

METODOLOGIA PARA A QUANTIFICAÇÃO DA EXALAÇÃO DO GÁS RADÔNIO EM ROCHAS ORNAMENTAIS

Antonio Carlos ARTUR¹, Daniel Marcos BONOTTO¹, Paulo Giovany Quadros do AMARAL², Tamar Milca Bortolozzo GALEMBECK¹

(1) Departamento de Petrologia e Metalogenia, Instituto de Geociências e Ciências Exatas, UNESP/Campus de Rio Claro. Avenida 24-A, 1515 – Bela Vista. CEP 13506-900. Rio Claro, SP. Endereço eletrônico:

acartur@rc.unesp.br; dbonotto@rc.unesp.br; tamarmbg@rc.unesp.br;

(2) Programa de Pós Graduação em Geologia Regional, Instituto de Geociências e Ciências Exatas, UNESP/Campus de Rio Claro. Avenida 24-A, 1515 – Bela Vista. CEP 13506-900. Rio Claro, SP. Endereço eletrônico: paulogiovanyqa@yahoo.com.br

Introdução

A Detecção de radônio

Detecção ativa do radônio em rochas ornamentais

O detector

Sistema de confinamento das amostras

Amostras de rochas relacionadas

Preparação das amostras

Circuito de medida

Procedimento laboratorial

Ensaio realizados

Conclusão

Agradecimentos

Referências bibliográficas

RESUMO - Este trabalho descreve um método para quantificar o gás radônio exalado em rochas ornamentais implementado no DPM/IGCE/UNESP de Rio Claro. O gás radônio é radioativo, sendo considerado cancerígeno, o que reforça a necessidade da realização de estudos focando a sua presença no meio ambiente. Alguns métodos para quantificar o radônio exalado de rochas são complicados, precisando de várias etapas em laboratório para que sejam obtidos os dados, o que conduz à perda do gás na medida em que aumenta o tempo para a aquisição dos resultados. A técnica empregada é de fácil uso para se obter os resultados, adquiridos na forma de ciclos de medidas. O principal desafio consistiu no acondicionamento das amostras para a análise em recipiente que mantivesse certa pressão de vácuo interna por período relativamente longo, equivalente aos 25 dias necessários para que o ²²²Rn atinja seu equilíbrio radioativo, e que permitisse sua conexão ao aparelho medidor do gás sem interferência do ar do meio externo. Os procedimentos permitiram a realização do monitoramento e a quantificação do radônio para várias amostras de rochas ornamentais, contribuindo para o avanço das pesquisas sobre o comportamento e difusão desse gás em materiais pétreos.

Palavras Chaves: rocha ornamental; exalação de radônio; radioatividade; rocha silicática

ABSTRACT - A. C. Artur; D. M. Bonotto; P. G. Q. do Amaral; T. M. B. Galembek; M. M. T. - A method for quantifying radon gas exhalation from dimension stones. This work describes a method for quantifying the radon gas exhaled from dimension stones that was settled in DPM/IGCE/UNESP/Rio Claro. The radon gas is

radioactive, being considered cancerigenous, reinforcing the need for realizing studies focusing its presence in the environment. Some methods for quantifying the radon exhaled from rocks are complicated, requesting several laboratorial steps for data acquisition, what implies on the gas loss according to the time increase for obtaining the results. The technique utilized is easy for data acquisition that is obtained by measurement cycles. The main challenge consisted on the sample sealing for analysis in a vessel maintaining certain internal vacuum pressure by a relatively long time period, equivalent to 25 days needed for ^{222}Rn to reach secular radioactive equilibrium and that permitted its coupling to the device measuring gas without interference of the external air. The procedures allowed realize the radon monitoring and quantification in several dimension stones, contributing to the development of the researches about the behavior and diffusion of this gas in stony materials.

Keywords: dimension stone; radon gas exhalation; radioactivity; silicate rocks

INTRODUÇÃO

Desde 2001 o Departamento de Petrologia e Metalogenia do IGCE/UNESP - Campus Rio Claro, através dos Laboratórios de Isótopos e Hidroquímica (LABIDRO) e de Rochas Ornamentais, vem desenvolvendo estudos que envolvem a caracterização radiométrica e de exalação do gás radônio em rochas ornamentais.

É conhecido o fato de que a radioatividade é de origem natural ou artificial e que os isótopos radioativos tendem a adquirir estados de maior estabilidade a partir da emissão de radiação gama ou partículas ionizantes alfa e beta. Essas emissões são geradas por radionuclídeos como o ^{87}Rb , ^{40}K , ^{238}U , ^{235}U e ^{232}Th que decaem espontaneamente para formar outros elementos, sendo que os três últimos geram séries radioativas distintas, cada uma contendo o gás radônio. Ressalta-se que o ^{238}U forma em sua série o ^{222}Rn , que possui maior meia-vida (aproximadamente 3,83 dias) dentre os três isótopos naturais de radônio.

As partículas alfa emitidas pelo Rn são altamente ionizantes, mas possuem pouco poder de penetração, sendo que a energia gerada não é capaz de atravessar a pele humana, mas o gás, ao ser inalado, pode ficar retido nos pulmões do corpo humano por se desintegrar para partículas sólidas que depositam toda sua energia, ocasionando lesões ou patologias de gravidade diversa (Binss et al., 1998).

O gás radônio (^{222}Rn) tem sido considerado a segunda causa de câncer pulmonar nos Estados Unidos, perdendo apenas para o cigarro, pois, atribuiu-se-lhe a morte de aproximadamente 20 mil pessoas por ano segundo estudos da U. S. Environmental Protection Agency - EPA (2003).

A concentração do urânio na crosta terrestre está relacionada com as atividades magmáticas da formação da Terra. Sua abundância média na crosta continental é de 1,3 ppm, com concentração mais elevada na crosta continental superior (2,7 ppm) e menor na crosta inferior (0,2 ppm) (Rudnick & Gao, 2004). A distribuição de urânio, presente como traços nos minerais formadores de rochas ígneas como quartzo e feldspato pode estar ligada aos processos de substituição isomórfica, concentração e adsorção em minerais imperfeitos, inclusão no retículo cristalino e em microcristais como sugerido por Pertlik et al. (1974). A biotita retém de 19 a 22% do total de urânio e os minerais pesados como zircão, monazita, apatita, magnetita, ilmenita e riebeckita contêm de 61 a 65% deste teor (Moreira-Nordemann, 1977). Assim, elementos radioativos estão presentes na estrutura mineral ou precipitados em microfissuras por ação hidrotermal, refletindo a própria gênese das rochas, as quais podem ser utilizadas para fins ornamentais e de revestimento.

