Modelos Fenomenológicos de Distribuição Intercompartimental de Substâncias Radioactivas

Maria de Lurdes Proença de Amorim Dinis



Departamento de Engenharia de Minas Faculdade de Engenharia da Universidade do Porto

Volume I

Dissertação para obtenção do grau de Doutor em Engenharia do Ambiente Sob a orientação científica do Professor Doutor António Manuel Antunes Fiúza

Junho 2007

Copyright © 2007 Maria de Lurdes Dinis (<u>mldinis@fe.up.pt</u>) Reservados todos os direitos de publicação, tradução e adaptação. Interdita a reprodução parcial ou integral sem prévia autorização da autora.

Resumo

Os elevados volumes de minério e de soluções manipuladas nas operações de exploração e de tratamento de minérios radioactivos geram débitos enormes de subprodutos não utilizáveis, resíduos sólidos, efluentes líquidos e/ou gasosos e que foram durante muitos anos depositados a céu aberto. O vento, a água e os processos biológicos tendem a provocar a dispersão destes materiais no ambiente, intervindo na sua libertação e no seu transporte através da atmosfera, dos sistemas aquáticos superficiais ou através do subsolo, originando uma contaminação de novos subcompartimentos ambientais.

Pretendeu-se aplicar modelos matemáticos com fundamentação fenomenológica à libertação, à dispersão e à transferência intercompartimental de substâncias radioactivas de baixo nível de radiação. Desenvolveram-se e adaptaram-se modelos multicompartimentais com o objectivo de estimar a concentração da actividade em pontos de exposição predefinidos privilegiados inseridos em cada compartimento.

Talvez o problema mais complexo relativo às implicações ambientais da existência de radionuclídeos nas vizinhanças das explorações mineiras de minérios radioactivos seja a complexidade intrínseca dos processos de transporte e as vias insinuosas como os materiais tóxicos podem penetrar nos sistemas biológicos. O transporte dos radionuclídeos nos ecossistemas, característicos dos sistemas onde houve produção de minérios uraníferos, não foi aínda suficientemente investigado e documentado.

O nosso trabalho de investigação incide essencialmente sobre a construção de modelos referentes aos mecanismos de libertação, ao transporte dos radionuclídeos, à sua transferência intercompartimental e ao seu destino, construindo as bases para uma avaliação da exposição a que ficam submetidos componentes seleccionados do ecossistema local. Para validar os modelos construídos recorreu-se, sempre que possível, à informação que nos foi disponibilizada relativa às áreas envolventes das zonas de armazenamento de resíduos da mina da Urgeiriça.

Procedeu-se a uma análise sistemática de forma a considerar a análise integrada dos seguintes aspectos:

- Fontes (escombreiras, armazenamento de resíduos de tratamento com e sem cobertura,...);
- Mecanismos de libertação (por exemplo: lixiviação, decaimento com produção de radionuclídeos gasosos,...);

- Mecanísmos de transporte ou vectores dispersivos (ar e água);
- Mecanismo de transferência entre os compartimentos ambientais (sorção, absorção, partilha,...);
- Determinação das concentrações em cada compartimento ambiental utilizando modelos de dispersão, sempre que possível com variação espacial;
- Consideração de locais expostos privilegiados (poços, biota, água de regadio, áreas habitadas, ...);
- Consideração de meios receptores (flora, níveis tróficos seleccionados da cadeia alimentar, residentes consumidores de água, população,...).

As principais trajectórias de contaminação foram identificadas de forma a determinar a melhor abordagem relativamente aos modelos a desenvolver. Foram ainda identificados os radionuclídeos de maior relevância em cada compartimento com base nas suas propriedades químicas, físicas e radiológicas.

Foi também incorporado um modelo de transferência dos radionuclídeos na cadeia alimentar tendo-se incluído, numa versão mais completa do modelo conceptual, a distribuição dos radionuclídeos no interior do organismo para um nível trófico relevante (animais de pasto) através da adaptação dos modelos biocinéticos existentes na bibliografía.

Para cada um dos modelos foi feita pelo menos uma exploração. Os parâmetros necessários foram adoptados de diferentes fontes: alguns foram adoptados de medições referentes ao local contaminado em particular, a barragem de estéreis da Urgeiriça; outros foram adoptados de dados publicados na bibliografia. Os parâmetros para os quais não foi possível obter valores de medições locais foram estimados a partir dos dados disponíveis.

Abstract

The large volumes of ore and solutions manipulated in the extraction and processing operations of radioactive ores generate huge rates of useless by-products, solid wastes, liquids and or gaseous effluents which have been disposed in open air areas for many years. Wind, rainfall and biological processes tend to provoke the dispersion of these materials in the environment interfering in their release and transport processes through the atmosphere, superficial aquatic systems or through subsoil leading to the contamination of new environmental sub-compartments.

It was intended to apply mathematical models with phenomenological basis to the release, the dispersion and the intercompartimental transfer of low level radioactive substances. Multicompartment models were developed and adapted with the purpose to predict the activity concentration in predefined exposition points located in each one of the compartments.

The most complex problem referring to the environmental consequences of the existence of radioactive contaminations in the vicinity of the radioactive ore mining explorations is probably the intrinsic complexity of the transport processes and the tortuous means by the toxic materials can penetrate into the biological systems. The radionuclides transport in the ecosystems, characteristics of the systems where there was former uranium ore production, still has not been sufficiently investigated and documented.

Our research works ensue essentially in the development of models concerning to the release mechanisms, to the radionuclides transport, its intercompartimental transfer and fate, consolidating the bases to an exposure assessment to which may be exposed the selected components from the local ecosystem. To validate the developed models it was used, whenever it was possible, the obtained information referring to the surrounding areas of the Urgeiriça mine wastes disposal.

A systematic analysis was performed in order to consider the integrated analysis of the following points:

- Sources (tailings piles, ore processing wastes disposal with and without cover system,...);
- Release mechanisms (for instance: leaching, decay with gaseous radioactive products,...);
- Transport mechanisms or dispersive vectors (air and water);

- Transfer mechanisms between the environmental compartments (sorption, absorption, partition,...);
- Concentrations estimative in each environmental compartment using dispersion models with spatial variation, whenever it is possible;
- Consideration of privileged exposure points (wells, biota, irrigation water, inhabited areas,...);
- Consideration of the exposed receptors (flora, selected trophic levels from the food chain, resident's consumers of contaminated water, population,...).

The important routes of contamination have been identified as a basis for determining the modelling approach. The radionuclides of major concern were also identified in each one of the compartments based on their chemical, physical and radiological properties.

It was also incorporated a radionuclide transfer model through the food chain having been included in a more complete version of the conceptual model, the radionuclides distribution within an organism for a relevant trophic level (pasture animals) adapted from the biokinetic models present in the specialized literature.

For each sub-model at least one simulation was done. The necessary parameters were adopted from different sources: some parameters were adopted from measurements referring to the particular contaminated site, the Urgeiriça uranium tailings piles; others were adopted from published data. The unknown parameters were estimated from available data or from literature references in cases where on-site data were not available.

Résumé

Les volumes très élevés de minerais et de solutions manipulés dans les opérations d'exploitation et de traitement de minerais radioactifs produisent des grands débits de sous-produits qui ne sont pas utilisables, des résidus solides, des effluents liquides et ou gazeux. Le vent, l'eau et les procédés biologiques provoquent parfois la dispersion de ces matériels dans l'environnement par le transport à travers l'atmosphère, et des systèmes aquatiques ou à travers le sursol, donnant lieu à une contamination de ces sub-compartiments environnementaux.

On a prétendu appliquer des modèles mathématiques avec fondement phénoménologique à la libération, à la dispersion et au transfert intercompartimental de substances radioactifs de bas niveau de radiation. On a développé un modèle multicompartimental ayant pour but l'estimative de l'activité dans des points d'exposition prédéfinis introduits dans chaque compartiment.

Peut-être le problème le plus complexe concernant les implications environnementales de l'existence de radionucléides dans les proximités des explorations minières de minerais radioactifs est la complexité intrinsèque des procédés de transport et les manières sinueuses comme les matériels toxiques peuvent pénétrer dans les systèmes biologiques. Le transport des radionucléides dans les écosystèmes, caractéristiques des systèmes où il a y eu de la production de minerais de uranium, encore n'a pas été suffisamment enquêté et documenté.

Notre recherche concerne essentiellement sur la construction de modèles référents aux mécanismes de libération, au transport des radionucléides, à son transfert intercompartimental et à sa destination pour faire l'évaluation de l'exposition aux résidus de l'exploitation des minerais d'uranium. Le lieu d'étude était le champ d'épandage de résidus radioactifs à la mine d'Urgeiriça.

On a fait une analyse systématique et intégré des sujets suivants:

- Les Sources (déposé à ciel ouvert, stockage de résidus de traitement du uranium,...);
- Les mécanismes de libération (par exemple: lessivage, baisse radioactive avec production de radionucléides gazeux);
- Mécanisme de transport ou vecteurs dispersives (l'air et l'eau);
- Mécanismes de transfert entre différent compartiments environnementales (sorption, absorption, partition,...);

- Détermination des concentrations dans chaque compartiment environnemental en utilisent des modèles de dispersion avec variation spatiale, si possible;
- Considération de locaux privilégiés d'exposition (des puits, biote, eaux pour arrosage, des aires habitées,...);
- Considération de milieux récepteurs (flore, niveaux trophiques choisis dans la chaine alimentaire, résidents consommateurs de l'eau, population,...).

Les trajectoires les plus importantes de la contamination ont été identifiées e introduits dans les modèles. Les radionucléides les plus importants ont été aussi identifiés dans chaque compartiment ayant comme référence leurs propriétés chimiques, physiques et radiologiques.

On a été aussi incorporé un modèle de transfèrement des radionucléides dans la chaîne alimentaire en ayant incluse, dans une version plus complète du modèle conceptuel, la distribution des radionucléides à l'intérieur de l'organisme pour un niveau trophique important (animaux herbivores) à travers l'adaptation des modèles biocinétiques existants dans la bibliographie.

On a été fait au moins une exploration pour chaque modèle. Les paramètres nécessaires ont été adoptés de différentes sources: quelques-uns ont été obtenus à travers de mesures concernant le lieu contaminé en particulier, le champ d'épandage des résidus radioactifs de l'Argeiriça, les autres ont été obtenus à travers de l'information publié dans la bibliographie concernant ce lieu. Les paramètres pour lesquels il n'était pas possible obtenir les valeurs de mesures locales ils étaient estimés à travers d'information disponible.

Agradecimentos

Este é o momento para assinalar um reconhecido agradecimento a todos os que contribuíram directa ou indirectamente para esta dissertação.

Ao meu orientador científico, Professor Doutor António Fiúza, que me acompanhou durante todo este tempo sempre com uma disponibilidade e um entusiasmo marcantes em todos os momentos. Agradeço pela constante estima com que sempre me recebeu e pela colaboração demonstrada permanentemente ao longo deste trabalho. A sua sabedoria e experiência foram determinantes não só para a elaboração deste trabalho, mas também para o meu enriquecimento científico.

Agradeço à Faculdade de Engenharia da Universidade do Porto por ser a "Instituição de Acolhimento" cujo termo não se poderia adequar melhor, dadas as infinitas horas passadas por cá...

Ao Departamento de Engenharia de Minas por todo o apoio a nível de infraestruturais que me disponibilizou.

Ao Professor Machado Leite, ao Professor Abílio Cavalheiro e ao Professor Madureira por todo o apoio na candidatura à bolsa de Doutoramento da Fundação para a Ciência e Tecnologia.

À EXMIN pela colaboração em disponibilizar os dados preciosos ao desenvolvimento e conclusão desta dissertação, em especial à Engenheira Sofia Barbosa, muito obrigada pelo interesse e disponibilidade.

À Fundação para a Ciência e Tecnologia (FCT) e ao Fundo Social Europeu (FSE) pelo apoio financeiro, no âmbito do III Quadro Comunitário de Apoio, com o financiamento da bolsa de Doutoramento SFRH/BD/11344/2002 e também pelo apoio na divulgação deste trabalho.

A todos os professores, colegas e funcionários do Departamento de Engenharia de Minas que de alguma forma deram o seu contributo para este trabalho e me fizeram sentir sempre em "casa".

À Paula Ávila, que só ela sabe o porquê, muito obrigada por tudo.

À minha família pela compreensão face à minha indisponibilidade e ausência durante este longo tempo, e em especial à minha madrinha Jacinta pela revisão dos resumos.

E aos meus amigos por serem os "Meus Amigos", em partícular à Cristina Carvalho pela paciência, quando eu própria já não a tinha para ninguém, à Paula Lima pelos momentos hilariantes do café e da boleia e ao Góis pela palavra sempre amiga e conselheira na pausa do café.

A todos, muito obrigada.

LISTA DE FIGURAS

Figura 3-1:	Fluxo normalizado dos estéreis sem cobertura, J_t /(RpE), em função da espessura dos estéreis, x (cm), e do
	coeficiente de difusão, D, (cm ² .s ⁻¹). Fonte: NUREG (1984).
Figura 3-2:	Sistema de duas fases cobertura/estéreis.
Figura 3-3:	Fluxo de radão através da cobertura para a variação da espessura da cobertura e da camada de estéreis, D =
	1,0 x 10 ⁻⁶ m ² .s ⁻¹ . Fonte: NUREG (1984).
Figura 3-4:	Parâmetros necessários para um sistema de cobertura com várias camadas de diferentes materiais. Fonte:
	NUREG (1984).
Figura 3-5:	Modelo da "caixa" e da dispersão segundo a pluma Gaussiana.
Figura 3-6:	Distribuição Gaussiana da concentração dos contaminantes (La Grega et al., 1994).
Figura 3-7:	Coeficiente de dispersão σ_z .
Figura 3-8:	Coeficiente de dispersão σ_y .
Figura 3-9:	Dispersão dos poluentes atmosféricos em condições atmosféricas normais (a) e com o efeito de inversão
	térmica (b). Fonte: Miller (1998).
Figura 3-10:	Definição da área em estudo segundo um polígono regular de 8 lados.
Figura 3-11:	Representação da área em estudo para estimar a concentração à altura h.
Figura 3-12:	Representação da área em estudo segundo a direcção dominante do vento.
Figura 3-13:	Dispersão de radão em cada direcção do vento (com cobertura) (Bq.m ⁻³).
Figura 3-14:	Dispersão de radão em cada direcção do vento (sem cobertura), (Bq.m ⁻³).
Figura 3-15:	Dispersão de radão na direcção dominante do vento (com cobertura), (Bq.m ⁻³).
Figura 3-16:	Dispersão de radão na direcção dominante do vento (sem cobertura), (Bq.m ⁻³).
Figura 3-17:	Dispersão de radão em cada direcção do vento, (Bq.m ⁻³).
Figura 3-18:	Dispersão de radão na direcção dominante do vento, (Bq.m ⁻³).
Figura 3-19:	Dispersão de radão em cada direcção do vento, (Bq.m ⁻³).
Figura 3-20:	Dispersão de radão na direcção dominante do vento, (Bq.m ⁻³).
Figura 3-21:	Localização dos furos de sondagens na barragem velha da Urgeiriça.
Figura 3-22:	Localização dos pontos onde foi determinada a humidade.
Figura 3-23:	Interpolação dos valores da humidade em % (software GMS).
Figura 3-24:	Coeficiente de difusão, D, vs fracção de saturação, m (Tabela 3-47).
Figura 3-25:	Coeficiente de Difusão, D, vs fracção de saturação, m (Tabela 3-48).
Figura 3-26:	Coeficiente de difusão em função da saturação, m (% peso húmido) (Tabela 3-50).
Figura 3-27:	Coeficiente de difusão em função da saturação, m (% peso seco) (Tabela 3-50).
Figura 3-28:	Coeficiente de difusão, D (ITN), vs a saturação, m (% peso húmido) (Tabela 3-53).
Figura 3-29:	Coeficiente de difusão, D (ITN), vs a saturação, m (% de peso seco) (Tabela 3-53).
Figura 3-30:	Coeficiente de difusão, $D_e = D/\epsilon vs$ a saturação, <i>m</i> (% peso húmido) (Tabela 3-54).
Figura 3-31:	Coeficiente de difusão, $D_e = D/\epsilon$, vs a saturação, m (% peso seco) (Tabela 3-54).
Figura 3-32:	Coeficiente de difusão vs fracção de saturação, m (% peso húmido) (Tabela 3-56).
Figura 3-33:	Coeficiente de difusão vs fracção de saturação, m (% peso seco) (Tabela 3-56)
Figura 3-34:	Dispersão da concentração de radão (sistema de cobertura x = 3 m), (Bq.m ⁻³).
Figura 3-35:	Dispersão da concentração de radão (sistema de cobertura $x = 3$ m) na direcção dominante do vento (NE),
	(Bq.m ⁻³).
Figura 3-36:	Dispersão da concentração de radão na área total.
Figura 3-37:	Dispersão da concentração de radão resultante dos fluxos parcelares de cada área na direcção dominante do
	vento (NE).
Figura 4-1:	Exemplos de trajectórias de exposição. Fonte: User's Guide for Presto-EPA-CPG Operation System, (Hung,
	1996).

