRENCE, E. P.; GUNDERSEN, L. C. S. A theoretical model for the flux of radon from rock to groundwater. In: Gates, A. E. & Gundersen, L. C. S. Eds. **Geologic controls on radon**. Boulder, Colorado. 1992.

25. YOUNG, H. D. & FREEDMAN, R. A. Física IV: Ótica e Física Moderna, 12ª Ed. Tradução Cláudia Martins; revisão técnica Adir Moysés Luiz. São Paulo. Editora Pearson Education do Brasil. 2009. 420 f.

Manuscrito recebido em: 04 de Fevereiro de 2015

Revisado e Aceito em: 11 de Maio de 2015