O emprego de rochas ornamentais como material de revestimento na construção civil, principalmente de fachadas e pisos, tem apresentado um crescimento significativo nas últimas décadas. Segundo Montani (2009), a produção mundial de rochas ornamentais e de revestimento em 2008 totalizou 105 milhões de toneladas. O Brasil por possuir uma grande diversidade litológica com padrões cromáticos vistosos e cobiçados pelo mercado consumidor tornou-se destaque mundial no setor de rochas ornamentais e para revestimento, movimentando um mercado de exportação em 2010 de US\$ 959,19 milhões, correspondente a

um volume físico de 2.239.638,36 t de rochas, sendo 1.042.781,66 t (46,56%) de rochas processadas (Abirochas 2011). Do total das rochas processadas, 79,4% foram destinadas aos EUA, totalizando um montante de US\$ 499,54 milhões em 2010.

Em 2008, algumas agências de comunicação dos EUA noticiaram que a adição do nível de radônio no interior de residências poderia estar relacionada ao emprego de bancadas de rochas graníticas (Abirochas 2008; Murfhy 2008). Tais notícias causaram grandes preocupações para o setor produtivo de rochas ornamentais

brasileiro, tendo em vista que o Brasil é o maior fornecedor de rochas graníticas processadas para os USA.

Com isso, surgiu a necessidade de se encontrar um método de fácil utilização para o monitoramento e quantificação da exalação do gás radônio em materiais rochosos, de forma seriada e de rápida aquisição de dados. Este trabalho representa um aprofundamento dos estudos apresentados na Tese de Doutorado de Moura (2005) e descreve a atual rotina de laboratório implantada e testada com êxito na Dissertação de Mestrado de Amaral (2011).

A DETECÇÃO DE RADÔNIO

Vários estudos radiométricos ligados ao gás radônio são encontrados na literatura, alguns conduzidos por preocupação de órgãos governamentais em avaliarem o nível de radônio em área de ocupação humana, por exemplo, UNSCEAR (1993) e EPA (2003).

São comuns trabalhos sobre radioatividade natural e o nível de radônio em solos, águas e materiais de construção, entretanto, são menos freqüentes os estudos em relação às rochas ornamentais e para revestimento, onde se destacam os conduzidos por Chao et al. (1997), Al-Jarallah (2001), Salas et al. (2003), Moura (2005), Chyi (2008), Yasmin et al. (2009), Moura et al. (2011), Amaral (2011) e Amaral et al. (2012).

Para a determinação da taxa de exalação do gás radônio podem ser usadas duas técnicas, a detecção passiva, que utiliza detectores plásticos, e a detecção ativa, que emprega um equipamento de medição instantânea.

O método de detecção passiva consiste em colocar os detectores no local de interesse por um período de tempo para que o ^{222}Rn seja detectado através de sua difusão na atmosfera. Esse método foi usado por Moura (2005) em rochas ornamentais, onde as amostras estudadas foram confeccionadas com dimensões

aproximadas de 10x5x3cm, sendo que cada corpo-de-prova foi acondicionado e selado em campânulas (recipiente selado) junto com detectores plásticos por um período de 60 dias para posterior contagem. Foi utilizado o detector sólido de traços nucleares CR-39 onde, depois de seu uso, ocorre o ataque químico, uma espécie de revelação para posterior contagem do chamado traço latente e futuros cálculos da taxa de emanação para a geração de valores em Bq/m³. Essa técnica foi realizada no Departamento de Raios Cósmicos e Geocronologia do Instituto de Física da UNICAMP.

Um método de detecção ativa foi utilizado neste trabalho, o qual é semelhante ao empregado por Chyi (2008) e Yasmin et al. (2009). Consiste em acondicionar as amostras num ambiente a vácuo por período de tempo determinado e utilizar um equipamento para medir a taxa de emanação do radônio, de forma que os resultados são obtidos no instante da medida, sem a necessidade de procedimentos adicionais para a geração dos dados.

A seguir serão detalhadas as condições de análise e medição para a detecção do gás radônio proveniente de rochas ornamentais.

DETECÇÃO ATIVA DO RADÔNIO EM ROCHAS ORNAMENTAIS

O método descrito neste trabalho presta-se à quantificação da exalação do gás radônio em rochas ornamentais de uma maneira fácil, confiável e seriada. Para isso é necessário um sistema de ligação entre um detector para a

quantificação do gás radônio e um recipiente apropriado para o confinamento das amostras onde não pode ocorrer o risco de contaminação com o ambiente externo.

O detector

Para a medição da taxa de exalação do gás radônio utilizou-se o equipamento da empresa Genitron designado comercialmente de AlphaGUARD. Este aparelho fornece medições simultâneas de temperatura, umidade relativa do ar, pressão e emissão de radônio em Bq/m³, programadas para ser realizada a cada minuto, que podem ser alteradas dependendo do nível a ser medido.

Foi projetado para o emprego no monitoramento de radônio em mina subterrânea, solo, água ou no ar livre, conforme especificado pelo fabricante (Genitron, 2010), permitindo obter concentrações de Rn de 2 Bq/m³ até 2.000.000 Bq/m³.

Utiliza um espectrômetro alfa constituído por uma câmara de ionização de pulso otimizado, onde o gás é difundido em uma câmara cilíndrica com filtro de fibra de vidro que retém todos os produtos de decaimento do radônio.

Os sinais ou pulsos são quantificados e digitalizados na saída da câmara. O centro do eletrodo lê taxas de ionização como pulsos, que são processados por uma unidade pré-amplificadora muito sensível, sendo que três canais independentes em uma rede de processamento digital permitem realizar uma diferenciação eficaz entre eventos alfa real e diferentes efeitos de interferência, medir as concentrações de radônio e avaliar suas elevadas concentrações (Balcázar et al., 2002).

O equipamento foi calibrado pelo fornecedor, com garantia de 5 anos certificado pelo Experimento de Calibração Internacional - ICE'94 que contou com a participação de vários laboratórios; nele, 16 aparelhos foram inseridos numa câmara de 300 litros e expostos a uma fonte de radônio (amostra de pechblenda com fator de emissão conhecido), tendo sido usado um reservatório de carvão ativo para a medição do nível zero, segundo o fabricante.

Sistema de confinamento das amostras

As amostras precisam ser acondicionadas num ambiente onde não há risco de contaminação com o ar externo para posterior medida da taxa de emissão do Rn; para isso, devem ser inseridas no vácuo.

Os recipientes escolhidos para o confinamento das amostras são garrações de

vidro Pirex[®] (vidro borossilicatado resistente ao calor e ao ataque químico de compostos agressivos) de 19 litros. Foram escolhidos garrações de vidro por serem inertes e resistentes ao vácuo, suportando a diferença de pressão entre o meio interno e o externo. Para a vedação do garração utilizou-se uma rolha de borracha com 2 orifícios longitudinais paralelos entre si para inserir o sistema de válvulas.

O sistema de válvulas possui as funções de permitir a retirada de ar interno do garração e de impedir a sua entrada e de conectar o sistema ao detector. Para isso, duas válvulas forneceram as passagens para a circulação do ar entre o aparelho e o garração preso na rolha de borracha utilizada para vedação. Criou-se, assim, a entrada e a saída de ar, gerando um sentido de circulação onde uma válvula continha um indicador da quantidade de ar seccionado para se estabelecer o vácuo.