Figura 4-3: Actividade em ²²⁶Ra na água do poço, Bq/ano. Figura 4-4: Actividade em ²¹⁸Po na água do poço, Bg/ano. Figura 4-5: Actividade em ²¹⁴Po na água do poço, Bq/ano. Figura 4-6: Actividade em ²¹⁰Po na água do poço, Bq/ano. Figura 4-7: Actividade em ²¹⁰Pb na água do poço, Bq/ano. Figura 4-8: Localização dos piezómetros (S), poços (P) e furos (F) amostrados. Figura 4-9: Localização dos piezómetros e a respectiva actividade em ²²⁶Ra (Bq/L). Figura 4-10: Localização dos piezómetros e a respectiva actividade em U (Bq/L). Figura 4-11: Localização dos poços e a respectiva actividade em ²²⁶Ra (Bq/L). Figura 4-12: Localização dos pocos e respectiva actividade em U (Bg/L). Figura 4-13: Localização dos furos e respectiva actividade em ²²⁶Ra (Bq/L). Figura 4-14: Localização dos furos e respectiva actividade em U (Bq/L). Figura 4-15: Distribuição espacial da amostragem dos pontos de água. Figura 4-16: Interpolação linear - Ra (Bg/L). Figura 4-17: Interpolação cúbica triangular - Ra (Bq/L). Figura 4-18: Interpolação pelo inverso da distância (função constante) - Ra (Bq/L). Figura 4-19: Interpolação pelo método "vizinho natural" (função quadrática) - Ra (Bq/L). Figura 4-20: Interpolação linear - U (Bq/L). Figura 4-21: Interpolação cúbica triangular - U (Bq/L). Figura 4-22: Interpolação pelo inverso da distância (função quadrática) - U (Bq/L). Figura 4-23: Interpolação pelo método "vizinho natural" (função quadrática) - U (Bg/L). Figura 4-24: Cartografia da dispersão da contaminação em Ra (Bg/L) na água subterrânea. Representação obtida por Krigagem (Surfer). Figura 4-25: Variograma Experimental e Ajuste do Modelo Teórico (Gaussiano) (Surfer). Figura 4-26: Cartografia da dispersão da contaminação em U (Bq/L) na água subterrânea. Representação obtida por Krigagem (Surfer). Figura 4-27: Variograma Experimental e Ajuste do Modelo Teórico (Gaussiano) (Surfer). Figura 4-28: Dispersão da contaminação em U (Bq/L) na água subterrânea. Representação obtida por Krigagem (Software: GMS, tolerância - 90.º). Figura 4-29: Dispersão da contaminação em Ra (Bq/L) na água subterrânea. Representação obtida por Krigagem (Software: GMS, tolerância - 60.°). Figura 4-30: Dispersão da contaminação em Ra (Bq/L) na água subterrânea. Representação obtida por Krigagem (Software: GMS, tolerância - 45.°). Figura 4-31: Comparação dos dados analíticos com os resultados do modelo para os diferentes horizontes temporais considerados. Figura 4-32: Linhas de tendência para os dados analíticos (U e Ra) em função da distância. Figura 4-33: Linhas de tendência para os resultados do modelo (U e Ra) em função da distância, para o horizonte temporal de 10 anos. Figura 4-34: Linhas de tendência para os resultados do modelo (U e Ra) em função da distância, para o horizonte temporal de 20 anos. Figura 4-35: Linhas de tendência para os resultados do modelo (U e Ra) em função da distância, para o horizonte temporal de 30 anos. Figura 4-36: Linhas de tendência para os resultados do modelo (U e Ra) em função da distância para o horizonte temporal de 50 anos. Figura 4-37: Intervalo de confiança para a recta ajustada aos resultados do modelo (U) para o tempo de simulação de 20 anos. Figura 4-38: Intervalo de confiança para a recta ajustada aos resultados do modelo (Ra) para o tempo de simulação de 20 anos.

Figura 4-2: Trajectórias do contaminante na zona vadosa do solo.

xii

- Figura 4-39: Comparação entre os dados analíticos e os do modelo referentes ao U.
- Figura 4-40: Comparação entre os dados analíticos e os do modelo referente ao ²²⁶Ra.
- Figura 4-41: Linhas de tendência para os dados analíticos dos pontos de amostragem a jusante da BV, em função da distância.
- Figura 4-42: Actividade na água do poço para o ²²⁶Ra, U_{total}, ²¹⁰Pb e ²³⁰Th (Bq/L).
- Figura 4-43: Transporte cumulativo até ao poço: ²²⁶Ra, U_{total}, ²¹⁰Pb e ²³⁰Th (Bq/ano).
- Figura 4-44: Exploração do modelo para o 210 Pb com K_d = 100 mg/l e K_d = 10 ml/g.
- Figura 4-45: Exploração do modelo para o U_{total} com C_i = 2300 Bq/kg e C_i = 4600 Bq/kg.
- Figura 4-46: Exploração do modelo para o U_{total} com K_d = 25 ml/g e C_i = 2300 Bq/kg.
- Figura 4-47: Exploração do modelo para o 226 Ra com K_d = 70 ml/g e Kd = 100 ml/g.
- Figura 4-48: Exploração do modelo para o 226 Ra com K_d = 500 ml/g e K_d = 700 ml/g.
- Figura 4-49: Exploração do modelo para o 226 Ra com K_d (zona saturada) = 7 000 e 700 ml/g.
- Figura 4-50: Exploração do modelo para o ²²⁶Ra com K_d (zona saturada) = 70 ml/g.
- Figura 4-51: Exploração do modelo para o ²³⁰Th variando C_i = 9800 Bq/kg e 19 600 Bq/kg.
- Figura 4-52: Exploração do modelo para o 230 Th variando o K_d (K_d = 3 200 e 270 ml/g).
- Figura 4-53: Actividade em ²²⁶Ra na água do poço (Bq/L) para K_d = 776 ml/g e horizonte temporal igual a 300 e 1000 anos, respectivamente.
- Figura 4-54: Transporte cumulativo de ²²⁶Ra até ao poço (Bq) para K_d = 776 ml/g e horizonte temporal igual a 300 e 1000 anos, respectivamente.
- Figura 5-1: Condições para aplicação do modelo às águas costeiras. Fonte: IAEA (2001).
- Figura 5-2: Aplicação do conceito de box model a um pequeno lago ou reservatório. Fonte: IAEA (2001).
- Figura 5-3: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga (rios).
- Figura 5-4: Concentração de ²¹⁰Pb em função da distância ao ponto de descarga (rios).
- Figura 5-5: Concentração de ²³⁰Th em função da distância ao ponto de descarga (rios).
- Figura 5-6: Concentração de ²³⁸U em função da distância ao ponto de descarga (rios).
- Figura 5-7: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga (estuários).
- Figura 5-8: Concentração de ²¹⁰Pb em função da distância ao ponto de descarga (estuários).
- Figura 5-9: Concentração de ²³⁰Th em função da distância ao ponto de descarga (estuários).
- Figura 5-10: Concentração de ²³⁸U em função da distância ao ponto de descarga (estuários).
- Figura 5-11: Concentração de ²²⁶Ra e de ²¹⁰Pb na água em função da distância do ponto de descarga localizado em y = y₀, até à distância de x = 2000 m (eixo dos yy em escala log).
- Figura 5-12: Concentração de ²²⁶Ra e de ²¹⁰Pb na água em função da distância do ponto de descarga localizado em y = 0, até à distância de x = 2000 m (eixo dos yy em escala log).
- Figura 5-13: Concentração de ²³⁰Th e de ²³⁸U na água em função da distância do ponto de descarga localizado em $y = y_0$, até à distância de x = 2000 m (eixo dos yy em escala log).
- Figura 5-14: Concentração de ²³⁰Th e de ²³⁸U na água em função da distância do ponto de descarga localizado em y = 0, até à distância de x = 2000 m (eixo dos yy em escala log).
- Figura 5-16: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga, para uma concentração de ²²⁶Ra no efluente descarregado na ribeira da Pantanha de C_{ee} = 960 Bq/m³.
- Figura 5-17: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga, para uma concentração de ²²⁶Ra no efluente descarregado no rio Mondego de C_{ee} = 5,46 Bq/m³.
- Figura 5-18: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga, para uma concentração de ²²⁶Ra no efluente descarregado na ribeira da Pantanha de C_{ee} = 5470 Bq/m³.
- Figura 5-19: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga, para uma concentração de ²²⁶Ra no efluente descarregado no rio Mondego de C_{ee} = 31,1 Bq/m³.
- Figura 5-20: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga, para uma concentração de ²²⁶Ra no efluente descarregado na ribeira da Pantanha de C_{ee} = 271 Bq/m³.
- Figura 5-21: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga, para uma concentração de ²²⁶Ra no efluente descarregado na ribeira Pantanha de C_{ee} = 70 Bq/m³.

Figura 5-22:	Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores obtidos na Figura 5-16 para
	C_{wt} (²²⁶ Ra) na ribeira da Pantanha.
Figura 5-23:	Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores obtidos na Figura 5-17 para
	$C_{wt}(^{226}Ra)$ no rio Mondego.
Figura 5-24:	Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores obtidos na Figura 5-18 para
	C _{wt} (²²⁶ Ra) na ribeira da Pantanha.
Figura 5-25:	Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores obtidos na Figura 5-19 para
	C _{wt} (²²⁶ Ra) no rio Mondego.
Figura 5-26:	Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores obtidos na Tabela 5-28 para
	C_{wt} (²²⁶ Ra) na ribeira da Pantanha.
Figura 5-27:	Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores obtidos no Tabela 5-28 para
	C _{wt} (²²⁶ Ra) no rio Mondego.
Figura 5-28:	Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores da Tabela 5-29 para $C_{\mbox{\tiny wt}}$
	(²²⁶ Ra) para a ribeira da Pantanha.
Figura 5-29:	Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores da Tabela 5-29 para $C_{\mbox{\scriptsize wt}}$
	(²²⁶ Ra) para o rio Mondego.
Figura 6-2:	Linhas de tendência para os elementos do grupo I e II A. Fonte: Baes et al. (1984).
Figura 6-3:	Linhas de tendência para os elementos do grupo dos actinídeos. Fonte: Baes et al. (1984).
Figura 6-4:	Linhas de tendência para os elementos do grupo IV A. Fonte: Baes et al. (1984).
Figura 6-5:	Média geométrica dos valores de B _v e K _d publicados na literatura.
Figura 6-6:	FT _{residuo/pinheiro} vs concentração de rádio no resíduo.
Figura 6-7:	FT _{residuo/eucalipto} vs concentração de rádio no resíduo.
Figura 6-8:	FT _{residuo/giestas} vs concentração de rádio no resíduo.
Figura 6-9:	FT médios do rádio total para os pinheiros (raízes e agulhas) vs o local de amostragem (D ₁ a D ₈ e local de
	referência).
Figura 6-10:	FT médios do rádio total para as giestas (raízes e partes aéreas) vs local de amostragem (D ₁ a D ₈ e local de
	referência).
Figura 6-11:	FT médios do rádio total para os eucaliptos (folhas) vs local de amostragem (D ₁ a D ₈ e local de referência).
Figura 6-12:	FT médios do rádio trocável para os pinheiros (raízes e agulhas) vs local de amostragem (D_1 a D_8 e local de
	referência).
Figura 6-13:	FT médios do rádio trocável para as giestas (raízes e partes aéreas) vs local de amostragem (D ₁ a D ₈ e local
	de referência).
Figura 6-14:	FT médios do rádio trocável para os eucaliptos (folhas) vs local de amostragem (D ₁ a D ₈ e local de
F ' 0.45	referencia).
Figura 6-15:	Concentração na vegetação por via de transferencia (C _{ad} , C _{dd} , C _{rd} , C _{ai} , C _{di} , C _{ri}).
Figura 6-16:	Concentração total na vegetação (C_{pl}), (Bq/kg).
Figura 6-17:	Concentração na vegetação ($C_{pd} \in C_{pr}$) com origem na agua de imigação, (Bq/kg).
Figura 6-18:	Concentração total na vegetação (C_p) com origem na agua de imigação, (Bq/kg).
Figura 6-19.	Concentração ha vegetação por via de transferencia $(C_{VA}, C_{VI}, C_{RA}, C_{RI}, C_{V}, C_{R})$.
Figura 6-20.	Concentração total na vegetação (C_V ou C_R), (Bq/Rg).
Figura 6-21.	Concentração de rádio nos pinheiros (raubas) ve concentração no resíduo.
Figura 6-22.	ET ve concentração de rádio nos plimeiros (aguinas) vs concentração no residuo.
Figura 6-23.	ET us concentração de rádio no resíduo, (bq/g).
Figura 6 25:	ET a sur a crosíduo com origom no minório com toor módio do 1 kg/ton)
Figure 6 26	$r_{residuo pinneiros}$ (residuo com origem no minierio com teor médio de 1 kg/(01).
Figura 6 27.	$F_{residuo/pinheiros}$ (residuo com origem no minério com teor médio de 1, kg/ton).
Figure 6 20	Fresiduo/giestas (residuo com origen no minério com teor médio de 0.2 kg/ton).
Figure 6 20:	ET (residuo/giestas (residuo com origem no minerio com teor médio de 1 kg/ten).
i iyula 0-29.	

- Figura 6-30: FT_{resíduo/eucaliptos} (resíduo com origem no minério com teor médio de 0,2 kg/ton).
- Figura 6-31: FT RDN (fracção total)/pinheiros (raízes) por local de amostragem.
- Figura 6-32: FT RDN (fracção total)/pinheiros (agulhas) por local de amostragem.
- Figura 6-33: FT RDN (fracção total)/giestas (raízes) por local de amostragem.
- Figura 6-34: FT RDN (fracção total)/giestas (partes aéreas) por local de amostragem.
- Figura 6-35: FT RDN (fracção total)/eucaliptos (folhas) por local de amostragem.
- Figura 6-36: FT rádio (trocável)/pinheiros por local de amostragem.
- Figura 6-37: FT rádio (trocável)/giestas por local de amostragem.
- Figura 6-38: FT rádio (trocável)/eucaliptos por local de amostragem.
- Figura 6-39: Comparação dos FT (pinheiros) obtidos experimentalmente com os FT estimados para diferentes concentrações de rádio no resíduo.
- Figura 6-40: Comparação dos FT (arbustos) obtidos experimentalmente com os FT estimados para diferentes concentrações de rádio no resíduo.
- Figura 6-41: Comparação dos FT (eucaliptos) obtidos experimentalmente com os FT estimados para diferentes concentrações de rádio no resíduo.
- Figura 6-42: Concentração de rádio total na vegetação vs local de amostragem (B₁, B₂, B₃, B₄); C_p (Pr): pinheiros (raízes); C_p (Pa): pinheiros (agulhas); C_p (Ar): arbustos (raízes); C_p (Aa): arbustos (partes aéreas); C_p (Ef): eucaliptos (folhas).
- Figura 6-43: FT estimados com a correlação C_p (P_a, A_r, A_a, E_f) vs local de amostragem.
- Figura 6-44: Concentração na vegetação (resíduo com origem no minério de teor 1 kg/ton).
- Figura 6-45: Concentração na vegetação (resíduo com origem no minério de teor 0,2 kg/ton).
- Figura 6-46: Concentração de rádio na vegetação vs local de amostragem, (Bq/kg).
- Figura 6-47: Representação dos valores da Tabela 6-61 e da Tabela 6-62.
- Figura 6-48: Representação dos valores da Tabela 6-63 e da Tabela 6-64.
- Figura 6-49: Representação dos valores da Tabela 6-65 e da Tabela 6-66.
- Figura 6-50: Representação dos valores da Tabela 6-67 e da Tabela 6-68.
- Figura 6-51: Concentração de rádio na vegetação (C_p) vs concentração de rádio solo (C_s) em função do tempo decorrido após o início de irrigação com água contaminada.
- Figura 7-1: Modelo conceptual de transferência na trajectória de exposição pasto-vaca-leite.
- Figura 7-2: Modelo conceptual da transferência do ²²⁶Ra na trajectória *pasto-vaca-leite* adaptado dos modelos biocinéticos do ICRP (IAEA, 2004).
- Figura 7-3: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 1000 dias.
- Figura 7-4: Variação da actividade (226 Ra) em cada compartimento ao longo de 1000 dias, ampliada no eixo dos yy.
- Figura 7-5: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 100 dias.
- Figura 7-6: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 1000 dias.
- Figura 7-7: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 100 dias (Figura 7-6 ampliada no eixo dos xx).
- Figura 7-8: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 50 dias.
- Figura 7-9: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 50 dias, ampliada.
- Figura 7-10: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 700 dias.
- Figura 7-11: Variação da actividade (226 Ra) em cada compartimento ao longo de 700 dias, ampliada no eixo dos yy.
- Figura 7-12: Variação da actividade (226 Ra) em cada compartimento ao longo de 450 dias.
- Figura 7-13: Variação da concentração (226 Ra) em cada compartimento.
- Figura 7-14: Variação da concentração (226 Ra) em cada compartimento ao longo de 500 dias.
- Figura 7-15: Variação da concentração (226 Ra) em cada compartimento ao longo de 500 dias, ampliada.
- Figura 7-16: Variação da concentração (226 Ra) em cada compartimento ao longo de 200 dias.
- Figura 7-17: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 120 dias.
- Figura 7-18: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 100 dias.

- Figura 7-19: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 30 dias (Figura 7-18 ampliada no eixo do xx).
- Figura 7-20: Modelo biocinético incluindo a transferência do compartimento 6 para o 4.

Figura 7-21: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4.

- Figura 7-22: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4, durante 500 dias.
- Figura 7-23: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4, durante 500 dias, ampliada no eixo dos yy.
- Figura 7-24: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4, durante 300 dias.
- Figura 7-25: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4, durante 100 dias.
- Figura 7-26: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4.
- Figura 7-27: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4, durante 400 dias.
- Figura 7-28: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4, durante 100 dias.
- Figura 7-29: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4, durante 50 dias.
- Figura 7-30: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4, durante 30 dias.
- Figura 7-31: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²³⁵U), respectivamente: $A_{1(0)} = 8,42 \times 10^5$ Bq e $A_{2(0)} = 0$ Bq.
- Figura 7-32: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²³⁵U), respectivamente: $A_{1(0)} = 2,62 \times 10^3$ Bq e $A_{2(0)} = 0$ Bq.
- Figura 7-33: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²³⁵U), respectivamente: $A_{1(0)} = 3,69 \times 10^4$ Bq e $A_{2(0)} = 55,3$ Bq.
- Figura 7-34: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²³⁵U), respectivamente: $A_{1(0)} = 9,68 \times 10^5$ Bq e $A_{2(0)} = 0,19$ Bq.
- Figura 7-35: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²³⁸U), respectivamente: $A_{1(0)} = 3,65 \times 10^5$ Bq e $A_{2(0)} = 0$ Bq.
- Figura 7-36: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²³⁸U), respectivamente: $A_{1(0)} = 3.2 \times 10^7$ Bq e $A_{2(0)} = 4 \times 10^4$ Bq.
- Figura 7-37: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (238 U), respectivamente: A₁₍₀₎ = 0 Bq e A₂₍₀₎ = 20 Bq.
- Figura 7-38: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²³⁸U), respectivamente: $A_{0(1)} = 3,65 \times 10^5$ Bq e $A_{0(2)} = 20$ Bq.
- Figura 7-39: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²³⁸U), respectivamente: $A_{1(0)} = 7,49 \times 10^5$ Bq e $A_{2(0)} = 1100$ Bq.
- Figura 7-40: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²³⁸U), respectivamente: $A_{1(0)} = 4,14 \times 10^7$ Bq e $A_{2(0)} = 2,7 \times 10^4$ Bq.
- Figura 7-41: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²¹⁰Pb), respectivamente: $A_{1(0)} = 6,88 \times 10^{6}$ Bq e $A_{2(0)} = 0$ Bq.
- Figura 7-42: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²¹⁰Pb), respectivamente: $A_{1(0)} = 1,05 \times 10^{6}$ Bq e $A_{2(0)} = 0$ Bq.
- Figura 7-43: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²¹⁰Pb), respectivamente: $A_{1(0)} = 2,05 \times 10^{6}$ Bq e $A_{2(0)} = 1,4 \times 10^{5}$ Bq.