Foi estabelecido um vácuo de aproximadamente 450 mmHg, valor abaixo de 650 mmHg que é o limite de segurança de resistência dos garrações à implosão, conforme estabelecido pelo fabricante com o propósito de se obter o gás radônio exalado pela amostra e impedir a contaminação com o ar do ambiente externo. Caso o vácuo inicial não seja mantido por períodos longos de tempo, estabeleceu-se um limite de até 300 mmHg para posterior medição do radônio emanado.

Para maior segurança no manuseio, transporte e proteção, sobretudo no caso de implosão, foram confeccionadas caixas de madeira para os garrações de vidro. Um compressor foi utilizado para a retirada de ar do interior do garração.

Amostras de rochas relacionadas

Para a realização dos testes foram selecionadas 10 variedades de rochas ornamentais silicáticas oriundas dos estados de Minas Gerais e Espírito Santo detentoras de distintos aspectos petrográficos (composicionais; texturais; estruturais) de forma a avaliar possíveis aplicações do método. As rochas selecionadas correspondem a seis rochas magmáticas incluindo diorito, sienito, charnockito, monzogranito e pegmatitos e quatro rochas metamórficas representadas por granulito, gnaiss e migmatitos (Prancha 1). Dentre os materiais estudados, seis são

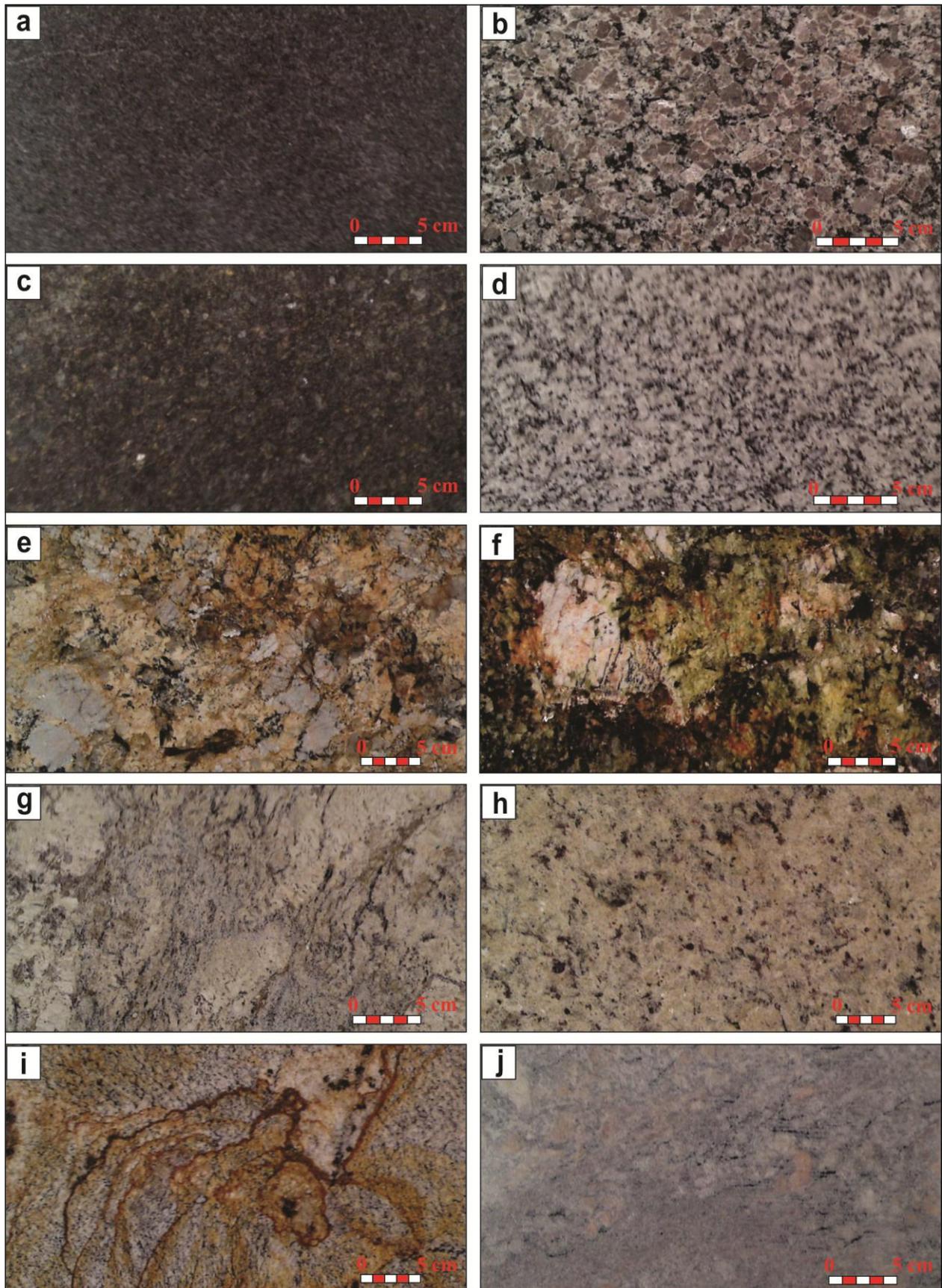
tradicionalmente comercializados como rochas ornamentais e para revestimento, sendo que os tipos pegmatíticos e migmatíticos representam materiais potenciais e foram incluídos nos estudos por representarem rochas petrograficamente evoluídas e, portanto, mais susceptíveis a concentrações mais elevadas de elementos incompatíveis como os radionuclídeos ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{87}Rb . A seguir, consta a relação e correspondente descrição petrográfica das rochas selecionadas.

Rocha ornamental Preto São Gabriel - trata-se de um hiperstênio diorito com quartzo de coloração cinza escura (Prancha 1a) extraída na região de Baunilha no município de Colatina/ES. Composta por plagioclásio (58%), feldspato potássico (4%), quartzo (5%), biotita (9%), hornblenda (4%), ortopiroxênio (12%), clinopiroxênio (4%), opacos (3,5%), apatita (0,5%) e traços de zircão, titanita e de minerais secundários (sericita, clorita, epidoto, bastita e carbonatos), apresenta estrutura isotrópica com textura fanerítica de granulação média a média-grossa (predominância entre 2 mm e 6 mm), pouco inequigranular, e de aspecto geral bastante homogêneo. Exibe grau de microfissuramento relativamente baixo (1,73 microfissuras/mm²), predominantemente do tipo intragrãos preenchidas. O grau de alteração mineral é incipiente, praticamente restrita a discreta saussuritização do plagioclásio e de transformações parciais do ortopiroxênio para bastita, biotita e hornblenda acompanhados pela liberação de opacos disseminados.