- Figura 7-44: Resultados da simulação para os dados iniciais referentes ao "Olen site I".
- Figura 7-45: Resultados da simulação para os dados iniciais referentes ao "Olen site II".
- Figura 7-46: Resultados da simulação para os dados iniciais referentes ao "Olen site III".
- Figura 7-47: Resultados da simulação para os dados iniciais referentes ao "Olen site IV".
- Figura 7-48: Resultados da simulação para os dados iniciais referentes ao "Olen site V".
- Figura 7-49: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²¹⁰Po), respectivamente: $A_{1(0)} = 6,55 \times 10^{-7}$ Bq e $A_{2(0)} = 0$ Bq.
- Figura 7-50: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²¹⁰Po), respectivamente: $A_{1(0)} = 4980 \text{ Bq e } A_{2(0)} = 0 \text{ Bq}.$
- Figura 7-51: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²¹⁰Po), respectivamente: $A_{1(0)} = 13 \ 134 \ Bq \ e \ A_{2(0)} = 0 \ Bq.$
- Figura 7-52: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²¹⁰Po), respectivamente: A₁₍₀₎ = 13 134 Bq e A₂₍₀₎ = 1,65 x 10³ Bq.
- Figura 7-53: Modelo biocinético para o ²¹⁰Po segundo Leggett and Eckerman (adaptado) (Leggett & Eckerman, 2001).
- Figura 7-54: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (210 Po), respectivamente: A₁₍₀₎ = 13 134 Bq e A₂₍₀₎ = 1650 Bq.
- Figura 7-55: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²¹⁰Po), respectivamente: $A_{1(0)} = 7000 \text{ Bq e } A_{2(0)} = 400 \text{ Bq}.$
- Figura 7-56: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²¹⁰Po), respectivamente: $A_{1(0)} = 200 \text{ Bq e } A_{2(0)} = 344 \text{ Bq}.$
- Figura 7-57: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²¹⁰Po), respectivamente: $A_{1(0)} = 0$ Bq e $A_{2(0)} = 344$ Bq.
- Figura 7-58: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²¹⁰Po), respectivamente: $A_{1(0)} = 400$ Bq e $A_{2(0)} = 344$ Bq.
- Figura 7-59: Resultados da simulação para a actividade no solo estimada a partir da concentração de ²³⁰Th nos aerossóis na Urgeiriça: A₁₍₀₎ = 87,8 Bq e A₂₍₀ = 0 Bq.
- Figura 7-60: Resultados da simulação para a actividade no solo estimada a partir da concentração de ²³²Th nos aerossóis na Urgeiriça: A₁₍₀₎ = 66,72 Bq e A₂₍₀ = 0 Bq.
- Figura 7- 61: Resultados da simulação para a concentração inicial de ²³⁰Th no solo e no pasto, respectivamente: $A_{1(0)} = 5,51 \times 10^7$ Bq e $A_{2(0)} = 0$ Bq.
- Figura 7- 62: Resultados da simulação para a concentração inicial de ²³²Th no solo e no pasto, respectivamente: $A_{1(0)} = 1,34 \times 10^{6}$ Bq e $A_{2(0)} = 0$ Bq.
- Figura 7- 63: Resultados da simulação para a concentração inicial de ²³⁴Th no solo e no pasto, respectivamente: $A_{1(0)} = 7,96 \times 10^7$ Bq e $A_{2(0)} = 0$ Bq.
- Figura 7-64: Resultados da simulação para a concentração de ²³²Th em solos agrícolas de origem natural: $A_{1(0)} = 1,38 \text{ x}$ $10^7 \text{ Bq e } A_{2(0)} = 0 \text{ Bq}.$
- Figura 7-65: Resultados da simulação para a obter a concentração de ²²⁸Th no leite = 0,002 Bq/kg: $A_{1(0)}$ = 500 Bq e $A_{2(0)}$ = 0 Bq.
- Figura 7-66: Resultados da simulação para a obter a concentração de ²²⁸Th no leite igual a 2,6 Bq/kg: $A_{1(0)} = 3 \times 10^5$ Bq e $A_{2(0)} = 0$ Bq.
- Figura 7-67: Resultados da simulação para a obter a concentração de ²³⁰Th no leite igual a 0,6 Bq/kg: A₁₍₀₎ = 60 000 Bq e A₂₍₀₎ = 0 Bq.
- Figura 7-68: Resultados da simulação para a obter a concentração de ²³²Th no leite < 1,2 Bq/kg: $A_{1(0)} = 2,5 \times 10^6$ Bq e $A_{2(0)} = 0$ Bq.

LISTA DE TABELAS

Tabela 2-1:	Série do ²³⁸ U.
Tabela 2-2:	Série do ²³⁵ U.
Tabela 2-3:	Repartição da actividade pelos radioisótopos da série do 238 U (\Re = 90 %).
Tabela 2-4:	Repartição da actividade pelos radioisótopos da série do 235 U (\Re = 90 %).
Tabela 2-5:	Repartição da actividade pelos radioisótopos da série do 238 U (\Re = 100 %).
Tabela 2-6:	Repartição da actividade pelos radioisótopos da série do 235 U (\Re = 100 %).
Tabela 2-7:	Repartição da actividade pelos radioisótopos da série do ²³⁸ U e do ²³⁵ U (\Re = 0 %).
Tabela 3-1:	Classificação da estabilidade para a modeladem do transporte atmosférico.
Tabela 3-2:	Coeficientes de dispersão, segundo a categoria de estabilidade de Pasquill.
Tabela 3-3:	Parâmetros de dispersão vertical. σ. segundo Pasquill-Gifford (Turner, 1994).
Tabela 3-4:	Parâmetros de dispersão horizontal. ou segundo Pasquill-Gifford (Turner, 1994).
Tabela 3-5:	Coeficientes de dispersão horizontal urbana, $\sigma_{\rm w}$ segundo Briggs (Turner, 1994).
Tabela 3-6	Coeficientes de dispersão vertical urbana σ_{τ} segundo Briggs (Turner, 1994)
Tabela 3-7:	Porosidade total e volume de ar para o material da cobertura e do resíduo.
Tabela 3-8:	Características do material de cobertura.
Tabela 3-9:	Parâmetros necessários ao sistema de cobertura com duas camadas.
Tabela 3-10:	Fluxo e espessura de cada camada.
Tabela 3-11:	Concentração na atmosfera local.
Tabela 3-12:	Parâmetros necessários para a estimativa da potência da fonte.
Tabela 3-13:	Potência da fonte para cada caso considerado.
Tabela 3-14:	Dispersão em função da categoria de estabilidade atmosférica.
Tabela 3-15:	Área de cada zona a estudar e a respectiva coordenada do ponto médio.
Tabela 3-16:	Actividade estimada para cada uma das zonas consideradas.
Tabela 3-17:	Parâmetros de entrada necessários à estimativa do coeficiente de difusão no ar.
Tabela 3-18:	Parâmetros estimados para o cálculo do coeficiente de difusão no ar.
Tabela 3-19:	Coeficiente de difusão para a cobertura e para os resíduos (método Wilke & Lee).
Tabela 3-20:	Parâmetros de entrada necessários para estimar o fluxo libertado para o exterior.
Tabela 3-21:	Fluxo de radão que se liberta em cada área considerada.
Tabela 3-22:	Média das coordenadas de cada área considerada.
Tabela 3-23:	Fluxo total (J) e potência da fonte (Q) para os resíduos (t) e para a cobertura (c).
Tabela 3-24:	Parâmetros locais necessários à estimativa da concentração de radão.
Tabela 3-25:	Fluxo de radão medido nas diferentes zonas da BV da Urgeiriça.
Tabela 3-26:	Coeficiente de difusão para o radão estimado com a expressão (3-91).
Tabela 3-27:	Humidade do solo, m, estimada pela expressão empírica (3-93).
Tabela 3-28:	Humidade do solo, m, determinada experimentalmente.
Tabela 3-29:	Porosidade total (ϵ) e volume de ar (θ) no material de cada zona.
Tabela 3-30:	Coeficientes de difusão determinados para o 2.º caso de exploração a partir dos valores da humidade no solo
	obtidos experimentalmente.
Tabela 3-31:	Fluxo de radão estimado com os valores da Tabela 3-30.
Tabela 3-32:	Actividade média do ²²⁶ Ra (Bq.kg ⁻¹) determinada nas amostras colhidas nas sondagens efectuadas na
	barragem velha da Urgeiriça (EXMIN, 2003).
Tabela 3-33:	Actividade média do ²²⁶ Ra (Bq.kg ⁻¹) em cada área a estudar.
Tabela 3-34:	Localização do ponto médio de cada área, em coordenadas UTM (aferidas ao Datum Europeu de 1950) e em
	coordenadas militares M e P (meridiano e paralelo).
Tabela 3-35:	Areas definidas segundo a caracterização radiológica, mineralógica e litológica.

- Tabela 3-36: Humidade calculada em função da % de peso húmido (Vicente, 2005).
- Tabela 3-37: Humidade referente a cada área a estudar, W, % em peso seco.
- Tabela 3-38: Parâmetros necessários à caracterização do local.
- Tabela 3-39: Cálculo do conteúdo volumétrico em água com ρ_{wet} = 1,67.
- Tabela 3-40: Cálculo do conteúdo volumétrico em água com ρ_{wet} = 1,7.
- Tabela 3-41: Cálculo do conteúdo volumétrico em água com ρ_{wet} = 1,80.
- Tabela 3-42: Cálculo do conteúdo volumétrico em água com ρ_{wet} = 1,83.
- Tabela 3-43: Estimativa do coeficiente de difusão pelo método de Wilke & Lee (Lyman, 1990).
- Tabela 3-44: Fluxo de radão (Bq.m⁻².s⁻¹) para ρ_{wet} = 1,67 e ρ_{wet} = 1,83, mantendo ρ_{dry} = 1,67.
- Tabela 3-45: Fluxo de radão (Bq.m⁻².s⁻¹) para $\rho_{wet} = 1,67$ e $\rho_{wet} = 1,83$, variando ρ_{dry} segundo os valores obtidos na Tabela 3-39 e na Tabela 3-42.
- Tabela 3-46: Coeficiente de difusão estimado com a expressão (3-29) e a humidade, m, estimada com a expressão (3-27).
- Tabela 3-47: Estimativa de m com base na % em peso húmido da amostra.
- Tabela 3-48: Estimativa de m com base na % em peso seco da amostra.
- Tabela 3-49: Fluxo com base na humidade percentual da massa da amostra húmida e seca.
- Tabela 3-50: Coeficiente de difusão, D, estimado com a expressão (2) de Rogers (1980).
- Tabela 3-51: Fluxo médio de radão estimado a partir dos resultados obtidos na Tabela 3-50.
- Tabela 3-52: Coeficiente de difusão intersticial, $D_e = D/\epsilon$, ou no vazio do poro.
- Tabela 3-53: Fluxo de radão estimado com os valores de m da Tabela 3-47 e da Tabela 3-48.
- Tabela 3-54: Coeficientes de difusão efectivo estimados com a expressão usada pelo ITN.
- Tabela 3-55: Fluxo estimado para ρ_{dry} = 1,67 g.cm 3 e ϵ = 0,37
- Tabela 3-56: Estimativa do coeficiente de difusão com a expressão (3) de Rogers e com os valores de m, ρ, ε, da Tabela 3-47 e da Tabela 3-48 (D_{ar} = 0,132 cm².s⁻¹).
- Tabela 3-57: Fluxo médio de radão (J) e concentração média ao nível médio do solo (C₀) resultante dos coeficientes de difusão da Tabela 3-56.
- Tabela 3-58: Fluxo estimado com a humidade em % de peso seco e em % de peso húmido, porosidade variável e $\rho_{dry} = 1,67$ g.cm⁻³.
- Tabela 3-59: Fluxo resultante para cada área de acordo com a actividade em rádio, para o mesmo coeficiente de difusão e para a área total de 133 000 m².
- Tabela 3-60: Fluxo médio resultante da área total contaminada de 133 000 m².
- Tabela 3-61: Fluxo resultante para a área total de 120 000 m², para o mesmo coeficiente de difusão e para a mesma actividade em rádio em toda a área contaminada.
- Tabela 3-62: Fluxo resultante de um sistema de cobertura com diferentes espessuras.
- Tabela 3-63: Humidade (%) e fluxo de radão para cada área (Bq.m⁻².s⁻¹).
- Tabela 3-64: Valores médios do fluxo de radão obtidos experimentalmente (Vicente, 2005).
- Tabela 3-65: Coeficientes de difusão estimados a partir do fluxo medido e porosidade = 0,37.
- Tabela 3-66: Coeficientes de difusão estimados a partir do fluxo medido e porosidade variável.
- Tabela 3-67: Estimativa do fluxo para porosidade igual a 0,37 (humidade, % do peso húmido).
- Tabela 3-68: Estimativa do fluxo para porosidade igual a 0,37 (humidade, % do peso seco).
- Tabela 3-69: Fluxo médio medido pela EXMIN (2003).
- Tabela 3-70: Fluxo médio obtido por Faísca (1999).
- Tabela 3-71: Valores de fluxo médio e da concentração ao nível médio do solo.
- Tabela 3-72: Resultados obtidos considerando 7 áreas com diferente concentração em rádio.
- Tabela 3-73: Resultados obtidos considerando 4 áreas com diferente concentração em rádio.
- Tabela 3-74: Resultados obtidos considerando 2 áreas com diferente concentração em rádio.
- Tabela 3-75: Resultados obtidos considerando 2 áreas com diferente concentração em rádio e área inferior à área total.
- Tabela 3-76: Resultados da exploração no 2.º caso de exploração (3.5.3).
- Tabela 3-77: Resultados da exploração no 3.º caso de exploração (3.5.4).

- Tabela 3-78: Resultados obtidos pelo método de Wilke & Lee para diferentes combinações dos valores de ρ_{dry} e de ρ_{wet} (Tabela 3-44 e Tabela 3-45).
- Tabela 3-79: Resultados obtidos pela expressão (1) de Rogers com diferentes valores de humidade (Tabela 3-49).
- Tabela 3-80: Resultados obtidos pela expressão (2) de Rogers com diferentes valores de humidade e valores de D_e corrigidos (Tabela 3-52).
- Tabela 3-81: Resultados obtidos pela expressão (2) de Rogers com m igual ao grau de saturação (1) e valores de D_e corrigidos (Tabela 3-54).
- Tabela 3-82: Resultados obtidos pela expressão (3) de Rogers com diferentes valores de humidade mas porosidade e densidade constantes (Tabela 3-55).
- Tabela 3-83: Resultados obtidos com a expressão de Rogers (3) para densidade e porosidade variável (Tabela 3-57).
- Tabela 3-84: Resultados obtidos com base nas características locais definidas pela EXMIN (2003) (Tabela 3-60).
- Tabela 3-85: Concentração de radão na direcção dominante do vento (modelo), casos 1 a 14.
- Tabela 4-1: Dados gerais necessários para a modelagem do transporte hidrológico.
- Tabela 4-2: Parâmetros necessários ao cálculo de Winf.
- Tabela 4-3: Resultados do cálculo de W_{inf}.
- Tabela 4-4: Parâmetros necessários ao cálculo de Cinf.
- Tabela 4-5: Actividade em 2,640 x 10⁹ kg de estéreis depositados na barragem resultantes do tratamento do minério de urânio com teor de 1 kg/ton.
- Tabela 4-6: Resultados do cálculo da sub-rotina de lixiviação.
- Tabela 4-7: Parâmetros necessários ao cálculo do grau de saturação.
- Tabela 4-8: Estimativa de R_s, R_v e V_v.
- Tabela 4-9: Dados de entrada necessários ao cálculo de t_v e η_v .
- Tabela 4-10: Resultados da estimativa de t_v e η_v .
- Tabela 4-11: Resultados da simulação do transporte dos RDN.
- Tabela 4-12: Resultados da simulação da concentração de RDN na água do poço.
- Tabela 4-13: Resultados da simulação do modelo de lixiviação com escorrência superficial.
- Tabela 4-14: Resultados independentes do RDN para o 1.º caso (teor 1 kg/ton).
- Tabela 4-15: Resultados da exploração com os parâmetros do 1.º caso do balanço hidrológico e para os RDN: ²¹⁸Po, ²¹⁴Po, ²¹⁰Po e ²¹⁰Pb (teor 1 kg/ton).
- Tabela 4-16: Resultados independentes do RDN para o 3.º caso (teor 1 kg/ton).
- Tabela 4-17: Resultados da exploração com os parâmetros do 3.º caso do balanço hidrológico e para os RDN: ²¹⁸Po, ²¹⁴Po, ²¹⁰Po e ²¹⁰Po e ²¹⁰Pb.
- Tabela 4-18: Actividade, por radioisótopo, em 2,640 x 10⁹ kg de estéreis depositados na barragem, que resultaram do tratamento de um minério de urânio com teor de 0,2 kg/ton.
- Tabela 4-19: Resultados independentes do RDN para o 1.º caso (teor 0,2 kg/ton).
- Tabela 4-20: Resultados da exploração com os parâmetros do 1.º caso do balanço hidrológico e para os RDN: ²¹⁸Po, ²¹⁴Po, ²¹⁰Po e ²¹⁰Pb (teor 0,2 kg/ton).
- Tabela 4-21: Resultados independentes do RDN para o 3.º caso (teor 0,2 kg/ton).
- Tabela 4-22: Resultados da exploração com os parâmetros do 3.º caso do balanço hidrológico e para os RDN: ²¹⁸Po, ²¹⁴Po, ²¹⁰Po e ²¹⁰Pb (teor 0,2 kg/ton).
- Tabela 4-23: Concentração de RDN na água do poço (Cwp) e na água superficial (Cas).
- Tabela 4-24: Dados de entrada referentes à BV da Urgeiriça para a exploração do modelo.
- Tabela 4-25: Resultados das análises radiológicas nos pontos amostrados (Exmin, 2003).
- Tabela 4-26: Média, desvio padrão, máximo e mínimo das duas campanhas de amostragem em poços e furos em 2001 (Exmin, 2003).
- Tabela 4-27: Média dos pontos de água a jusante da Barragem Velha (BV).
- Tabela 4-28: Síntese estatística para os RDN estudados.
- Tabela 4-29: Valores médios anuais para cada ponto de água amostrado.