Rocha ornamental Ocre Itabira – refere-se a um hornblenda sienito com quartzo de coloração castanho-clara (Prancha 1b) extraído no município de Venda Nova do Imigrante/ES. Composta por ortoclásio perítico (58%), plagioclásio (22%), quartzo (4%), hornblenda (7%), biotita (4,5%), opacos (2%), titanita (2%) e traços de apatita, zircão, allanita e rutilo. Os minerais secundários estão representados por

carbonatos (0,5%) e traços de sericita, clorita e epidoto. Exibe estrutura compacta a discretamente orientada e textura do tipo pórfiro dada por um teor superior a 50% de fenocristais de feldspato potássico que podem ultrapassar 2,5 cm ao longo da maior dimensão, embutidos numa matriz de granulação entre 2 mm e 6 mm, localmente caracterizada pela presença de agregados milimétricos compostos por biotita, hornblenda, opacos e titanita. O microfissuramento é bastante pronunciado com 2,9 microfissuras/mm², sobretudo nos megacristais de feldspato potássico.

Rocha ornamental Verde Labrador - um charnockito megaporfirítico serial com granada de cor verde escura (Prancha 1c), oriundo do município de Baixo Guandú/ES. Constituído por quartzo (25%), Feldspato potássico (40%), plagioclásio (19%), biotita (6%), hornblenda (0,5%), clinopiroxênio (1%), ortopiroxênio (3%), granada (4%), opacos (0,5%), apatita (0,4%), zircão (0,1%), titanita (0,5%) e raro rutilo e traços de minerais secundários como sericita, clorita, epidoto, bastita e carbonatos. Apresenta estrutura isotrópica com matriz fanerítica hipidiomórfica bastante quartzosa de grã média a média-grossa, predominantemente entre 3,0 mm e 5,0 mm. Os megacristais são de feldspato potássico com dimensões entre 1,5 cm e 2,0 cm. O microfissuramento é moderado a elevado, com 6,39 microfissuras/mm², principalmente intragranular, por vezes intergranulares e transgranulares, principalmente presentes nos cristais maiores de quartzo, de feldspato potássico, de granada e de ortopiroxênio, onde a maior parte é do tipo intragrãos não preenchidas (48,8%). As microfissuras intragrãos preenchidas representam cerca de 41% e as intergrãos não preenchidas ao redor de 4,6%. A alteração mineral é incipiente a fraca, praticamente restrita aos cristais de ortopiroxênio que se apresentam parcialmente bastitizados e oxidados.



Prancha 1. Fotos das rochas estudadas. **a)** diorito Preto São Gabriel; **b)** sienito Ocre Itabira; **c)** charnockito Verde Labrador; **d)** monzogranito Cinza Corumbá; **e)** pegmatito granítico; **f)** pegmatito hidrotermalizado; **g)** migmatito pegmatóide; **h)** granulito Icarai Light; **i)** gnaiss Golden Cristal; **j)** migmatito gnaissificado.

Rocha ornamental Cinza Corumbá - um monzogranito cinza claro (Prancha 1d) extraído no município de Castelo/ES, é constituído por quartzo (31,6%), Feldspato potássico (31%), plagioclásio (25%), biotita (7,5), opacos (0,4%), apatita (1%), zircão (0,4%), titanita (1%), allanita (0,1%) e raro rutilo e como minerais secundários sericita (2%) e traços de clorita, epidoto e carbonatos. Apresenta estrutura compacta e textura fanerítica de granulação média a média-grossa, pouco inequigranular, de aspecto estético bastante homogêneo. A granulação predominante oscila entre 2 mm e 4 mm com a presença mais ou menos freqüente de cristas de feldspatos que podem ultrapassar a 1,5 cm. O microfissuramento é moderado, com 2,21 microfissuras/mm², na sua maioria dado por microfissuras intragrãos não preenchidas (64,4%), sobretudo nos cristais maiores de feldspatos. A alteração mineral é incipiente nos cristais de feldspato potássico e de biotita e moderada nos cristais maiores de plagioclásio.

Pegmatito Granítico - corresponde a um pegmatito quartzo-feldspático de coloração amarelada (Prancha 1e) oriundo do município de Itinga/MG. É composto por microclínio (40%), quartzo (30%), albita (15%); muscovita (9%), opacos (0,5%), topázio (0,5%) e traços de biotita, turmalina, apatita e zircão com cerca de 5% de minerais secundários representados pela sericita, goethita e hidróxidos de ferro. Possui estrutura isotrópica e textura pegmatítica heterogênea com granulação grossa a muito grossa destacada pela presença de cristais de microclínio e de quartzo com dimensões entre 2 e 8 cm, seguidos pela muscovita com dimensões de até 2 cm. A massa de menor granulação, também inequigranular, varia entre 0,5 cm a 2 cm. A coloração amarelada deve-se à marcante presença de hidróxidos de ferro que colore os cristais de feldspato potássico e de quartzo, além da evidente percolação e infiltração ao longo de planos de clivagens, de microfissuras e interfaces minerais. Exibe microfissuramento intragrãos e transgranulares marcantes (3,4 microfissuras/mm²), sendo que as transgranulares atingem extensões que superam a casa dos 5 a 6 cm, predominantemente abertas e na maioria das vezes preenchidas por fina massa filossilicática pigmentada por hidróxidos de ferro que lhes

imprimem coloração amarelo-acastanhada. A alteração mineral é moderada, devida a sericitização dos feldspatos e certa argilização da albita.

Pegmatito Granítico Hidrotermalizado - também proveniente do município de Itinga/MG. Equivale ao Pegmatito Granítico anteriormente descrito afetado por intenso processo de hidrotermalização, o que lhe imprime coloração geral verde musgo (Prancha 1f). Também exhibe pontuações e manchas irregulares, normalmente difusas, de coloração acastanhada a vermelho sangue dada por óxidos e hidróxidos de ferro caoticamente distribuídas pela rocha. A coloração esverdeada exibida pelo pegmatito é resultante de fina massa microcristalina filossilicática (sericita; muscovita fingítica) associada aos cristais de microclínio, e que também pode se irradiar ao longo de planos de clivagens e das interfaces mineral, provavelmente gerada pelo hidrotermalismo sobre cristais do referido feldspato. Exibe estrutura isotrópica com textura pegmatítica de granulação muito grossa a gigante, com cristais de microclínio e de quartzo com dimensões que chegam a superar 10 cm, imersos em massa também inequigranular com granulação entre 3 cm e 5 cm. A muscovita, de aspecto prateado, forma agregados lamelares com dimensões máximas entre 0,5 cm a 2 cm preferencialmente concentradas em determinadas porções da rocha. Apesar de microscopicamente evidenciar um grau de microfissuramento aparentemente baixo, com 4,2 microfissuras/mm², principalmente do tipo intragrão (94,5% do total; com cerca de 58,2% não preenchidas e 36,3% preenchidas), em nível macroscópico exhibe visível grau de microfissuramento tanto intragrãos (cristais maiores de quartzo) quanto transgranulares com dimensões de até 5 a 6 cm de extensão, dadas por planos normalmente abertos e quase sempre preenchidos por fina massa microcristalina filossilicática mais ou menos enriquecida em óxidos e hidróxidos de ferro. A alteração mineral se destaca, além da fina sericitização/muscovitização de cristais de microclínio, pela evidente presença de hidróxidos de ferro sobre cristais de feldspato potássico e ao longo de planos de clivagens, de microfissuras e em interfaces minerais.

Migmatito Pegmatóide - um migmatito gnáissico-granítico pegmatóide com granada e sillimanita de coloração cinza claro (Prancha 1g) proveniente do município de Cachoeiro de Itapemirim/ES. A amostra analisada corresponde à fração quartzo-feldspática detentora de textura predominantemente grossa a pegmatóide. Composicionalmente se caracteriza por quartzo (25%), feldspato potássico (41%), plagioclásio (24%), biotita (5%), muscovita (3,5%), granada (1%), sillimanita (0,5) e traços de opacos e apatita, além de traços dos minerais secundários sericita, epidoto e clorita. O migmatito apresenta estrutura discretamente orientada, de aspecto geral movimentado, e textura heterogênea em virtude da brusca variação na granulação dada por porções com granulação predominantemente entre 1,5 cm e 4 cm e outras contendo cristais de feldspatos gráficos que atingem ao redor de 20 cm. A fração mais fina, (paleossoma) pouco gnaissificada, exibe granulação entre 2 mm e 4 mm. O microfissuramento é igualmente variável, predominantemente intragrãos nas frações de granulação mais fina a pouco pegmatóide e relativamente elevada nas porções pegmatóides, onde são freqüentes microfraturas intergrãos e transgranulares mais ou menos abertas e com preenchimento por fina massa filossilicática contendo hidróxidos de ferro. Também se destaca a presença de evidentes planos de clivagens relacionadas aos cristais de feldspato potássico mais desenvolvidos, realçadas pela presença de hidróxidos de ferro. Determinações efetuadas sob observação microscópica indicaram na média 3,2 microfissuras/mm², principalmente do tipo intragrãos, das quais 58,2% não são preenchidas e 35,4% preenchidas por filossilicatos. Entretanto, as microfissuras transgranulares são melhores observadas ao nível macroscópico e são mais freqüentes nas porções com texturas tipicamente pegmatíticas. A alteração mineral se dá por discreta saussuritização do plagioclásio e localmente pela muscovitização da biotita com certa liberação de óxidos de ferro disseminados.

Rocha ornamental Icará Light - um granulito quartzo-feldspático com granada e sillimanita de coloração cinza claro a amarelado devido a certo grau de oxidação do ferro

(Prancha 1h), extraído no município de Barra de São Francisco/ES. É constituído por quartzo (35%), feldspato potássico (39%), plagioclásio (17%), biotita (3,5%), granada (4%), sillimanita (1,5%) e traços de opacos, apatita, zircão e espinélio e como minerais secundários traços de sericita, epidoto e carbonatos, apresenta estrutura ligeiramente gnaissificada e textura granoblástica de granulação média a média-grossa, pouco inequigranular. A granulação oscila entre menos de 1 mm e pouco mais de 1 cm, com predominância entre 2 mm e 5 mm. O microfissuramento é baixo, com 2,8 microfissuras/mm², e o grau de alteração mineral é incipiente a fraco.

Rocha ornamental Golden Cristal - um biotita gnaisse migmatizado (Prancha 1i) explorado no município de Itinga/MG. Trata-se de um migmatito metatexitico com paleossoma de biotita gnaisse fitado, discretamente movimentado, de coloração geral amarelo-acastanhada devido à intensa percolação de óxidos e hidróxidos de ferro sobre cristais de feldspato e de biotita. A composição mineralógica média está representada por quartzo (28%), feldspato potássico (39%), plagioclásio (21%), biotita (8,5%), sillimanita (2,5% e traços de granada, opacos, apatita, zircão e muscovita, além de 1% de hidróxido de ferro e traços de sericita e epidoto. O neossoma quartzo-feldspático representa menos de 15% da amostra, dado pela presença de pequenas concentrações quartzo-feldspáticas inequigranulares com granulação que pode superar a 1 cm. O paleossoma apresenta textura granoblástica equigranular, de granulação entre 0,3 mm a 5 mm, de coloração geral amarelo-acastanhada devido à intensa percolação de óxidos e hidróxidos de ferro sobre cristais de feldspato e de biotita. O melanossoma biotítico é pouco desenvolvido e caracterizado por forte efeito de oxidação do ferro. O grau de microfissuramento é relativamente elevado, com 4,9 microfissuras/mm², sendo 68,8% de microfissuras intragrãos abertas e vazias e 24,6% de microfissuras intergrãos preenchidas. Microfissuras intergranulares são pouco pronunciadas e chegam a 6,6%, com apenas 3% preenchidas.

Migmatito Gnaissificado - corresponde a um migmatito ortoderivado gnaissificado de coloração róseo clara com nuances

avermelhadas resultante de diferente intensidade da oxidação do ferro (Prancha 1j) do município de Afonso Cláudio/ES. É composto por quartzo (26%), feldspato potássico (28), plagioclásio (34%), biotita (5,5%) e traços de opacos, apatita, zircão, titanita e allanita e como minerais secundários muscovita (3%), sericita (2%) e epidoto (1,5%). Caracteriza-se pela alternância entre leitos de paleossoma gnáissico de granulação entre 1 e 3 mm que grada de forma aparentemente regular para leitos de granulação média a média-grossa e mesmo de aspecto levemente pegmatóide (neossomas igualmente gnaissificados) com a presença de cristais de feldspato potássico com dimensões que ultrapassam 8 cm. O grau de microfissuramento é moderado, com 3,8 microfissuras/mm², predominando as do tipo intragrãos, com 57,0% preenchidas por filossilicatos e 40,2 vazias. As microfissuras intergrãos perfazem menos de 3%, com predominância das preenchidas. A alteração mineral oscila de incipiente nos cristais de

microclínio e moderada a intensa nos cristais de plagioclásio.

Preparação das amostras

Para a utilização do sistema implantado, os 10 tipos de rochas ornamentais descritos foram serrados em formato prismático, com dimensões de 30x4,5x2 cm ou de 30x4,5x1,5 cm, conforme especificado no Tabela 1, sendo confeccionados quatro a cinco corpos-de-prova para cada tipo. A largura de 4,5 cm foi adotada devido o diâmetro da boca do garrafão ser de 5 cm.

Depois de confeccionados, os corpos-de-prova foram limpos com pano embebido em álcool e colocados na estufa a 70°C por um período de tempo de aproximadamente 24 horas para retirada da umidade ocasionada pela limpeza. Após serem retirados da estufa, aguardou-se o resfriamento natural e depois foram colocados nos garrafões de vidro, evitando assim alguma contaminação.