- Tabela 4-30: Exploração do modelo para cada ponto de amostragem referente ao horizonte temporal de 10, 20, 30 e 50 anos (actividade em Bq/L).
- Tabela 4-31: Coeficiente de correlação (r) entre a distância e a actividade no ponto amostrado.
- Tabela 4-32: Intervalo de confiança centrado na média dos valores de cada grupo de dados.
- Tabela 4-33: Comparação entre a média dos dados analíticos e média de cada caso de exploração (U e Ra em Bq/L).
- Tabela 4-34: Média anual (μ) da actividade para cada poço amostrado.
- Tabela 4-35: Média anual (μ) da actividade para cada furo amostrado.
- Tabela 4-36: Distância média dos poços e furos contaminados referente à fronteira da BV.
- Tabela 4-37: Exploração do modelo em função do período de tempo necessário para obter resultados equivalentes aos das análises radiológicas.
- Tabela 4-38: Média anual da actividade de todos os pontos de água contaminados.
- Tabela 4-39: Exploração do modelo em função do período de tempo necessário para obter os valores das análises radiológicas.
- Tabela 4-40: Exploração do modelo para o período de tempo a que corresponde os valores médios das análises radiológicas para os pontos de água contaminados a jusante da BV.
- Tabela 4-41: Actividade na água do poço em função do tempo de simulação (Bq/L).
- Tabela 4-42: Valores máximos admitidos (VMA) em águas de rega (Exmin, 2003).
- Tabela 4-43: Valores médios, máximos e limites da EPA para a actividade de ²²⁶Ra e de U (total) nas águas subterrâneas.
- Tabela 4-44: Variação dos parâmetros de entrada para a análise de sensibilidade.
- Tabela 4-45: Exploração do modelo variando o K_d e $\epsilon_{e,esc}$.
- Tabela 4-46: Exploração do modelo variando K_d e p_{esc}.
- Tabela 4-47: Exploração do modelo variando o K_d e p_{ins}.
- Tabela 4-48: Exploração do modelo variando o K_d e os coeficientes (C_r) e (C_e).
- Tabela 4-49: Exploração do modelo variando o K_d e a condutividade hidráulica, K_h.
- Tabela 4-50: Actividade na fracção líquida da barragem.
- Tabela 5-1: Coeficiente de Manning.
- Tabela 5-2: Parâmetros necessários à exploração do modelo no caso dos rios.
- Tabela 5-3: Valores de entrada para a exploração do modelo aplicado aos rios.
- Tabela 5-4: Valores obtidos no modelo de transporte de RDN nos rios.
- Tabela 5-5: Concentração média de cada RDN no ponto de descarga.
- Tabela 5-6: Parâmetros necessários à exploração do modelo no caso dos estuários.
- Tabela 5-7: Valores de entrada para a exploração do modelo no caso dos estuários.
- Tabela 5-8: Valores obtidos no modelo de transporte de RDN nos estuários.
- Tabela 5-9: Valores de entrada para a exploração no caso das águas costeiras.
- Tabela 5-10: Valores obtidos para a concentração de Ra, Pb, Th e U nas águas costeiras, quando $y_0 = 50$.
- Tabela 5-11: Valores obtidos para a concentração de Ra, Pb, Th e U nas águas costeiras, quando y₀ = 0.
- Tabela 5-12: Valores de entrada para a exploração do modelo no caso dos lagos.
- Tabela 5-13: Valores obtidos para a concentração de Ra, Pb, Th e U, no caso dos lagos.
- Tabela 5-14: Valores de entrada para a exploração do modelo no caso dos sedimentos.
- Tabela 5-15: Resultados da exploração do modelo no caso dos sedimentos.
- Tabela 5-16: Resultados da exploração do modelo de transferência para a biota aquática.
- Tabela 5-17: Distância entre os pontos de exposição.
- Tabela 5-18: Valores para a exploração do modelo no estudo de caso referente à Urgeiriça.
- Tabela 5-19: Resultados analíticos obtidos em amostras de águas residuais da envolvente mineira da Urgeiriça.
- Tabela 5-20: Concentração em ²²⁶Ra nos pontos de exposição (C_{ee} = 960 Bq/m³).
- Tabela 5-21: Parâmetros referentes às características do rio Mondego.
- Tabela 5-22: Concentração em 226 Ra no ponto C₇ (C_{ee} = 5,46 Bq/m³).
- Tabela 5-23: Concentração em 226 Ra no efluente da mina (E1) e no efluente da escombreira da barragem velha (E2).

- Tabela 5-24: Concentração em 226 Ra nos pontos de exposição (C_{ee} = 5470 Bq/m³).
- Tabela 5-25: Concentração em ²²⁶Ra no ponto de exposição C₇ (C_{ee} = 31,1 Bq/m³).
- Tabela 5-26: Valores analíticos das análises efectuadas pela ENU ao efluente E1 e E2, referente ao ano de 1997.
- Tabela 5-27: Valores analíticos das análises efectuadas pela ENU nos pontos de exposição, referente ao ano de 1997.
- Tabela 5-28: Concentração em 226 Ra nos pontos de exposição (C_{ee} = 271 Bq/m³).
- Tabela 5-29: Concentração em ²²⁶Ra nos pontos de exposição (C_{ee} = 70 (Bq/m³).
- Tabela 5-30: Valores de entrada para a exploração do modelo, no caso dos sedimentos, referente ao estudo de caso da Urgeiriça.
- Tabela 5-31: Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores obtidos na Figura 5-16 e na Figura 5-17 para C_{wt} (²²⁶Ra).
- Tabela 5-32: Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores obtidos na Figura 5-18 e na Figura 5-19 para C_{wt} (²²⁶Ra).
- Tabela 5-33: Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores da Tabela 5-28 para C_{wt} (²²⁶Ra).
- Tabela 5-34: Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores da Tabela 5-29 para C_{wt} (²²⁶Ra).
- Tabela 5-35: Média dos valores obtidos para a concentração nos sedimentos (C_{sb}, C_{ss}, C_{ws}, C_{sw}) em cada ponto de exposição (x < 1,4; C₂; C₃; C₄; PC; x < 5,67 e C₇).
- Tabela 5-36: Concentração de ²²⁶Ra nos sedimentos em função da distância à área mineira da Urgeiriça segundo Pereira et al. (2004b).
- Tabela 5-37: Concentração de ²²⁶Ra nos sedimentos em função da distância à área mineira da Urgeiriça segundo Bettencourt et al. (1988).
- Tabela 5-38: Concentração em ²²⁶Ra na água superficial obtida a partir da exploração do modelo com os valores da Tabela 5-35.
- Tabela 5-39: Concentração em ²²⁶Ra na água superficial obtida a partir da exploração do modelo com os valores da Tabela 5-36.
- Tabela 5-40: Resultados da exploração do modelo de transferência para a biota aquática referente ao estudo de caso da Urgeiriça.
- Tabela 6-1: Valores de B_v, B_r e C_r/C_v para o rádio (Baes et al., 1984).
- Tabela 6-2: Comparação dos valores observados e previstos para os parâmetros C_v e C_r, relativamente ao chumbo (Baes et al., 1984).
- Tabela 6-3: Comparação dos valores observados e previstos para os parâmetros C_v e C_r, relativamente ao urânio (Baes et al., 1984).
- Tabela 6-4: Melhores estimativas dos parâmetros B_v e B_r para Ra, U e Pb (Baes et al., 1984).
- Tabela 6-5: Factores de transferência para o Cs, Sr, U e Ra.
- Tabela 6-6: Redução anual da contaminação no solo por fito-extracção.
- Tabela 6-7: Redução anual da contaminação no solo por fito-extracção considerando o decaimento radioactivo.
- Tabela 6-8: Melhor estimativa do FT para o rádio (Bq.kg⁻¹ planta por Bq.kg⁻¹ solo).
- Tabela 6-9: Melhor estimativa do FT para o urânio (Bq.kg⁻¹ planta por Bq.kg⁻¹ solo).
- Tabela 6-10: Valor do FT para o urânio específico para vegetação natural e produtos hortícolas.
- Tabela 6-11: FT médios para o Ra total e para o Ra trocável (Madruga et al., 2001).
- Tabela 6-12: Parâmetros envolvidos no modelo de transferência para a vegetação.
- Tabela 6-13: Dados iniciais para a simulação da transferência dos RDN para a vegetação.
- Tabela 6-14: Constante de decaimento radioactivo (λ_d), constante de remoção da planta (λ_e) e constante de remoção do solo (λ_b) para os respectivos RDN.
- Tabela 6-15: Parâmetros intermédios para a estimativa da concentração na vegetação.
- Tabela 6-16: Concentração na vegetação por via de transferência (Cad, Cdd, Crd, Cai, Cdi, Cri).
- Tabela 6-17: Dados de entrada para a estimativa da fracção de intercepção no ar (far).

Tabela 6-18: Dados de entrada para a estimativa da transferência de RDN através da irrigação.

Tabela 6-19: Concentração na vegetação devido à irrigação, (Bq/kg).

- Tabela 6-20: Dados de entrada para estimar a concentração total na vegetação transferida pela deposição atmosférica e pela água de irrigação contaminada.
- Tabela 6-21: Concentração na planta por via de transferência (CvA, CvI, CRA, CRI, CV, CVR).
- Tabela 6-22: FT_{resíduo/pinheiros} (resíduo resultante do tratamento do minério com teor 1 kg/ton).
- Tabela 6-23: FT_{resíduo/pinheiros} (resíduo resultante do tratamento do minério com teor 0,2 kg/ton).
- Tabela 6-24: FT_{residuo/giestas} (resíduo resultante do tratamento do minério com teor 1 kg/ton).
- Tabela 6-25: FT_{residuo/giestas} (resíduo resultante do tratamento do minério com teor 0,2 kg/ton).
- Tabela 6-26: FT_{resíduo/eucaliptos} (resíduo resultante do tratamento do minério com teor 1 kg/ton).
- Tabela 6-27: FT_{residuo/eucaliptos} (resíduo resultante do tratamento do minério com teor 0,2 kg/ton).
- Tabela 6-28: Distribuição da actividade pelos radioisótopos no resíduo.
- Tabela 6-29: Actividade no resíduo por RDN e por local de amostragem, (Bq/g).
- Tabela 6-30: Actividade em rádio total e em rádio trocável, (Bq/g).
- Tabela 6-31: Comparação do FT_{residuo/planta} obtido com a concentração total de rádio no resíduo e com a fracção trocável.
- Tabela 6-32: FT estimados com a correlação obtida para a concentração total de rádio no resíduo (C₁ e C₂) e para 20 % desta concentração (C₃ e C₄ rádio trocável).
- Tabela 6-33: Concentração de rádio no resíduo.
- Tabela 6-34: FT_{residuo/pinheiros}: ITN valores experimentais, C_s(total) concentração adoptada da bibliografia, C_s(15 ppm) 15 ppm da concentração adoptada da bibliografia.
- Tabela 6-35: FT_{solo/arbustos}: ITN valores experimentais, C_s(total) concentração adoptada da bibliografia, C_s(15 ppm) 15 ppm da concentração da bibliografia.
- Tabela 6-36: FT_{solo/eucaliptos}: ITN valores experimentais, C_s(total) concentração no adoptada da bibliografia, C_s(15 ppm) 15 ppm da concentração adoptada da bibliografia.
- Tabela 6-37: Concentração na vegetação, C_p, (Bq/g) calculada com a concentração no resíduo, C_s (Bq/g) e os respectivos FT para os pinheiros (raízes P_r e agulhas P_a).
- Tabela 6-38: Concentração na vegetação, C_p, (Bq/g) calculada com a concentração no resíduo, C_s (Bq/g) e os respectivos FT para os arbustos (raízes – A_r e partes aéreas – A_a).
- Tabela 6-39: Concentração na vegetação, C_p, (Bq/g) calculada com a concentração no resíduo, C_s (Bq/g) e os respectivos FT para os eucaliptos (folhas E_f).
- Tabela 6-40: Valores obtidos experimentalmente (exp.) para a concentração nos pinheiros e valores estimados (calculados com a correlação, C₀).
- Tabela 6-41: Valores obtidos experimentalmente (exp.) para os FT nos pinheiros e valores estimados (calculados a partir da correlação, C_p).
- Tabela 6-42: FT vs concentração no resíduo (R1) para cada tipo de vegetação.
- Tabela 6-43: Concentração na vegetação devido à absorção pelas raízes (R1), (Bq/kg).
- Tabela 6-44: Dados genéricos de entrada para a simulação.
- Tabela 6-45: Concentração na vegetação devido à deposição (R1), Bq/kg.
- Tabela 6-46: Concentração na vegetação devido à ressuspensão (R1), (Bq/kg).
- Tabela 6-47: Concentração total na vegetação (R1), (Bq/kg).
- Tabela 6-48: FT vs concentração no resíduo (R2) para cada tipo de vegetação.
- Tabela 6-49: Concentração na vegetação devido à absorção pelas raízes (R2), (Bq/kg).
- Tabela 6-50: Concentração na vegetação devido à deposição (R2), (Bq/kg).
- Tabela 6-51: Concentração na vegetação devido à ressuspensão (R2), (Bq/kg).
- Tabela 6-52: Concentração total na vegetação (R2), (Bq/kg).
- Tabela 6-53: FT vs concentração no resíduo para cada tipo de vegetação.
- Tabela 6-54: Concentração na vegetação devido à absorção pelas raízes, (Bq/kg).
- Tabela 6-55: Concentração na vegetação devido à deposição, (Bq/kg).
- Tabela 6-56: Concentração na vegetação devido à ressuspensão, (Bq/kg).

Tabela 6-57: Concentração total na vegetação (Bq/kg).

- Tabela 6-58: Concentração no resíduo e no solo superficial, (Bq/kg).
- Tabela 6-59: Concentração de cada RDN na água de irrigação (capítulo 4), (Bq.m⁻³).
- Tabela 6-60: FT para o urânio, rádio e chumbo (Vandehove, 2002), (Carvalho et al., 2001).
- Tabela 6-61: Concentração total de rádio nas raízes de vegetais (cenouras) origem R1.
- Tabela 6-62: Concentração total de rádio nas raízes de vegetais (cenouras) origem R2.
- Tabela 6-63: Concentração total de rádio nos vegetais sem folhas (tomate) origem R1.
- Tabela 6-64: Concentração total de rádio nos vegetais sem folhas (tomate) origem R2.
- Tabela 6-65: Concentração total de rádio nos vegetais com folhas (alface) origem R1.
- Tabela 6-66: Concentração total de rádio nos vegetais com folhas (alface) origem R2.
- Tabela 6-67: Concentração total de rádio nos vegetais com folhas (couve) origem R1.
- Tabela 6-68: Concentração total de rádio nos vegetais com folhas (couve) origem R₂.
- Tabela 6-69: Dados obtidos experimentalmente na zona circundante ao local de armazenamento do resíduo.
- Tabela 6-70: Concentração total na vegetação estimada a partir dos dados experimentais obtidos para a Urgeiriça.
- Tabela 6-71: Concentração total de rádio na couve estimada a partir de 15 ppm da concentração no resíduo.
- Tabela 6-72: Concentração total de rádio na couve transferida apenas pela água de irrigação.
- Tabela 6-73: Concentração na vegetação (C_p) e no solo (C_s) em função do tempo decorrido após o início da prática de irrigação com água contaminada.
- Tabela 6-74: Concentração de rádio na vegetação (couve) devido à deposição atmosférica e à água de irrigação contaminada, (Bq/kg).
- Tabela 6-75: Concentração de rádio na vegetação (erva de pasto) devido à transferência pela deposição atmosférica e à áqua de irrigação contaminada. (Bg/kg).
- Tabela 7-1: Semi-vida: física, biológica e efectiva, de alguns RDN (Tuszynski & Dixon, 2001).
- Tabela 7-2: Absorção digestiva de alguns RDN pelos animais (Naulleau, 2003).
- Tabela 7-3: Coeficientes de transferência expressos em % (⁹⁰Sr, ¹³¹I, ¹³⁷Cs) (Naulleau, 2003).
- Tabela 7-4: Coeficientes de transferência para os RDN em estudo (Staven et al., 2003).
- Tabela 7-5: Parâmetros envolvidos na transferência de RDN na cadeia alimentar.
- Tabela 7-6: Parâmetros envolvidos na transferência de RDN no modelo biocinético.
- Tabela 7-7: Parâmetros necessários à estimativa da deposição de RDN no solo.
- Tabela 7-8: Parâmetros necessários à estimativa da constante cinética de transferência.
- Tabela 7-9: Parâmetros envolvidos na transferência dos RDN da erva de pasto para a vaca por ingestão.
- Tabela 7-10: Parâmetros relativos à estimativa da concentração no solo.
- Tabela 7-11: Parâmetros relativos à estimativa da concentração na erva de pasto.
- Tabela 7-12: Parâmetros relativos à estimativa da concentração no herbívoro.
- Tabela 7-13: Parâmetros relativos à estimativa das relações alométricas.
- Tabela 7-14: Valores dos parâmetros independentes do RDN (IAEA, 2004), (Makhon ko, 1996).
- Tabela 7-15: Factores de transferência (FT), coeficientes de distribuição (K_d), coeficiente (a_m) e expoente (b_m) das relações alométricas para o Ra, U, e Th (Brown et al., 2003), (Avila & Facilia, 2006), (Temerin, 1984), (Teale, 2003).
- Tabela 7-16: Valores dos parâmetros relativos às relações alométricas (Brown et al., 2003).
- Tabela 7-17: Fracção de absorção de vários RDN pelo sistema gastrointestinal.
- Tabela 7-18: Parâmetros necessários à exploração do modelo na trajectória pasto-vaca-leite.
- Tabela 7-19: Constantes cinéticas de transferência para o ²²⁶Ra.
- Tabela 7-20: Parâmetros necessários à simulação do modelo biocinético para o ²²⁶Ra.
- Tabela 7-21: Valores dos parâmetros necessários para estimar o fluxo de deposição no solo.
- Tabela 7-22: Parâmetros necessários à estimativa da concentração de ²²⁶Ra em cada compartimento.
- Tabela 7-23: Constantes cinéticas de transferência para o ²³⁵U e ²³⁸U (Braithwaite, 1997), (NCRP, 1980), (Leggett & Pellmar, 2003).
- Tabela 7-24: Constantes cinéticas de perdas para o ²³⁵U e ²³⁸U (Leggett & Pellmar, 2003), (ICRP, 2006).
- Tabela 7-25: Outros parâmetros necessários à exploração do modelo para o 235U e 238U.