Tabela 1. Relação das rochas e respectivos corpos-de-prova usados nos experimentos de emanção de radônio

Amostras	Acabamento da superfície	Quantidade corpos-de-prova	Dimensões corpos-de-prova (cm)
Diorito Preto São Gabriel	Polida	5	30 x 4,5 x 1,5
Sienito Ocre Itabira	Polida	4	30 x 4,5 x 2
Charnockito Verde Labrador	Polida	4	30 x 4,5 x 2
Monzogranito Cinza Corumbá	Polida	4	30 x 4,5 x 2
Pegmatito granítico PG	Polida, Resinada e Telada	4	30 x 4,5 x 2
Pegmatito hidrotermalizado PGH	Polida, Resinada e Telada	4	30 x 4,5 x 2
Migmatito pegmatóide MP	Polida, Resinada e Telada	4	30 x 4,5 x 2
Granulito Icarai Light	Polida	4	30 x 4,5 x 2
Gnaiss Golden Cristal	Polida	4	30 x 4,5 x 2
Migmatito gnaissificado MGN	Bruta	4	30 x 4,5 x 2

Circuito de medida

A fim de se determinar o radônio emanado das rochas selecionadas e monitorar sua evolução temporal, foram empregados ciclos

de aprisionamento do gás em circuito fechado. Esses ciclos correspondem a períodos de tempo pré-estabelecidos (5, 10, 15, 20, 25 dias) até o valor estimado para as amostras atingirem o

equilíbrio radioativo secular; foi registrado a data e o horário do fechamento do sistema, bem como de sua abertura. Posteriormente, o tempo em dias foi transformado em horas, visando a construção de gráficos da emanção (Bq/m^3) por tempo (horas).

Após a definição dos períodos de confinamento, cada garrafa contendo a

amostra foi conectada através de tubos de plástico flexível ao aparelho AlphaGUARD (para medição do radônio exalado) e uma bomba AlphaPUMP (para a circulação do ar para o interior do aparelho), conforme ilustrado na foto da Figura 1, fechando, assim, o circuito.



Figura 1. Foto do sistema usado para medir a exalação do gás radônio nas amostras estudadas. (1) espectrômetro alfa; (2) bomba de ar; (3) garrafa e (4) sistemas de válvulas.

Procedimento laboratorial

Foi elaborada uma planilha para a realização dos ensaios de quantificação do gás radônio exalado das amostras. A planilha contém todos os dados sobre a amostra como nome, procedência, descrição da característica do material, área, volume e peso total dos corpos-de-prova da rocha. Além disso, contempla informações sobre o início e término do confinamento (data e hora), temperatura, umidade relativa do ar, pressão e valor do radônio exalado. Também permite que sejam anotados o dia da leitura, o vácuo inicial e o vácuo final.

A seguinte rotina foi utilizada para cada ciclo de realização da medição do gás radônio emanado pelas amostras confinadas:

- instalação do circuito conforme ilustrado na Figura 1;
- ligação do aparelho de monitoramento do radônio e anotação dos dados iniciais,

observando-se se o nível de marcação do radônio está no zero ou com a taxa de erro bem maior que os números iniciais;

- acionamento da bomba AlphaPUMP em 1L/min para a sucção do ar do garrafão e introdução no interior do aparelho AlphaGUARD;
- abertura das válvulas para início da circulação do ar aprisionado entre o garrafão e o aparelho;
- a bomba deve permanecer ligada por 10 minutos antes de ser desligada. Os dados fornecidos pelo aparelho AlphaGUARD devem ser anotados na planilha, a cada 10 minutos, totalizando 30 minutos para cada medição. O aparelho é configurado internamente no modo de fluxo em 1 minuto, no qual realiza a cada 1 minuto a leitura do gás. Porém, a anotação do tempo só ocorre a cada 10 minutos de medição. É realizada à média das três últimas leituras anotadas de cada ciclo para posterior utilização;

- no final da medição de um ciclo, o sistema deve ser desmontado e o espectrômetro alfa limpo, ejetando-se o ar filtrado através de um filtro de carvão ativo até que os níveis de radônio diminuam até zero; somente depois disto, está liberado para a medição de outra amostra;
- no preparo de cada ciclo, injeta-se ar no garrafão para a retirada de qualquer vestígio de gás do ciclo anterior. Depois disto, o sistema é fechado, sendo retirado o ar interno até atingir

450 mg/Hg de vácuo. Em seguida, anotam-se o dia, a hora e o vácuo atingido.

A Figura 1 ilustra o sistema empregado, onde o espectrômetro alfa (1) se conecta a bomba de ar (2) e ao garrafão (3) onde as amostras são confinadas. A circulação de ar é liberada através de um sistema de válvulas (4) conectadas por tubos plásticos flexíveis, com um sentido de circulação estabelecido conforme especificações do aparelho AlphaGUARD.

ENSAIOS REALIZADOS

Como foi adotado o sistema de ciclos de medida, seria esperado um aumento da atividade de radônio com o tempo de confinamento da amostra. Uma vez que foram usadas rochas representando diferentes tipos litológicos, também seriam esperados diferentes resultados na medição.

O objetivo principal dos ciclos de medidas consistiu em saber se após o ^{222}Rn atingir o equilíbrio radioativo secular, que ocorre em aproximadamente 25 dias, o gás radônio também atingiria equilíbrio em termos de fuga do meio rochoso. Entretanto, os resultados

médios da exalação de ^{222}Rn para cada ciclo de monitoramento reunidos na Tabela 2 e graficamente representados na Figura 2 revelam que isto não ocorre para algumas rochas (caso das amostras migmatíticas e do pegmatito hidrotermalizado) pelo fato de que nem todo gás gerado na rocha consegue alcançar na mesma velocidade de geração a superfície do material e adentrar o ambiente exterior à rocha; assim, uma boa parcela do radônio gerado pela rocha fica por mais tempo retido na rede cristalina dos minerais e trama da rocha.

Tabela 2. Quantificação de ^{222}Rn exalado das amostras no final de cada ciclo.

Rochas Estudadas	Ciclo 5 dias (Bq/m³)	Ciclo 10 dias (Bq/m³)	Ciclo 15 dias (Bq/m³)	Ciclo 20 dias (Bq/m³)	Ciclo 25 dias (Bq/m³)
Preto São Gabriel	1,3	8,3	14,3	3,7	12,0
Ocre Itabira	10,3	8,7	20,0	8,0	21,7
Verde Labrador	4,3	1,0	10,3	1,0	10,0
Cinza Corumbá	33,3	51,3	62,7	74,7	69,3
Pegmatito Granítico	251,7	404,7	376,0	472,7	471,7
Pegmatito Hidrotermalizado	678,0	822,3	1029,0	1089,0	1135,7
Migmatito Pegmatóide	856,7	981,3	1550,0	1953,3	2483,3
Icaraí Light	16,3	18,3	14,7	22,6	23,0
Golden Cristal	66,3	90,7	104,3	118,0	98,3
Migmatito Gnaissificado	330,0	600,6	651,0	642,0	752,0

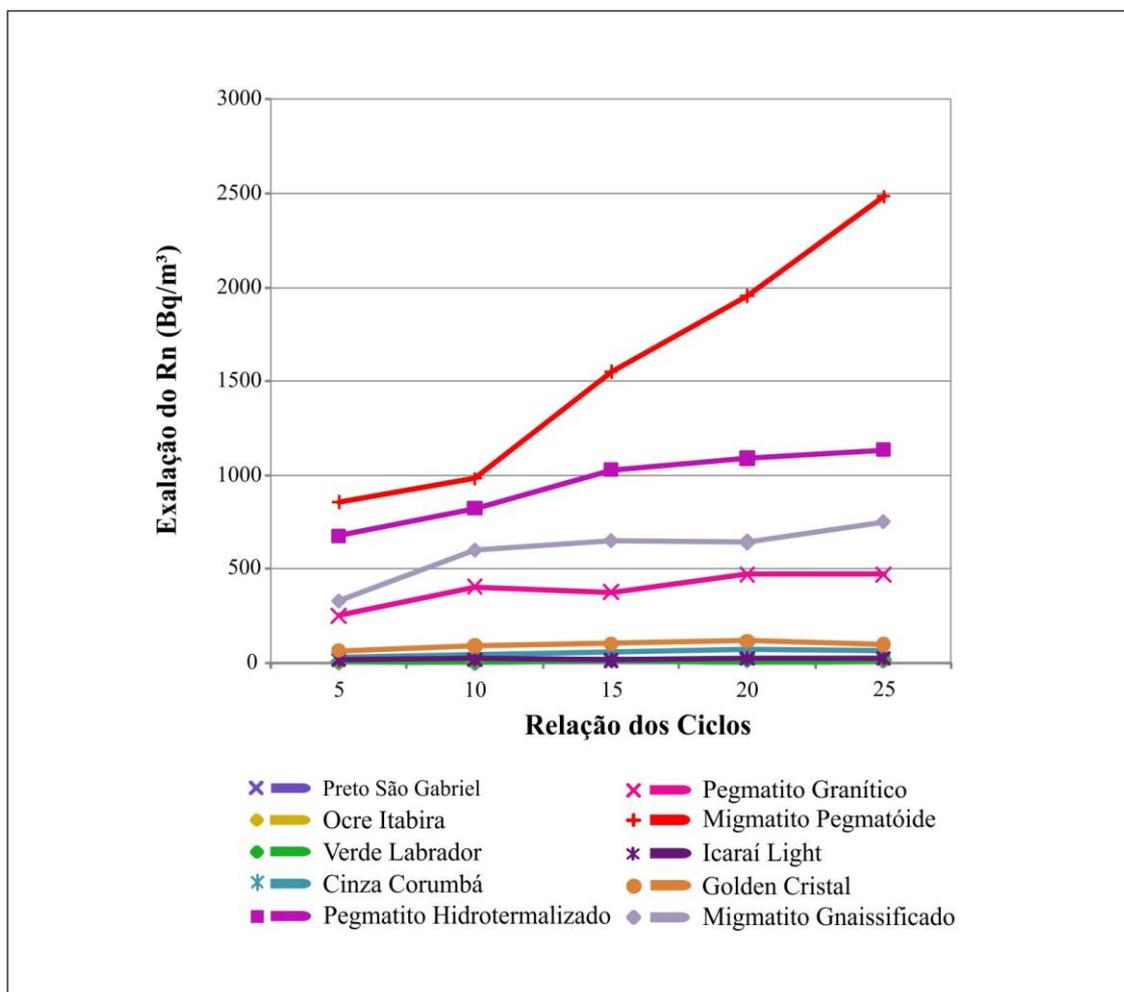


Figura 2. Evolução da emanção do gás ^{222}Rn ao longo dos ciclos de 5, 10, 15, 20 e 25 dias.

Observa-se de imediato a presença de curvas com padrões de exalação bastante distintos entre os materiais analisados, caracterizadas por rochas com taxas de exalação extremamente baixas como o charnockito Verde Labrador (entre 4,3 e 10,3 Bq/m³), o hiperstênio diorito Preto São Gabriel (1,3 a 14,3 Bq/m³), o sienito Ocre Itabira (8 a 21,7 Bq/m³) e o granulito Icarai Light (14,7 a 23,0 Bq/m³) e outras rochas com valores consideravelmente mais elevados que ultrapassam os 1.000 Bq/m³, caso do pegmatito hidrotermalizado (678,0 a 1135,7 Bq/m³) e do migmatito pegmatóide (856,6 a 2483,3 Bq/m³).

As curvas de tendência da evolução da taxa de exalação do Rn (Figura 2) mostram que mesmo após o 25º dia de monitoramento, tempo necessário para que ocorra a condição de equilíbrio radioativo secular, as rochas com os valores mais elevados de emanção do ^{222}Rn não atingem o equilíbrio ou constância no escape do referido gás. Este fato realçado pelo comportamento do migmatito pegmatóide,

detentor da maior taxa de exalação do gás Rn dentre as rochas estudadas, estaria relacionado à velocidade/tempo de difusão do gás Rn gerado pelo decaimento radioativo no interior da rocha até o meio exterior, o que exigiria um tempo maior de monitoramento das amostras em condições de vácuo para se atingir o equilíbrio/constância da real taxa de exalação do gás Rn. Conclui-se, desta forma, que apesar da baixa meia vida do ^{222}Rn , de 3,83 dias, as taxas de exalação do gás Rn fornecidas pelas rochas estudadas através dos 25 dias de monitoramento podem ser maiores que as obtidas, sobretudo para rochas com rede porosa mais pronunciada.

Verifica-se pelo gráfico da Figura 2 que a estabilização da exalação do gás é mais freqüente para rochas com as menores taxas de exalação do radônio. Entretanto, ao contrário das rochas com as maiores exalações do gás radônio (caso do migmatito pegmatóide e do pegmatito hidrotermalizado) que exibiram tendência de valor crescente de exalação com o

tempo, as rochas com menores emanações se caracterizam por evidentes oscilações do Rn exalado em relação aos ciclos de monitoramento. As oscilações podem ser visualizadas no próprio gráfico da Figura 2 (caso do migmatito gnaissificado e do pegmatito granítico) ou nos valores registrados na Tabela 2 para os casos das rochas com as menores taxas de emanação do referido gás.

Considera-se, a princípio, que tais oscilações estejam relacionadas a fatores inerentes às rochas analisadas, como: abundância de urânio; distinta natureza geológica refletindo em ampla variação composicional, textural e estrutural; distinto padrão e rede de microdescontinuidades internas. Certamente tais parâmetros afetam diretamente na dinâmica de escape do gás radônio.