- Tabela 7-26: Valores da concentração de ²³⁵U referentes a diversos locais.
- Tabela 7-27: Valores da concentração de ²³⁸U referentes a diversos locais.
- Tabela 7-28: Constantes cinéticas de transferência do ²¹⁰Pb (NCRP, 1980), (Baes et al., 1984).
- Tabela 7-29: Constantes cinéticas de perdas do ²¹⁰Pb (Leggett & Eckerman, 1994).
- Tabela 7-30: Outros parâmetros necessários à simulação para o ²¹⁰Pb.
- Tabela 7-31: Valores da concentração de ²¹⁰Pb referentes a diversos locais.
- Tabela 7-32: Constantes cinéticas de perdas para o ²¹⁰Po (Leggett & Eckerman, 2001).
- Tabela 7-33: Constantes cinéticas de transferência para o ²¹⁰Po.
- Tabela 7-34: Outros parâmetros necessários à simulação para o ²¹⁰Po.
- Tabela 7-35: Constantes cinéticas necessárias à exploração do modelo para o ²¹⁰Po.
- Tabela 7-36: Dose resultante da ingestão anual de leite contaminado com ²¹⁰Po.
- Tabela 7-37: Dose total resultante da exposição ao ²¹⁰Po.
- Tabela 7-38: Constantes cinéticas de transferência para o ²³²Th, ²³⁴Th e ²³⁰Th (Braithwaite, 1997), (NCRP, 1980), (Leggett & Pellmar, 2003).
- Tabela 7-39: Constantes cinéticas de transferência para o ²³²Th, ²³⁴Th e ²³⁰Th.
- Tabela 7-40: Outros parâmetros necessários à simulação para o ²³²Th, ²³⁴Th e ²³⁰Th.
- Tabela 7-41: Valores da concentração para o 232 Th, 234 Th e 230 Th referentes a diversos locais.

LISTA DE SÍMBOLOS

λ:	Constante de decaimento radioactivo, (T ⁻¹).
α:	Ângulo de cada sector, (45º).
φ:	Coeficiente de deposição por via húmida, (ano.m ⁻¹ .s ⁻¹).
ω:	Energia molecular de colisão, (erg).
η:	Factor de correcção de Hung, (-).
Λ:	Fluxo de remoção por via húmida, (s ⁻¹).
δ:	Função impulso de Dirac, (-).
θ:	Humidade, (-).
θ:	Porosidade preenchida com água, (-).
Ω:	Integral da colisão para a difusão, (-).
ρ:	Massa volúmica do solo, (kg.m ⁻³ ou g.cm ⁻³).
ε:	Porosidade total (-).
R:	Rendimento da lixiviação, (%).
μ:	Velocidade média do vento, (m.s ⁻¹).
τ:	Vida média, (s).
γ:	Coeficiente de Bazin, (L ^{1/2}).
τ ₀ :	Tensão média de arrastamento numa dada secção, (N/m ou kg.s ⁻²).
λ1:	Cinética de transferência (GIT – plasma), (d ⁻¹).
λ2:	Cinética de transferência (plasma – superfície dos ossos), (d ⁻¹).
λ3:	Cinética de transferência (superfície dos ossos – plasma), (d ⁻¹).
λ4:	Cinética de transferência (superfície dos ossos – tecido ósseo), (d ⁻¹).
λ5:	Cinética de transferência (plasma – leite), (d ⁻¹).
λ ₆ :	Cinética de transferência (GIT – fezes), (d ⁻¹).
λ7:	Cinética de transferência (plasma – urina), (d ⁻¹).
α _a :	Ângulo de dispersão da pluma de contaminante na água do aquífero, (rad).
ρ _a :	Densidade do aquífero ou da zona saturada, (g.cm ⁻³).
σ _A :	Diâmetro da colisão, (Å).
μ _a :	Média aritmética da velocidade do vento, (m.s ⁻¹).
ε _a :	Porosidade do aquífero ou da zona saturada, (-).
σ _{AB} :	Comprimento característico, função do volume molal no ponto de ebulição, (Å).
θ_{as} :	Volume de ar nos poros do material onde se dá a difusão, (cm³ ar / cm³ solo).
λ _b :	Constante de remoção efectiva dos contaminantes do solo, (d ⁻¹).
ρ _c :	Densidade da cobertura, (g.cm ⁻³).
ε _c :	Porosidade total da cobertura, (-).
θ_d :	Tempo (-).
ρ_{dry} :	Densidade da massa seca, (g.cm ⁻³).
γ _{dry} :	Unidade de peso (específico) seco, (kN.m ⁻³).
λ _e :	Constante de remoção dos contaminantes da planta, (d ⁻¹).
ρ _e :	Densidade do solo na zona das raízes, (kg/m²).
λ_{er} :	Constante de equilíbrio solo/raízes, (d ⁻¹).
ρ _f :	Densidade da formação encaixante ou zona insaturada, (g.cm ⁻³).
ε _f :	Porosidade da formação encaixante ou zona insaturada, (-).

α _L :	Dispersão longitudinal, (m).
μ _m :	Velocidade média do vento, (m.s ⁻¹).
α _p :	Coeficiente de proporcionalidade, (-).
λ _r :	Constante de decaimento na pluma, (s ⁻¹).
μ _r :	Média harmónica da velocidade do vento, (m.s ⁻¹).
τ _r :	Tempo de residência, (s ⁻¹).
ρ _s *:	Densidade dos minerais constituintes das rochas do solo, (kg.m ⁻³).
ρ _s :	Densidade do solo, (kg.m ⁻³).
λs:	Débito constante de remoção de contaminante por lixiviação, (d-1).
θ_{sat} :	Fracção volumétrica de água em condições saturadas, (-).
ρ _t :	Densidade (seca) do material da zona contaminada, (g.cm ⁻³ ; kg.m ⁻³ ou t.m ⁻³).
θ _t :	Fracção volumétrica de água na zona contaminada, (-).
ε _t :	Porosidade total da zona contaminada, (-).
λ _w :	Débito constante de remoção devido à meteoração, (d ⁻¹).
ρ _{wet} :	Unidade de massa húmida, (g.cm ⁻³).
γ _w :	Peso específico da água, (9,807 kN.m ⁻³).
γ _{wet} :	Unidade de peso (específico) húmido, (kN.m ⁻³).
ε _x :	Coeficiente de dispersão na direcção x, (m²/s).
σ _v :	Parâmetros de dispersão, desvio padrão na horizontal, (m).
ε _γ :	Coeficiente de dispersão na direcção y, (m²/s).
σ _z :	Parâmetros de dispersão, desvio padrão na vertical, (m).
ε _z :	Coeficiente de dispersão na direcção z, (m²/s).
1-F:	Intercepção pela superfície do solo, (-).
A:	Área da fonte emissora, (m ²).
a:	Coeficiente de absorção da vegetação, (m²/kg).
A ₁ :	Actividade no minério de teor t ₁ , (Bq.t ⁻¹).
A _{1i} :	Actividade do RDN i no compartimento 1, (Bq).
A ₂ :	Actividade no minério de teor t ₂ , (Bq.kg ⁻¹).
A _{2i} :	Actividade do RDN i no compartimento 2, (Bq).
A ₃ :	Actividade radionuclídeos solúveis nos resíduos sólidos, (Bq.kg ⁻¹).
A _i :	Actividade de cada radionuclídeo i, (Bq.kg ⁻¹).
A _{ip} :	Índice de mistura parcial, (-).
AL:	Área da superfície do lago, (m²).
a _m :	Coeficiente da relação alométrica, (-).
A _p :	Deposição na superfície da vegetação, (Bq.m ⁻² .d ⁻¹).
A _{pasto} :	Área do compartimento 2 representado pela erva de pasto, (m ²).
A _s :	Deposição no solo do superfície do solo, (Bq.m ⁻² .d ⁻¹).
A _{solo} :	Área do compartimento 1 representado pelo solo, (m ²).
B:	Constante empírica, (-).
b:	Parâmetro exponencial específico do solo, (-).
B _p :	Factor de bioacumulação, (L/kg).
B _r :	Largura do rio, (m).
C:	Concentração do soluto, massa por unidade de volume, (M.L ⁻³).
C ₀ :	Concentração na atmosfera respirável, (Bq.m ⁻³).
C ₁ :	Concentração do RDN no solo, (Bq/kg).

C _a :	Concentração de rádio nos poros preenchidos com ar, (Bq.m ⁻³).
C _{ad} :	Concentração na planta por absorção com origem na deposição, (Bq/kg).
C _{af} :	Concentração de RDN nos organismos aquáticos, (Bq/kg).
C _{ai} :	Concentração na planta por absorção, com origem na água de irrigação contaminada, (Bq/kg).
C _{ar} :	Concentração no ar ao nível médio do solo, (Bq/m ³).
C _{as} :	Concentração na água superficial, (Bq/m ³).
C _d :	Concentração na fase dissolvida, (M.L ⁻³).
C _{dd} :	Concentração na planta devido à deposição directa dos contaminantes, (Bq/kg).
C _{di} :	Concentração na planta por deposição directa, com origem na água de irrigação contaminada, (Bq/kg).
C _e :	Coeficiente de evapotranspiração, (-).
C _{ee} :	Concentração de RDN no efluente, (Bq/m ³).
C _f :	Coeficiente de resistência local (-).
C _h :	Concentração no herbívoro, (Bq/kg).
C _i :	Concentração do RDN i no solo referente ao ano anterior, (Bq/m ²).
C _{inf} :	Concentração do RDN i na água de infiltração, (Bq.m ⁻³).
C _{od} :	Concentração média de RDN na massa de água, no ponto de descarga, (Bq/m ³).
C _{pa} :	Concentração de RDN na erva de pasto, (Bq/kg).
C _{peixe} :	Concentração na biota aquática (peixes), no estado estacionário, (Bq/m ³).
C _{pl} :	Concentração total na planta devido à deposição e à absorção, (Bq/kg).
C _{pr} :	Concentração da actividade na planta devido por absorção das raízes, (Bq/kg).
C _{pu} :	Concentração de RDN na fase particulada, (Bq/kg).
C _r :	Coeficiente de escorrência, (-).
C _{Ra} :	Concentração da actividade de rádio nos estéreis, (Bq/g).
C _{RA} :	Concentração de RDN na alimentação dos animais, (Bq/kg).
C _{rd} :	Concentração na planta devido à ressuspensão dos contaminantes do solo, (Bq/kg).
C _{ri} :	Concentração na planta por ressuspensão, com origem na água de irrigação contaminada, (Bq/kg).
C _S :	Concentração de sólidos no meio, (M.L ⁻³).
C _s :	Concentração da actividade do RDN no solo por unidade de área, (Bq/m ²).
C _{sa} :	Concentração de RDN nos produtos agrícolas armazenados, (Bq/kg).
C _{sb} :	Concentração de RDN nos sedimentos de fundo, (Bq/m ³).
C_{smax}	Concentração máxima de RDN nos sedimentos, no equilíbrio, (Bq/m ³).
C _{smin} :	Concentração mínima de RDN nos sedimentos, no equilíbrio, (Bq/m ³).
C _{so} :	Concentração de RDN na camada superior de solo, (Bq/kg).
C ^s _p :	Razão entre a massa de soluto e a massa de adsorvente, (M.M ⁻¹).
C _{ss} :	Concentração de RDN nos sedimentos de costa ou de praia, (Bq/m ³).
C _{sss} :	Concentração dos RDN no solo superficial, (Bq.kg ⁻¹).
C _{su} :	Concentração dos sedimentos suspensos, (kg/m ³ ou g/L).
C _{sw} :	Concentração de RDN adsorvida pelos sedimentos suspensos, (Bq/m ³).
C _{swi} :	Concentração dos RDN na água intersticial do solo, (Bq.m ⁻³).
C _T :	Concentração total de um contaminante, (M.L ⁻³).
C _{te} :	Concentração de RDN na água do estuário após atingir a mistura completa, (Bq/m ³).
C _{VA} :	Concentração dos RDN na vegetação, (Bq/kg).
C _w :	Concentração na água de irrigação, (Bq/L).
C _{wa} :	Concentração de rádio nos poros preenchidos com água, (Bq.m ⁻³).
C _{wm} :	Mistura parcial da concentração de RDN dissolvido a montante do ponto de descarga, (Bq/m ³).
C _{wp} :	Concentração na água subterrânea que aflui ao poço, (Bq/m [°]).
C _{ws} :	Concentração de RDN (dissolvidos) na água superficial, (Bq/m [°]).

Cut	Concentração total de RDN. (Bo/m ³).
D:	Coeficiente de difusão, $(m^2.s^{-1})$.
d:	Coeficiente de dispersão, (m ² .ano ⁻¹).
D _a :	Coeficiente de difusão nos poros preenchidos com ar, (m ² .s ⁻¹).
D _A :	Espessura do aquífero, (m).
D _{ar} :	Coeficiente de difusão no ar, (cm ² .s ⁻¹).
D _c :	Coeficiente de difusão na cobertura, $(m^2.s^{-1})$.
DC _{ing} :	Coeficiente de dose efectiva por ingestão, (µSv/Bq).
d _d :	Fluxo de deposição atmosférica, (Bq.m ⁻² .s ⁻¹).
D _f :	Factor de diluição, (-).
D _H :	Distância a percorrer na horizontal, (m).
D _{ing} :	Dose por ingestão, (μSv/ano).
D _q :	Quociente kg (massa seca da planta)/kg (massa húmida da planta), (-).
D _r :	Profundidade do rio, (m).
D _t :	Espessura da zona contaminada, (m).
D _V :	Profundidade a que se encontra o aquífero da zona contaminada, (m).
D _w :	Coeficiente de difusão nos poros preenchidos com água, (m ² .s ⁻¹).
E:	Coeficiente de emanação do radão, (-).
e:	Espessura da camada, (m).
E _a :	Coeficiente de emanação nos poros preenchidos com ar, (-).
ET _r :	Evapotranspitação, (L.m ⁻² .ano ⁻¹).
E _v :	Vazios no solo, (-).
E _w :	Coeficiente de emanação nos poros preenchidos com água, (-).
f:	Frequência do vento em cada direcção considerada, (-).
F:	Interceptação pela superfície da erva de pasto, (-).
f ₁ :	Fracção de absorção gastrointestinal, (-).
f _{ag} :	Fracção de intercepção da água de irrigação, (-).
f _{ar} :	Fracção de intercepção do ar, (-).
F _c :	Factor de correcção da lixiviação multifásica, (-).
f _c :	Fracção da cobertura que está danificada, (-).
f _{cm} :	% de finos.
f _d :	Fracção da água que se infiltra através da zona danificada da cobertura, (-).
f _f :	Fracção do composto na fase particulada, (-).
F _h :	Factor de conversão dos efeitos na saúde resultante da libertação cumulativa de RDN, (-).
f _i :	Fracção da água que se infiltra através da zona intacta da cobertura, (-).
F _m :	Factor de transferência pasto/leite, (Bq/L)/(Bq/d).
f _p :	Fracção do ano que os animais pastam ou permanecem no pasto, (-).
f _s :	Fracção da alimentação diária composta pela erva de pasto, (-).
FT:	Factor de transferência do solo para os tecidos da planta, Bq/kg planta (peso seco) por Bq/kg de solo (peso seco).
f _w :	Fracção do composto dissolvido na água, (-).
g:	Aceleração da gravidade, (m/s ²).
G₀:	Gravidade específica do solo seco, (-).
G _s :	Gravidade específica dos grãos do solo, (-).
G _w :	Gravidade específica da água, (-).
H:	Altura efectiva da libertação da fonte, (m).

h: Altura média respirável, (m).

H' _t	Efeitos radiológicos desprezando a dispersão no transporte subterrâneo, (-).
H _d :	Altura de mistura no exterior, (m).
H _t :	Efeitos radiológicos considerando a dispersão no transporte subterrâneo, (-).
I _{nk} :	Ingestão anual de actividade, (Bq/ano).
I _p :	Período de irrigação ou fracção do ano em que as plantas são irrigadas, (-).
l _r :	Velocidade de infiltração da água, (m.ano ⁻¹).
IR _r :	Fluxo de irrigação, (L.m ⁻² .d ⁻¹) ou (L.m ⁻² .ano ⁻¹).
I _{rw} :	Fluxo de transferência dos RDN pela água de irrigação, (Bq.m ⁻² .d ⁻¹).
I _t :	Actividade na barragem na fracção líquida, (Bq).
J:	Fluxo de radão que se liberta por difusão, (Bq.m ⁻² .s ⁻¹).
J _p :	Perda de carga unitária, (m ⁻¹).
J _t :	Fluxo de radão para a superfície sem cobertura, (Bq.m ⁻² .s ⁻¹).
k:	Constante de Boltzmann, (J/K).
K' _d :	Coeficiente de partição, (-).
k 11:	Perdas do compartimento 1, (d ⁻¹).
k ₁₂ :	Cinética de transferência do compartimento 1 para o compartimento 2, (d ⁻¹).
k ₁₃ :	Cinética de transferência do compartimento 1 para o compartimento 3, (d ⁻¹).
k ₂₁ :	Cinética de transferência do compartimento 2 para o compartimento 1, (d ⁻¹).
k ₂₂ :	Perdas do compartimento 2, (d ⁻¹).
k ₂₃ :	Cinética de transferência do compartimento 2 para o compartimento 3, (d ⁻¹).
k ₂₄ :	Cinética de transferência do compartimento 2 para o compartimento 4, (d ⁻¹).
k ₃₁ :	Cinética de equilíbrio raízes/solo, (d ⁻¹).
k ₃₂ :	Cinética de transferência do compartimento 3 para o compartimento 2, (d ⁻¹)
k ₃₃ :	Perdas do compartimento 3, (d ⁻¹).
k ₃₄ :	Cinética de transferência do compartimento 3 para o compartimento 4, (d ⁻¹).
k ₄₄ :	Perdas do compartimento 4, (d ⁻¹).
k ₄₅ :	Cinética de transferência do compartimento 4 para o compartimento 5, (d ⁻¹).
k ₄₇ :	Cinética de transferência do compartimento 4 para o compartimento 7, (d ⁻¹).
k ₅₄ :	Cinética de transferência do compartimento 5 para o compartimento 4, (d ⁻¹).
k ₅₅ :	Perdas no compartimento 5, (d ⁻¹).
k ₅₆ :	Cinética de transferência do compartimento 5 para o compartimento 6, (d ⁻¹).
k ₆₆ :	Perdas no compartimento 6, (d ⁻¹).
k ₇₇ :	Perdas no compartimento 7, (d ⁻¹).
k _a :	Coeficiente de distribuição no aquífero ou zona saturada, (ml.g ⁻¹).
k _c :	Permeabilidade da cobertura, (cm.s ⁻¹).
k _d :	Coeficiente de distribuição entre a água e os sedimentos, (L/kg).
k _{d1} :	Coeficiente de distribuição no solo superficial, (ml.g ⁻¹).
k _{d2} :	Coeficiente de distribuição no resíduo ou zona contaminada, (ml.g ⁻¹).
k _{d3} :	Coeficiente de distribuição na formação encaixante ou zona insaturada, (cm ³ .g ⁻¹).
k _o :	Função de Bessel modificada de 2.º tipo de ordem 0.
k _{sat} :	Condutividade hidráulica em condições saturadas, (m.ano ⁻¹).
k _{sw} :	Coeficiente de partilha sedimentos-água, (L/kg).
K _{wa} :	Coeficiente de partilha água - ar para o radão (0,26 Bq/m ³ em água por Bq/m ³ de ar).
L:	Comprimento de cada lado do octógono, (m).
L _d :	Altura da camada atmosférica estável ou de inversão térmica, (m).
L _i :	Fracção de lixiviação anual do RDN i, (ano ⁻¹).

 L_{ig} : Fracção da água de irrigação com origem na água subterrânea, (-)

- Lu: Distância à qual os RDN são transportados para montante do ponto de descarga, (m).
- L_x: Extensão do local contaminado, (m).
- L_y: Distância longitudinal necessária para atingir a mistura completa lateral, (m).
- L_z: Distância longitudinal necessária para atingir a mistura completa vertical, (m).
- m: Fracção de saturação, (-).
- M: Humidade, (% do peso seco).
- M: Quociente entre o período da maré e o tempo necessário para ocorrer a mistura, (-).
- M_A : Massa molar da espécie A, (g.mol⁻¹).
- M_B : Massa molar da espécie B, (g.mol⁻¹).
- M_i: Massa de cada radionuclídeo no equilíbrio, (g/t).
- M_{LF}: Factor de carregamento de massa da partícula, (kg de solo/kg de massa planta)
- M_p: Biomassa das raízes, (kg/m²).
- m_p: Produção de leite (por exemplo, em cada ordenha), (L).
- $M_r(O)$: Massa atómica do oxigénio, (16 g.mol⁻¹).
- $M_r(U)$: Massa atómica do urânio, (238 g.mol⁻¹).
- mr: Humidade residual do solo, (-).
- M_s : Massa de solo no compartimento 1, (kg/m²).
- M_t : Massa total (g) de ²³⁸U em 1000 g de concentrado (U₃O₈).
- N: Número de (átomos/t).
- N_c : Razão, (Bq.mol⁻¹).
- N_d: Número de decaimento, (-).
- N_q: Quociente entre o coeficiente de dispersão longitudinal do estuário e o coeficiente de dispersão do rio, (-).
- N_v : Conversão de unidades, (ml/m³ = 1).
- P: Pressão, (atm).
- Pe: Número de Peclet, (-).
- Pee: Factor de correcção da mistura parcial para os estuários, (-).
- P_r: Precipitação, (L.m⁻².ano⁻¹ ou m.ano⁻¹).
- Prr: Factor de correcção da mistura parcial para os rios, (-).
- Q: Potência da fonte (débito de libertação da fonte), (Bq.s⁻¹ ou Bq.ano⁻¹).
- Q'i: Descarga total anual do RDN i, inclui todos os processos de libertação, (Bq/s).
- Q₀: Libertação anual de RDN através da lixiviação pela água da precipitação, (Bq.ano⁻¹).
- Q_{Cmj}: Quociente entre a concentração a montante e a jusante do ponto de libertação, (-).
- Q_e: Caudal do efluente, (m³/s).
- Q_f: Ingestão diária de erva de pasto, (kg/d).
- Q_i: Descarga média anual do RDN i, (Bq/s).
- q_L : Fluxo de entrada ou de saída no lago, (m³/s).
- Q_{Iv}: Actividade lixiviada no ano anterior no resíduo já existente, (Bq.ano⁻¹).
- Q_p: Débito de RDN transportados até ao poço, (Bq.ano⁻¹).
- q_r: Caudal do rio (caudal mínimo verificado no período de 30 anos), (m³/s).
- \underline{q}_{r} : Caudal médio anual do rio, (m³/s).
- Q_s: Caudal anual dos cursos de água, (m³.ano⁻¹).
- Q_{un}: Actividade total não lixiviada, (Bq).
- q_w: Descarga média da maré, (m³/s).
- R: Actividade específica do rádio no solo, (Bq.kg⁻¹).
- R_d: Débito de deposição por via seca, (Bq.m⁻².s⁻¹).
- R_e: Factor de ressuspensão, (m⁻¹)
- R_{e1}: Factor de ressuspensão de Anspaugh, (m⁻¹).

D.	Factor de ressuerenção de Anspeugh (m^{-1})
R _{e2} .	Factor de retardação na herizontal ()
	Paia hidróuliaa (m)
м _h .	Raio filuladico, (iii).
п. р.	Escorrência anual $(1 m^2 ana^{-1})$
П.	Esconencia anual, (L.Mano).
κ _s .	
I _S .	ninitração na linina de agua, (ni/d).
K _{sf} :	Remoção anual de RDN por escorrencia supericiai, (Bq.ano).
кі. р.	Factor de conecção para a densidade das faizes, (-).
κ _ν .	Factor de l'etardação na vertical para o nuclideo I, (-).
R _w :	Fluxo de deposição por via numida, (Bq.m. s.).
5:	Grau de saturação, (%).
S _c :	Profundidade da camada de solo superficial contaminada, (m).
S _d :	Profundidade das raizes, (m).
S _e :	Solubilidade do elemento, (g.ml ⁻).
S _i :	Concentração media do radionuclideo principal i na zona contaminada disponível para lixiviação no tempo t,
0	(Bq.kg ⁻).
S _{ig} :	Fracção da agua de irrigação com origem na agua superficiai, (-).
S₅: -	Concentração massica do contaminante na fase solida, (-).
1:	Temperatura, (K).
t:	
t _{1/2b} :	Semi-vida biologica, (d).
1 ₁ :	Teor medio do concentrado, (kg $U_3 O_8 / t$).
1 ₂ :	Teor medio de ²⁰⁰ U no concentrado, (kg U / t).
1 ₃ :	Teor do minerio, (% de $U_3 U_8$).
Г _b :	l'emperatura de ebuliçao, (K).
t _b :	Deposição a longo-prazo e acumulação, (d).
t _c :	Intervalo de tempo entre a colheita e o consumo, (d).
l _d : 	Semi-vida fisica do RDN, (d).
l _e :	l'empo de acumulação efectiva, (s).
t _e :	l empo de exposição da planta a contaminação, (d).
t _h :	l'empo transiente na horizontal, (ano).
1 _i : 	Periodo ou semi-vida do radionuclideo i, (s).
l _{life} :	Esperança media de via do herbivoro, (d).
І _р : —	Periodo da mare, (s).
l _r :	Factor de translocação, (-).
t _t :	Tempo de transporte dos RDN até ao poço, (ano).
t _v :	Tempo transiente na vertical, (ano).
T _{wa} :	Débito de transferência de radão da água para o ar, (Bq.m [°] .s ⁺).
u∗:	Velocidade de corte, (m/s).
U _e :	Velocidade máxima de fluxo vazante, (m/s).
U _f :	Velocidade máxima de fluxo enchente, (m/s).
U _t :	Velocidade média da maré, (m/s).
V:	Velocidade da água, vertical ou horizontal (V_V ou V_H), (m.ano ⁻¹).
V' _B :	Volume molal, (cm ³ .mol ⁻¹).
V _d :	Velocidade de deposição, (m.s ⁻¹).
V _g :	Velocidade gravitacional, (m.s ⁻ ').

- V_s: Unidade de volume de sólidos. V_T: Volume da amostra, (cm³). V_v: Unidade de volume de vazios. V_w: Unidade de volume de água. W: Humidade, % em peso da amostra húmida. W₄: Débito total de água que aflui ao poço, (m³.ano⁻¹). Wa: Infiltração anual através da zona intacta da cobertura, (L.m⁻².ano⁻¹). Peso do herbívoro ou massa da vaca, (kg). W_h: Quantidade de água que se infiltra na barragem de estéreis, (L.ano⁻¹). Winf: W_{rf}: Débito água em escorrência anual, (L.ano⁻¹). Ws: Unidade de massa de sólidos, (g.cm⁻³). Infiltração anual através da zona danificada da cobertura, (L.m⁻².ano⁻¹). W_{ss}: W_T: Peso da amostra, (g). W_v: Volume total de água na zona contaminada no corrente ano, (m³). W_w: Unidade de massa de água. Concentração do RDN (i) no ar a x (m) na direcção do vento, a y (m) na direcção contrária ao do vento e a z X_(i): (m) acima do solo, (Bq.m⁻³). x: Distância entre a libertação e o ponto de exposição, (m). Concentração média no ar ao nível médio do solo, (Bq.m⁻³). X_{ar}:
 - X_{at}: Concentração do RDN entre a superfície do solo e a camada atmosférica estável, (Bq.m⁻³).
 - x_c: Espessura da camada de cobertura, (m).

V∟:

Volume do lago, (m³).

- x_t : Espessura dos estéreis ou do resíduo, (m).
- y: Distância horizontal transversal a partir do centro da pluma, (m).
- Y: Biomassa existente na altura da colheita, (kg/m²).
- y₀: Distância lateral do ponto de libertação de RDN, medido a partir da margem do rio, (m).
- y_s: Valor de y na fronteira de cada sector, (m).
- z: Elevação relativamente à superfície do solo, (m).

ABREVIATURAS

BCF:	Factor de bioacumulação (Bioaccumulation Factor)
BV :	Barragem Velha de rejeitados da mina da Urgeiriça
CEC:	Cation Exchange Capacity
DOE:	United States Department of Energy
DPRSN:	Departamento de Protecção Radiológica e Segurança Nuclear
EDM:	Empresa de Desenvolvimento Mineiro
ENU:	Empresa Nacional de Urânio
EPA:	Environmental Protection Agency
EXMIN:	Companhia de Indústria e Serviços, S. A.
FT:	Factor de Transferência
GIT:	Sistema Gastrointestinal (Gastrointestinal System)
GMS:	Groundwater Modeling System
IAEA:	International Atomic Energy Agency
IAF:	Indice de Absorção Foliar
ICRP:	International Commission on Radiological Protection
IGeoE:	Instituto Geográfico do Exército
IRSN:	Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire
ITE:	Institute for Transuranium Elements
ITN:	Instituto Tecnológico e Nuclear
IUR:	International Union of Radioecology
NCRP:	National Commission on Radiological Protection
NRC:	National Research Council
NUREG:	U.S. Nuclear Regulatory Commission
ORNL:	Oak Ridge National Laboratory
RDN:	Radionuclídeos
RIT:	Radiocesium Interception Potential
SIG:	Sistemas de Informação Geográfica
TNT:	Trinitrotolueno
WHO:	World Health Organization
WISE:	World Information Service on Energy
Índice

Volume I

Capítulo	1 – Introdução	1
1.1	Motivação	
1.2	Contexto	4
1.3	Objectivos	
1.4	Contribuições originais	
1.5	Estrutura	9
Capítulo	2 - Repartição da actividade pelos radioisótopos	11
2.1 In	trodução	13
2.2	Descrição conceptual do modelo de repartição da actividade	14
2.2.1	O equilíbrio radioactivo	15
2.2.2	Radionuclídeos com ocorrência natural	17
2.3	Descrição quantitativa do modelo de repartição da actividade	19
2.4	Exploração do modelo da repartição da actividade	
2.4.1	Minério com teor 1 kg U_3O_8 /t lixiviado a 90 %	
2.4.2	Minério com teor 0,2 kg U_3O_8/t lixiviado a 100 %	24
2.4.3	Minério com teor 0,2 kg U_3O_8/t lixiviado a 0 %	
2.5	Conclusões	
Capítulo	3 - Modelo de libertação e de dispersão no ar	27
3.1 In	trodução	
3.2	Modelo de libertação do radão por difusão	
3.2.1	Descrição conceptual do modelo de libertação do radão	
3.2.2	Descrição matemática do modelo de libertação	
3.2.3	Medições do coeficiente de difusão do radão	40
3.2.4	Estimativa dos coeficientes de difusão	41
3.2.5	Outros factores que influenciam a migração do radão	
3.3	Modelo de transporte e dispersão de radão	
3.3.1	Descrição conceptual do modelo de transporte e de dispersão	
3.3.2	Descrição matemática do modelo de transporte e dispersão	
3.3.3	A depleção da pluma	

3	.4 (O modelo matemático adaptado ao caso de estudo	62
	3.4.1	Definição da forma da área	62
	3.4.2	Implementação do modelo de cálculo da concentração de radão num	local de
		deposição de resíduos	64
	3.4.3	Parâmetros de dispersão para uma fonte pontual	66
3.	.5 /	A exploração do modelo	68
	3.5.1	Dados de entrada	70
	3.5.2	1.º Caso de exploração	71
	3.5.3	2.º Caso de exploração	77
	3.5.4	3.º Caso de exploração	86
	3.5.5	4.º Caso de exploração	91
3	.6 (Conclusões	134
_			
Cap	oítulo	4 - Modelo de libertação e de transporte na água	137
4	.1	Introdução	
4	.2	Trajectórias gerais de exposição	
4	.3	Os estéreis da beneficiação de urânio	
4	.4	Descrição do modelo de transporte hidrológico	
	4.4.1	O modelo conceptual	
	4.4.2	O modelo matemático	151
4	.5	Exploração do modelo de libertação e transporte na água	175
	4.5.1	Condições do modelo	176
	4.5.2	Dados de entrada	177
	4.5.3	Fases da exploração do modelo de libertação e transporte na água	180
	4.5.4	Exploração do modelo para o Pb e para o Po	189
	4.5.5	Discussão	196
4.	.6	Aplicação do modelo à zona mineira da Urgeiriça	200
	4.6.1	Dados de entrada referentes à zona mineira da Urgeiriça	200
	4.6.2	A amostragem do local	202
	4.6.3	A análise dos dados	210
	4.6.4	Exploração do modelo para cada ponto de água isolado	219
	4.6.5	A exploração do modelo para os radionuclídeos: Ra, Pb, Th e U _{total}	231
	4.6.6	Discussão dos resultados	235
4	.7	Conclusões	
^ -	- (4 1		~ =-
Cap	DITUIO	5 - Transporte e transferencia no meio aquatico	
5.1	Int	troducão	
5	.2	Representação matemática do transporte em águas superficiais	259
0			200

5.2.1	Rios	
5.2.2	Estuários	
5.2.3	Águas costeiras	
5.2.4	Lagos e reservatórios	
5.3	Modelo de transporte e de transferência no meio aquático	
5.3.1	Introdução	
5.3.2	Descrição conceptual dos objectivos do modelo	
5.3.3	Descrição matemática do modelo	
5.3.4	Conclusões	
5.4	Exploração do modelo	
5.4.1	Exploração do modelo para um caso teórico	
5.4.2	Exploração do modelo para um estudo de caso - Urgeiriça	
5.5	Discussão dos resultados e conclusões	