Os resultados obtidos durante os ensaios demonstraram que o aparelho conseguiu determinar pequenos valores como 1 ± 10 Bq/m³ e 12 ± 6 Bq/m³ até elevadas leituras como

2090 ± 175 Bq/m³, demonstrando versatilidade a diferentes níveis de atividade de radônio.

Em relação ao acondicionamento das amostras nas condições de vácuo utilizado, ocorreu uma perda de 1,13% em média depois de 5 dias de confinamento. Após 10 dias a perda foi maior, atingindo 3,64%, e para os demais ciclos de 15, 20 e 25 dias, o valor de perda foi se acentuando, respectivamente, de 4,61%, 8,33 e 7,54%. Entretanto, os valores do vácuo nunca ficaram abaixo do valor estabelecido como limite para a realização dos ensaios.

Também ocorreu alguma perda de vácuo durante a medição, sendo maior devido à circulação de ar imposta, situando-se, em média, ao redor de 30% durante todo o processo de medição, independente da permanência do ciclo. Portanto, não foi possível aproveitar o vácuo no final da medição anterior e início do próximo ciclo.

CONCLUSÃO

O sistema instalado atendeu suficientemente às necessidades de captação do gás radônio emanado, desde os níveis mais baixos até os mais elevados de atividade. Foi considerado como de fácil manuseio e uma vez que o medidor possui uma bateria interna, não ocorre o risco de perda do experimento no caso de falta de energia. Em relação ao sistema de confinamento, o uso do garrafão com vedação por rolha de borracha e válvulas acopladas demonstrou ser eficaz ao objetivo, atingindo perdas de vácuo menores do que 10%. O sistema completo demonstrou ser também de fácil uso, as conexões entre o aparelho medidor e o recipiente de confinamento são de fácil montagem e a apresentação dos dados no *display* do medidor é de fácil anotação. A leitura realizada em vários ciclos como descrita

neste trabalho se torna importante para melhor compreender o processo de exalação do radônio das rochas, o qual não depende somente do que está sendo produzido na rocha, mas também da sua estrutura cristalina. Dessa forma, o método descrito para quantificar e monitorar a exalação do radônio em rochas ornamentais atende as necessidades do setor, sendo fácil a obtenção de dados. Com isto, é possível criar uma rotina de laboratório bem simples para a geração de dados no final de cada tempo pré-estabelecido, sem dificuldade de operação e isenta do uso de reagentes químicos ou tratamento aprofundado dos dados. O método constitui uma contribuição adicional para avaliar a questão da radioatividade em rochas ornamentais, juntando-se a outros também desenvolvidos com o mesmo propósito.

AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem ao CNPq pela bolsa de mestrado, processo nº: 132366/2009-6, que permitiu a realização do presente trabalho.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. ABIROCHAS - ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DA INDÚSTRIA DE ROCHAS ORNAMENTAIS. **Radioatividade Natural em Materiais Rochosos**. Informe 18/2008. Disponível em: www.abirrochas.com.br. Acesso em: 13/07/2011.
2. ABIROCHAS - ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DA INDÚSTRIA DE ROCHAS ORNAMENTAIS. **Síntese das Exportações e Importações Brasileiras de Rochas Ornamentais e de Revestimento em 2010**. Informe 01/2011. Disponível em: www.abirrochas.com.br. Acesso em: 13/07/2011.
3. AL-JARALLAH, M. Radon exhalation from granites used in Saudi Arabia. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 53, p. 91-98, 2001.
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 Geociências) - 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. BALCÁZAR, M.; LÓPEZ, A.; STREIL, T.; CHÁVEZ, A. Radon leakage assessment in a controlled radon laboratory. **Geofísica Internacional** (México), v. 41, n. 3, p. 281-284, 2002.
7. BINNS, D. A. C.; FIGUEIREDO, N.; MELO, V. P.; GOUVEA, V. A. Radon-222 Measurements in a Uranium-Prospecting Area in Brazil. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 38, n. 2, p. 249-254, 1998.
8. CHAO, Y. H.; TUNG, C. W.; CHAN, W. T.; BURNETT, J. Determination of radon emanation and back diffusion characteristics of building materials in small chamber tests. **Building and Environment**, v. 32, n. 4, p. 355-362, 1997.
9. CHYI, L.L. **Radon Testing of Various Countertop Materials Final Report**. Akron: University of Akron, 15 p., 2008.
10. EPA - UNITED STATES ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY **Assessment of Risks From Radon in Homes**. Washington, DC: 99 p, 2003.
11. GENITRON. **Alpha Guard PQ2000/MC50 - Multiparameter Radon Monitor**. Frankfurt, Genitron Instruments Manual, p. 1-53, 2000.
12. MONTANI, C. **Repertorio Economico Mondiale** (World Marketing Handbook). Milano: Stone 2009: Faenza Ed., 122 p., 2009.
13. 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.
14. MOURA, C. L., **Radioatividade natural e emanação de ²²²Rn 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.
15. MOURA, C.M (In Memoriam); ARTUR, A.C.; BONOTTO, M.B.; 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.
16. 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: 31/09/2012.
17. PERTLIK, F.; ROGER, J. J. N.; ADAMS, J. A. S. Uranium. In: WEDEPOHL, K.H. (Ed.) **Handbooks of Geochemistry**. Berlim: Springer Verlag, p. 92.0192.08, 1974.
18. RUDNICK, R.; GAO, S. **Composition of the continental crust**. In: HOLLAND H.D. e TUREKIAN, K.K. (Ed.): **Treatise on geochemistry**. Oxford: Elsevier Pergamon, v. 3, p. 1-64, 2004
19. SALAS, H.T.; NALINI Jr., H.A.; MENDES, J.C. Radioatividade em rochas ornamentais do Brasil. In: SIMPÓSIO DE

ROCHAS ORNAMENTAIS DO NORDESTE, 4, 2003, Fortaleza. **Anais...** Rio de Janeiro: CETEM/SBG, 2003, p. 68-73.

20. ULBRICH, H. H. G. J. & GOMES, C. B. Alkaline rocks from continental Brazil. **Earth Sciences Reviews**, v. 17, p. 135-154, 1981.

21. UNSCEAR - UNITED NATIONS SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE

EFFECTS OF ATOMIC RADIATION. **Effects of Ionizing Radiation**. New York, United Nations, 1993.

22. YASMIN, S. G.; CORREIA, J. C. G.; RIBEIRO, R. C. da C. Emissão de radônio em rochas ornamentais. In: JORNADA DE INICIAÇÃO CIENTÍFICA, 17, 2009, Rio de Janeiro. **Anais...** Rio de Janeiro: Centro de Tecnologia Mineral, 2009, p. 95-101.

Manuscrito recebido em: 15 de janeiro de 2012

Revisado e Aceito em: 12 de janeiro de 2013