Volume II

Capítulo	6 - Modelo de transferência para a vegetação	353
6.1	Introdução	
6.2	O solo e a vegetação - conceitos e generalidades	
6.2.1	Composição e propriedades do solo	
6.2.2	Os metais tóxicos no solo	
6.2.3	Nutrientes vegetais	
6.2.4	Transporte e absorção dos nutrientes no solo	
6.2.5	Estrutura e crescimento das plantas	
6.3	A fito-reabilitação	
6.3.1	Fito-estabilização	
6.3.2	Fito-extracção	
6.3.3	Rizofiltração	
6.3.4	Fito-volatilização	
6.3.5	Fito-degradação	
6.3.6	A aplicabilidade da fito-remediação	
6.4	Absorção e translocação dos metais nas plantas	
6.5	As contaminações radioactivas e a fito-remediação	
6.6	O caso particular do urânio no solo	
6.7	Factores de transferência solo-planta	
6.7.1	Factores que afectam a transferência solo-planta	
6.7.2	A estimativa dos factores de transferência	

6.7.3		O coeficiente de distribuição, K _d	
6.7.4	4	Factores de transferência solo-planta para o rádio, urânio e chumbo	393
6.8	O ca	so da Urgeiriça	399
6.9	Om	odelo de transferência para a vegetação	408
6.9.	1	O modelo conceptual de transferência para a vegetação	409
6.9.2	2	Os parâmetros envolvidos no modelo de transferência para a vegetação	410
6.9.3	3	Descrição matemática do modelo de transferência para a vegetação	417
6.9.4	4	O transporte ambiental dos RDN	422
6.9.	5	Transferência dos RDN para a vegetação (deposição e irrigação)	425
6.10	Expl	oração do modelo de transferência para a vegetação	430
6.10).1	Exploração do modelo para um caso teórico	431
6.10).2	Cálculo dos factores de transferência	439
6.10).3	Cálculo do FT a partir da concentração no resíduo estimada teoricamente	442
6.10).4	Cálculo do FT a partir da concentração no resíduo determinada	
		experimentalmente	447
6.10).5	Exploração do modelo para a vegetação existente sobre o local de deposiç	ão de
		resíduos radioactivos	460
6.10).6	Cálculo da actividade na área envolvente à da deposição do resíduo	468
6.11	Disc	ussão dos resultados e conclusões	478
Capítulo	o 7 - N	Iodelo de transferência na cadeia alimentar	485
• aprior			
7.1	Introc	lução	487
7.2	Os ra	dionuclídeos principais	489
7.3	Desc	rição do modelo	493
7.3.	1 0	modelo conceptual	493
7.3.2	2 P	ressupostos e simplificações	499
7.3.3	3 D	escrição do modelo matemático	500
7.3.4	4 C	onclusões	511
7.4	Explo	ração do modelo	512
7.4.	1 Pa	arâmetros independentes dos radionuclídeos	512
7.4.2	2 Pa	arâmetros dependentes dos radionuclídeos	513
7.4.3	3 E	xploração do modelo para o rádio (²²⁶ Ra)	515
7.4.4	4 E	xploração do modelo para o urânio (²³⁵ U e ²³⁸ U)	542
7.4.4 7.4.9	4 E: 5 E:	xploração do modelo para o urânio (²³⁵ U e ²³⁸ U) xploração do modelo para o chumbo (²¹⁰ Pb)	542 561
7.4.4 7.4.8 7.4.9	4 E: 5 E: 6 E:	xploração do modelo para o urânio (²³⁵ U e ²³⁸ U) xploração do modelo para o chumbo (²¹⁰ Pb) xploração do modelo para o polónio (²¹⁰ Po)	542 561 573

Capítulo	8 - Conclusões	. 613
8.1	Conclusões	. 615
8.2	Perspectivas futuras	629
Capítulo	9 - Bibliografia	. 631
Anexos .		649
Anexo A:	Medições efectuadas no local em estudo (dados cedidos pela EXMIN)	651
Anexo B:	Dedução do factor de correcção para o transporte subterrâneo	663
Anexo C:	Libertação contínua e variável no tempo	671
Anexo D:	Tabelas de apoio ao modelo de transporte de RDN na água superficial	697
Anexo E:	Representação da exploração do modelo de transporte e transferência no	
	meio aquático em diferentes condições	703
Anexo F:	Classificação e definição dos tecidos vegetais	711
Anexo G:	O modelo matemático da transferência solo/planta	717
Anexo H:	Transferência dos RDN para a vegetação (alguns conceitos)	725
Anexo I:	Transferência dos RDN para a vegetação pela deposição (caso particular	
	dos actinídeos)	743

	dos actinídeos)	743
Anexo J:	Artigos publicados no âmbito deste trabalho	761

"Hoje em dia, o ser humano apenas tem ante si três grandes problemas que foram ironicamente provocados por ele próprio: a super povoação, o desaparecimento dos recursos naturais e a destruição do meio ambiente. Triunfar sobre estes problemas, visto sermos nós a sua causa, deveria ser a nossa mais profunda motivação."

Jacques Yves Cousteau (1910-1997)

Capítulo 1

Introdução

1.1 Motivação

O encerramento de grande parte da indústria extractiva nacional nos últimos anos, e em particular, o cenário pouco favorável que se avizinhava para a exploração de urânio e que culminou com o seu termo em 2001, levou a uma tomada de consciência do legado resultante de décadas de exploração de materiais radioactivos. O tratamento do minério de urânio originou só na zona da Urgeiriça (Região Centro de Portugal, Viseu) uma acumulação em escombreiras de cerca de 4 milhões de toneladas de resíduos sólidos, provenientes da actividade mineira nesta região, e que ocupam uma área de cerca de 11 hectares. O aglomerado populacional mais próximo encontra-se a uma distância inferior a 2 km além da área ser circundada por pequenas quintas e casas de campo.

Por não ter viabilidade económica e devido a problemas ambientais foi decidida a dissolução da empresa responsável pela exploração, Empresa Nacional de Urânio (ENU). Segundo a lei portuguesa, a empresa detentora da exploração é também responsável pelos resíduos produzidos, armazenados e/ou espalhados no ambiente tais como efluentes ácidos e radioactivos bem como pelas operações de remediação ambiental após o encerramento das operações mineiras. Com a dissolução da ENU seguiu-se uma fase de liquidação cujo processo viria a durar até 2004. A responsabilidade ambiental, nomeadamente, das operações de reabilitação das antigas áreas mineiras, transitou para a Empresa de Desenvolvimento Mineiro (EDM), detentora de 89 % da ENU.

Com o encerramento das explorações de urânio, a grande preocupação passou a ser o impacte ambiental e, consequentemente na saúde pública, não só da enorme quantidade de resíduos sólidos existentes próximos dos locais de exploração e muito próximos de aglomerados populacionais, mas também das águas residuais, da emissão de radão, da contaminação de águas subterrâneas e/ou das águas superficiais, da erosão e da contaminação do solo.

Durante muito tempo os riscos associados com a exploração de urânio eram maioritariamente dirigidos aos trabalhadores das minas. Só muito recentemente (meados dos anos 70), o impacte na saúde pública e no ambiente de forma geral teve a atenção merecida. Isto presumivelmente devido à evidência de que a acção humana, incluindo a mineração, estaria a causar alterações ambientais visíveis e significativas. No caso do ambiente natural, as preocupações reflectem-se no risco de degradação ambiental, na contaminação, na redução da viabilidade e da biodiversidade dos ecossistemas, no impacte visual, na recuperação do solo e no futuro uso do mesmo.

Neste contexto, inicia-se em 2000 a 1.ª fase do Estudo Director das Áreas de Minérios Radioactivos (2000-2001) a que se seguiria a 2.ª fase em 2002 (2002-2003), levado a cabo pela EXMIN – Companhia de Indústria e Serviços, S.A., uma sociedade detida pela EDM que teve por objectivo a avaliação da contaminação, qualitativa e quantitativa, da degradação e monitorização das explorações de urânio inactivas ou abandonadas com a posterior reabilitação dos locais afectados.

A escolha do tema surgiu no seguimento da abordagem feita na tese de Mestrado da autora, uma primeira abordagem necessária mas incompleta, baseada no estado da arte da avaliação da exposição a resíduos mineiros radioactivos e também pela relevância do tema face ao previsível fecho das minas de urânio no período em que se iniciou este trabalho, do conhecimento em geral dos problemas ambientais já existentes e que se agravariam caso a dissolução da ENU se traduzisse no abandono destas áreas.

1.2 Contexto

Os elevados volumes de minério e de soluções manipuladas numa operação de exploração e de tratamento de minérios radioactivos gera débitos enormes de subprodutos não utilizáveis, resíduos sólidos, efluentes líquidos e/ou gasosos, geralmente depositados a céu aberto. Os resíduos sólidos podem ser, sob a acção dos agentes atmosféricos e da actividade microbiana, uma fonte permanente de geração, durante anos, ou dezenas de anos, de produtos nocivos e o impacte resultante não se restringe apenas ao conteúdo radioactivo destes materiais. Outros contaminantes presentes podem interagir com os radionuclídeos no ambiente e aumentar a sua biodisponibilidade. Neste sentido, o potencial impacte no ambiente provocado pelos resíduos radioactivos é diferente do potencial impacte dos resíduos

resultantes da exploração de outros minérios, embora os resultados possam ser semelhantes. Será até um pouco imprudente considerar apenas o risco radiológico destes materiais, devendo também incluir a toxicidade química dos radionuclídeos (RDN), dos metais pesados, dos compostos metálicos e não metálicos.

No passado e um pouco por todo o mundo os resíduos radioactivos da exploração e do processo de beneficiação do urânio foram usados indiscriminadamente como materiais de construção para estradas, escolas, casas e outros edifícios. Talvez esta tenha sido a consequência mais directa da exposição aos estéreis da exploração e da mineração de urânio como fonte de radiação suficiente para causar impacte na saúde humana.

Devido à diferente forma e constituição dos materiais gerados (sólidos, líquidos, gases, drenagem ácida, etc.) o confinamento de todas as componentes envolvidas é difícil e custoso. É também cada vez mais evidente que a tecnologia existente para a reabilitação destes locais não é completamente segura e eterna, exigindo antes uma manutenção e vigilância constantes. A alternativa mais comum é assegurar que o débito de libertação dos contaminantes e os seus débitos de transporte no ambiente permaneçam suficientemente baixos para que a probabilidade de um impacte negativo ocorrer se encontre dentro de limites seguros.

Não há soluções satisfatórias e comprovadas para muitos dos problemas que surgem com o encerramento das explorações de urânio. Estamos a apenas 15 anos de soluções implementadas em países como a República Checa, Alemanha e Estados Unidos da América em que o legado da exploração de urânio é assustador. Em muitos países com uma escala de exploração menor ainda se está a tentar compreender ou avaliar a dimensão do legado resultante.

O confinamento destes materiais terá como missão prevenir a dispersão dos seus constituintes químicos e radioactivos em concentrações que excedam os limites aceitáveis. Este armazenamento constituirá sempre uma potencial fonte de contaminação do meio circundante, pois estará sujeito à acção contínua dos agentes erosivos externos, nomeadamente dos vectores ambientais, água, vento e processos biológicos que tenderão a provocar a dispersão destes materiais no ambiente, tornando-os disponíveis para a exposição em diversos meios ambientais: solo, águas subterrâneas e superficiais, vegetação e atmosfera respirável.

Neste contexto, a avaliação de risco ao qual o presente e o futuro ambiente estão expostos é primordial para formular uma solução e aplicar um regime regulador

apropriado de forma a garantir que este risco está abaixo do limite legalmente permissível. Para tal, é necessário identificar e definir quantitativamente os processos que podem levar à libertação dos radionuclídeos e ou influenciar os débitos segundo os quais a libertação e o transporte ocorrem. Segue-se a estimativa das consequências para os humanos e para o ambiente resultantes dos processos identificados e quantificados através do desenvolvimento de um sistema integrado definido por modelos matemáticos que simulem o transporte dos radionuclídeos até ao homem e estimem as doses radiológicas resultantes. O primeiro passo consiste na estimativa do débito de libertação e posteriormente da concentração de cada radionuclídeo nos vários compartimentos do ambiente. O segundo passo consiste na estimativa no débito de transporte dos radionuclídeos libertados entre os diversos compartimentos do ambiente e os seres-humanos. O terceiro passo envolve uma estimativa da interacção dos radionuclídeos com os seres-humanos, resultando na estimativa da dose individual e ou para a população mediante um cenário de exposição predefinido. Por último, é necessário verificar se a situação é aceitável do ponto de vista radiológico comparando os resultados das doses com o intervalo de valores aceitáveis. Este procedimento vai constituir a avaliação da exposição que se pode sintetizar da seguinte forma: i) caracterização do local e do receptor; ii) identificação das trajectórias de exposição e iii) quantificação da exposição.

A avaliação da exposição é traduzida por modelos matemáticos em que os processos químicos, físicos e biológicos são representados por funções matemáticas e os diversos meios são os seus domínios representados por compartimentos. Isto implica ter um conhecimento detalhado dos mecanismos envolvidos para formular as expressões matemáticas que descrevam os principais processos. Os modelos matemáticos são uma simplificação de um sistema muito mais complexo sendo, por isso, específicos de local para local dependendo das condições climáticas, da geologia e da topografia da área, e de um vasto número de outras condições locais específicas.

Concluímos que existe, de facto, conhecimento científico e técnico para a avaliação da exposição gerada pelo legado resultante da intensa exploração de materiais radioactivos. No entanto, deve ter-se em atenção que a avaliação completa e compreensível de um dado local pode ser limitada por imposições orçamentais restringindo a obtenção de dados essenciais. Aqui a modelagem matemática assume um papel principal na simulação do transporte dos contaminantes, na simulação da sua transferência e previsão do seu destino final permitindo avaliar o actual estado de

contaminação e também as consequências das várias opções de remediação para o local.

Muitos trabalhos de investigação têm sido desenvolvidos relativamente aos riscos ambientais dos resíduos de alto nível ou resultantes da produção de energia nuclear em detrimento dos resíduos de baixo nível, nos quais se enquadram os resíduos da exploração e mineração do urânio. Existe de facto, bastante bibliografia directamente relacionada com a contaminação do meio ambiental, principalmente dos solos e das águas, mas tendo como objectivo principal a exposição humana. No entanto, existe pouca informação no que se refere à quantificação do impacte para a biosfera causado pelos resíduos da exploração e da mineração de urânio apesar de se verificar a deterioração dos ambientes aquáticos na vizinhança de algumas minas de urânio; a absorção e concentração dos radionuclídeos nas plantas e nos animais, constituindo um risco para a vegetação bem como para os animais no topo da cadeia alimentar, incluindo os seres-humanos e também um perigo potencial para a saúde dos indivíduos, comunidades e ecossistemas, e a acumulação dos radionuclídeos nos sedimentos com a sua transferência na biota aquática a longo prazo. Estes factores desencadearam o interesse na investigação dos impactes biológicos nos sereshumanos resultantes das etapas da produção de combustível nuclear. Permanece, no entanto, uma lacuna neste domínio relativamente à exposição dos ecossistemas com os consequentes impactes na biodiversidade.

O recurso à modelagem integrada da distribuição intercompartimental dos radionuclídeos veio trazer uma nova dimensão ao tratamento deste tema pela avaliação da exposição nos vários compartimentos e subcompartimentos ambientais e humanos estimando a concentração da actividade do radionuclídeo mais relevante em cada compartimento à medida que a transferência se processa entre os compartimentos. Os resultados vão ter um contributo muito valioso quer na fase de caracterização do local quer na fase de avaliação da eficácia do confinamento dos estéreis de urânio ou na avaliação das consequências das várias opções de remediação para o local, não só no presente, mas também a longo prazo.

Apesar de os modelos matemáticos compartimentais serem o resultado de simplificações da realidade e da assumpção de pressupostos o que os torna incompletos, a sua utilidade tem sido reconhecida em várias áreas sendo muitas vezes a única ferramenta disponível para estudar o problema que se tenta compreender.

1.3 Objectivos

O presente trabalho teve como objectivo principal o desenvolvimento de modelos matemáticos fenomenológicos da distribuição intercompartimental aplicáveis às substâncias radioactivas. Os modelos matemáticos traduzem para cada compartimento, um modelo de exposição directa a uma barragem de estéreis resultantes do tratamento hidromineralúrgico do minério de urânio (fonte primária) e indirecta pelas fontes secundárias geradas por estes.

Naturalmente para se atingir o objectivo foi necessário delinear outros objectivos intermédios que passam forçosamente pela compreensão dos processos envolvidos neste estudo, nomeadamente:

 - a concepção e desenvolvimento de modelos de: i) equilíbrio dinâmico entre os radioisótopos; ii) mecanismos de libertação; iii) mecanismos de transporte e iv) mecanismos de transferência entre fases;

 - a escolha de um local para a recolha de dados e a calibração dos modelos anteriores com os dados obtidos. Tomou-se como local de estudo as barragens de estéreis da Urgeiriça com a colaboração da EXMIN – Companhia de Indústria e Serviços, S.A., para a disponibilização dos dados referentes a este local;

o desenvolvimento dos modelos fenomenológicos calibrados: i)
 estabelecimento de procedimentos matemáticos conceptuais; ii) a sua tradução
 algorítmica e iii) o desenvolvimento dos programas de simulação;

- a modelagem da exposição com a exploração dos modelos parcelares e a interacção entre a experiência real e os modelos conceptuais.

1.4 Contribuições originais

A modelagem da distribuição intercompartimental de compostos tóxicos é um tema relativamente recente, em fase de plena expansão, especialmente no domínio dos pesticidas e de compostos orgânicos de origem petrolífera. No domínio das substâncias radioactivas têm sido utilizadas metodologias idênticas, talvez pela complexidade resultante da coexistência de uma pequena quantidade apreciável de descendentes radioactivos, não sendo possível tratar a repartição isótopo a isótopo, tal como se faz com os compostos químicos ordinários. Podemos considerar que a importância deste trabalho se revelou em duas vertentes:

- De ordem teórica, pois no tema da modelagem da dispersão ambiental de contaminantes radioactivos de baixa actividade existe ainda uma enorme margem de investigação;

- De ordem prática, devido à existência no nosso país de alguns milhões de toneladas de resíduos de minérios radioactivos armazenados ao ar livre sendo necessário dispor das ferramentas analíticas propostas neste trabalho para fundamentar o estabelecimento de prioridades de intervenção.

1.5 Estrutura

O presente trabalho está organizado em 8 capítulos dividido em dois volumes. No segundo volume, além dos capítulos 6, 7 e 8, incluem-se os anexos referidos ao longo do texto com o conjunto de informações úteis para o esclarecimento de dúvidas que a leitura do presente trabalho possa suscitar. Anexamos ainda alguns dos artigos publicados que já resultaram deste trabalho.

Cada capítulo corresponde a um modelo de exposição inserido num dado compartimento. Apresenta-se o modelo conceptual, o modelo matemático e a exploração do modelo. Para todos os modelos foi feita pelo menos uma exploração.

Os parâmetros necessários foram adoptados de diferentes fontes: alguns foram adoptados de medições referentes a um local contaminado em particular; a barragem de estéreis de urânio da Urgeiriça; outros foram adoptados de dados publicados na bibliografia referentes a este local. Os parâmetros para os quais não foi possível obter valores de medições locais foram estimados a partir dos dados disponíveis.

O capítulo dois descreve o modelo para a distribuição da actividade pelos radioisótopos através de um algoritmo baseado no equilíbrio dinâmico entre os radionuclídeos presentes nos resíduos. Faz-se uma descrição do problema radiológico relativamente ao urânio e apresentam-se as séries do urânio ²³⁸U e ²³⁵U com as sucessivas e respectivas desintegrações radioactivas.

No capítulo três descreve-se o modelo atmosférico constituído pelo modelo de libertação do radão da matriz do resíduo e o modelo de transporte e dispersão atmosférica dos contaminantes libertados da fonte em cada direcção do vento ou na direcção dominante. Descrevem-se e quantificam-se matematicamente os mecanismos de libertação, de transporte ou transferência e de dispersão dos

radionuclídeos. A exploração do modelo foi feita apenas para o radão, o único gás presente nos resíduos.

No capítulo quatro descreve-se o transporte hidrológico constituído pelo modelo de libertação e pelo modelo de transporte. Também se consideram as escorrências superficiais como um mecanismo de libertação devido à força física provocada pelas águas superficiais e também como um mecanismo de transporte. Descrevem-se e quantificam-se matematicamente os mecanismos de libertação, de transporte ou transferência no solo e nas águas subterrâneas.

O capítulo cinco descreve o modelo de exposição da biota aquática nas águas superficiais. É feita uma descrição dos processos de transporte ou transferência nas águas superficiais: rios, estuários, águas costeiras e lagos.

No capítulo seis descreve-se o modelo de transferência para a vegetação. Caracterizam-se os grandes intervenientes neste processo: solo, vegetação e os radionuclídeos mais relevantes na transferência solo/planta. Faz-se ainda uma descrição da fito-reabilitação. Descrevem-se e quantificam-se matematicamente os mecanismos de transferência, de transporte, de absorção e de translocação dos radionuclídeos na vegetação.

O modelo apresentado no capítulo sete completa o modelo anterior com a simulação da transferência dos radionuclídeos na cadeia alimentar através da ingestão da vegetação contaminada pelos animais. Descrevem-se e quantificam-se matematicamente os mecanismos de transferência, de transporte, de absorção e de translocação dos radionuclídeos no solo, na vegetação, nos animais de pasto e no homem. Este modelo é, sem dúvida, o mais completo, mas também o mais complexo, conceptualmente, pois pode incluir cinco, sete ou catorze compartimentos, verificando-se, no entanto, uma lacuna nos parâmetros necessários para efectuar a sua verificação.

Por último, o capítulo oito está dividido em duas partes. Na primeira apresentam-se as principais conclusões deste trabalho e na segunda parte apresentam-se algumas perspectivas para futuros temas de investigação que surgiram no decorrer do presente trabalho.

"Reencontrar o caminho, os caminhos...; Propomos muitos trajectos e convidamos cada um a percorrê-los. Na densidade de páginas cheias de tesouros para descobrir, pode ser que nos consigamos reencontrar. Traçados os caminhos, urge percorrê-los..."

José Rui Teixeira in: "Cadernos 1"

Capítulo 2

Repartição da actividade nos radioisótopos

Resumo

O modelo de repartição da actividade pelos radioisótopos foi desenvolvido com base no equilíbrio radioactivo entre os vários radioisótopos presentes nos resíduos resultantes da actividade mineira e depositados em escombreiras. No minério de urânio, os radioisótopos encontram-se em equilíbrio radioactivo relativamente ao elemento do topo da série, ²³⁸U e ²³⁵U, reunidos no mesmo mineral (urânio), sendo o equilíbrio quebrado pelo tratamento hidromineralúrgico do minério. No equilíbrio, as quantidades dos diferentes radioisótopos são inversamente proporcionais às suas constantes de desintegração. A libertação do radão, por decaimento radioactivo do rádio presente nos estéreis constitui um processo físico que rompe o equilíbrio, passando a estar presente um estado de desequilíbrio. A partir das duas séries da cadeia do urânio, a do urânio-rádio, ²³⁸U (4n+2), e a série do actíneo, ²³⁵U (4n+3), com as sucessivas e respectivas desintegrações radioactivas, foi possível obter as expressões que permitem calcular a distribuição da actividade por cada um dos radioisótopos, em cada uma das séries. Fez-se a exploração do modelo para dois casos variando o teor do minério do qual teoricamente resultaram os resíduos da escombreira bem como o rendimento do processo de beneficiação a que o minério foi submetido. Como resultado, obteve-se a estimativa da concentração da actividade de cada radioisótopo no resíduo.

2.1 Introdução

O urânio, tal como aparece na natureza corresponde a uma mistura dos isótopos ²³⁸U, na percentagem de 99,28 %, ²³⁵U, na proporção de 0,71 % e ²³⁴U na proporção de 0,0054 %. Isto significa que o isótopo de ²³⁸U compreende cerca de 99 % de todo o urânio natural, devendo-se a restante parte aos isótopos ²³⁵U e ²³⁴U. Em muitos casos, a natural abundância foi alterada devido a um enriquecimento antropogénico do urânio ou devido a processos geológicos. A concentração média mundial de urânio no solo é de 40 Bq/kg (Vandehove, 2002). Os períodos de semi-vida para os três isótopos são, respectivamente: 4,51 x 10⁹; 7,1 x 10⁸ e 2,48 x 10⁵ anos,

ordenando os isótopos por ordem decrescente do número de massa. Estes isótopos são extraídos com rendimento variável durante a lixiviação. Os radioelementos que constituem as famílias do ²³⁸U e do ²³⁵U não são todos dissolvidos, sendo repartidos pelos diferentes resíduos sólidos resultantes das operações de beneficiação dos minérios. Estes resíduos sólidos podem ser, sob a acção dos agentes atmosféricos e da actividade microbiana, uma fonte permanente de geração durante anos, ou dezenas de anos, de produtos nocivos.

No minério, os radionuclídeos encontram-se em equilíbrio radioactivo relativamente ao elemento do topo da série sendo este equilíbrio rompido pelo tratamento hidromineralúrgico. O desequilíbrio resultante pode ser originado por processos físicos e químicos, como por exemplo a libertação do ²²²Rn ou as diferenças de solubilidade nos descendentes de ²³⁸U. Na série do ²³⁸U os quatro primeiros radionuclídeos são facilmente solúveis (²³⁸U, ²³⁴Th, ²³⁴Pa, ²³⁴U). O ²³⁰Th e os seus nove descendentes radioactivos mantêm-se em equilíbrio nos resíduos sólidos, representando cerca de 71 % da actividade inicial da série do ²³⁸U no minério. Na série do ²³⁵U, este radionuclídeo é lixiviado juntamente com o ²³¹Th mas o ²³¹Pa e os seus oito descendentes não são dissolvidos, representando 9/11 (cerca de 81,2 %) da actividade inicial da série do ²³⁵U.

2.2 Descrição conceptual do modelo de repartição da actividade

O decaimento radioactivo obedece a uma cinética de 1.º ordem o que significa que a velocidade de decaimento é proporcional ao número de átomos da substância radioactiva existente nesse instante. Se N (t) for o número de átomos existentes numa amostra radioactiva no instante t, o número de átomos desintegrados por unidade de tempo é dado por (Friedlander et al., 1981):

$$-\frac{dN}{dt} = \lambda N$$
 (2-1)

a constante λ é designada pela constante do decaimento radioactivo ou constante de desintegração, típica de cada radionuclídeo, sendo independente do seu estado físico ou da sua combinação química. Por integração da expressão (2-1), resulta:

 $N = N_0 e^{-\lambda t}$ (2-2)

Página 14

sendo N_0 o número de átomos presentes no instante t = 0.

A velocidade de desintegração não é, em geral, medida directamente, mas através de uma grandeza que lhe é proporcional, a actividade, A, que se relaciona com a velocidade de decaimento através de uma constante C, denominada coeficiente de detecção. Neste seguimento, a expressão (2-2) passa a ter a forma:

$$A_{i} = A_{0}e^{-\lambda t}$$
 (2-3)

em que A_i representa a actividade do radionuclídeo i.

A velocidade do decaimento radioactivo pode ser expressa em termos de período ou semi-vida, como sendo o intervalo de tempo necessário para que o número de átomos seja reduzido a metade por desintegração nuclear. Fazendo N = N_0 / 2 na forma integral da lei de desintegração e designando por T o período, obtemos:

$$-\frac{N_0}{2} = N_0 e^{-\lambda T}$$
 (2-4)

e λ .T = ln(2) = 0,693. Portanto, o intervalo de tempo necessário para que o número de átomos se reduza a metade é constante. Como T se exprime em unidades de tempo, a constante λ exprime-se em unidades inversas (T⁻¹).

A vida média do radionuclídeo (τ) representa o tempo médio de existência de um nuclídeo antes de sofrer uma desintegração. Será assim, a soma da vida de todos os átomos a dividir pelo número inicial de átomos, N₀, e pode ser descrito pela expressão:

$$\tau = \frac{1}{\lambda}$$
(2-5)

Ou seja, a vida média de um nuclídeo corresponde ao inverso da constante radioactiva e vem expressa em unidades de tempo (T).

2.2.1 O equilíbrio radioactivo

Quando a velocidade de formação de um elemento, a partir do seu progenitor, for igual à velocidade a que se está a desintegrar para formar o membro seguinte da série, a combinação diz-se em equilíbrio. A velocidade de desintegração é uma característica de cada isótopo e é usualmente referida em termos de período de semivida. O equilíbrio radioactivo implica que os nuclídeos presentes se desintegrem com a mesma velocidade: o número de átomos que se desintegram por unidade de tempo é o mesmo para todos os nuclídeos. O equilíbrio radioactivo pode ser descrito matematicamente da seguinte forma:

$$\frac{dN_1}{dt} = \frac{dN_2}{dt} = \frac{dN_3}{dt} = \dots$$
 (2-6)

onde N₁, N₂, N₃ representam o número de átomos dos diferentes radionuclídeos presentes no equilíbrio.

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1$$
 (2-7)

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2$$
(2-8)

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3$$
(2-9)

Das expressões (2-1) e (2-6) deduz-se que no estado estacionário,

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \lambda_3 N_3 = \dots$$
 (2-10)

No equilíbrio radioactivo, as quantidades dos diferentes nuclídeos presentes são inversamente proporcionais às suas constantes de desintegração, ou directamente proporcionais aos seus períodos de vida média ou de semidesintegração. Quanto maior for a vida média dos nuclídeos, mais lentamente se alcançará um equilíbrio com todos os seus descendentes.

O decaimento radioactivo do isótopo de urânio inicia-se no topo da sucessão da cadeia do nuclídeo, em que cada elemento se transforma espontaneamente, por desintegração radioactiva, no nuclídeo seguinte da série até atingir um elemento estável. O primeiro membro, ²³⁸U, é denominado o progenitor, os membros intermédios (16 nuclídeos metálicos pesados) são denominados descendentes e o membro final estável, denomina-se o produto de decaimento. Estas transformações espontâneas envolvem a emissão, a partir do núcleo, de partículas α , β , ou raios γ . Dos três tipos de radiação, as partículas α são as menos penetrantes. Não são perigosas a menos que a substância emissora (o emissor de partículas α) tenha entrado no organismo. As partículas β também apresentam baixo poder penetrante e

são de insignificante preocupação a menos que entrem no corpo humano. Os raios γ , assim como os raios X, são radiações electromagnéticas intensamente energéticas.

O equilíbrio radioactivo pode ser rompido naturalmente por processos físicos ou químicos, originando o desequilíbrio radioactivo. Um exemplo de um processo físico que origina o desequilíbrio é a libertação do radão (²²²Rn), o único gás descendente radioactivo do ²³⁸U. Os desequilíbrios com origem química ocorrem devido à diferença de solubilidade. Por exemplo, o ²³⁴Th e o ²²⁶Ra, descendentes do ²³⁸U são relativamente insolúveis. O ²³⁸U é relativamente solúvel e portanto pode ser lixiviado, transportado e precipitado noutro local.

2.2.2 Radionuclídeos com ocorrência natural

Quase todos os isótopos radioactivos naturais pesados podem ser agrupados apenas em 3 famílias: a do ²³⁸U, a do ²³⁵U e a do ²³²Th. Os últimos descendentes estáveis são 3 isótopos do chumbo, respectivamente o ²⁰⁶Pb, ²⁰⁷Pb, ²⁰⁸Pb. Todos os elementos com número atómico superior ao do chumbo são radioactivos.

O ²³⁸U e o ²³²Th estão presentes na crusta terrestre em concentrações médias de 4,2 a 12,5 mg/kg, respectivamente, correspondendo a 50 Bq/kg para cada um dos radionuclídeos (Vandehove, 2002).

As famílias ²³⁸U e ²³⁵U estão, geralmente, reunidas no mesmo mineral, do que resulta uma maior radioactividade no mineral bruto do que no concentrado. Qualquer uma destas famílias radioactivas, com todos os seus elementos, emite muito mais radiações que o seu progenitor principal.

2.2.2.1 A série do urânio-rádio ²³⁸U (4n+2)

A série do urânio ²³⁸U, representada na Tabela 2-1, tem início com o isótopo principal do urânio, o ²³⁸U. Este isótopo decai por emissão α formando o ²³⁴Th. Este decai por emissão β originando o ²³⁴Pa. O tório, Th, é muito instável e tem um período de semi-vida de 24 dias e o protactínio, Pa, é ainda mais estável com um período de 1,14 minutos. Logo de seguida têm lugar cinco emissões α sucessivas, o ²¹⁴Pb que por novas transformações α e β vai dar origem ao ²⁰⁶Pb, que é um isótopo estável do chumbo e o termo final da série.

Alguns nuclídeos podem decompor-se por dois processos, $\alpha \in \beta$, como é o caso do ²¹⁴Bi no qual ocorre uma desintegração ramificada: 99,96 % dos átomos decaem emitindo radiações β originando o ²¹⁴Po, que por sua vez se desintegra originando o ²¹⁰Pb. No segundo ramo, 0,04 % dos átomos decaem para ²¹⁰Tl por emissão de partículas α e este último desintegra-se por uma emissão β originando também o ²¹⁰Pb.

Nuclídeo	Emissor	Período	Unidade	Constante de decaimento, λ	Vida Média, τ
²³⁸ U	α	4,50 x 10 ⁹	anos	1,54 x 10 ⁻¹⁰	6,51 x 10 ⁹
²³⁴ Th	β	24,1	dias	2,88 x 10 ⁻²	3,48 x 10
²³⁴ Pa	β	1,14	minutos	0,61	1,60
²³⁴ U	α	2,69 x 10 ⁵	anos	2,58 x 10 ⁻⁶	3,88 x 10 ⁵
²³⁰ Th	α	8,30 x 10 ⁴	anos	8,35 x 10 ⁻⁶	1,20 x 10 ⁵
²²⁶ Ra	α	1,62 x 10 ³	anos	4,28 x 10 ⁻⁴	2,34x 10 ³
²²² Rn	α	3,82	dias	0,18	5,51
²¹⁸ Po	α	3,05	minutos	0,23	4,40
²¹⁴ Pb	α	26,8	minutos	2,59 x 10 ⁻²	3,87 x 10
²¹⁴ Bi	α, β	19,7	minutos	3,52 x 10 ⁻²	2,84 x 10
²¹⁰ TI	β	1,32	minutos	0,52	1,90
²¹⁴ Po	α	1,50x10 ⁻⁴	segundos	4,62 x 10 ³	2,16 x 10 ⁻⁴
²¹⁰ Pb	β	22,0	anos	3,15 x 10 ⁻²	3,17 x 10
²¹⁰ Bi	β	5,00	dias	0,14	7,20
²¹⁰ Po	α	140	dias	4,95 x 10 ⁻³	2,02 x 10 ²
²⁰⁶ Pb					

Tabela 2-1: Série do 238U.

Fonte: Fiúza (2003).

Depois de catorze desintegrações sucessivas α ou β , obtém-se um isótopo estável, ²⁰⁶Pb. É desta forma que os átomos de cada um dos isótopos muito instáveis se renovam sem esgotar à medida que desaparecem, graças à fonte de urânio de longo período (o período de semi-vida do ²³⁸U é de 4,5 x 10¹⁰ anos) que continuamente lhes dá vida. O ²³⁸U é verdadeiramente o pai de todos esses isótopos instáveis, que sendo filhos uns dos outros, constituem uma família ou série radioactiva. Estes átomos existiram misturados com o urânio e são constantemente reformados. O seu número mantém-se constante, segundo o equilíbrio radioactivo.

No caso dos resíduos sólidos provenientes da mineração e do tratamento do minério de urânio, os isótopos presentes são: ²³⁸U, ²³⁰Th, ²²⁶Ra, ²²²Rn, ²¹⁰Pb, ²¹⁰Po. Destes isótopos, os de maior preocupação ambiental são o ²²²Rn no estado gasoso, produzido continuamente em larga escala, emana para a atmosfera e decai originando uma série de descendentes radioactivos (²¹⁰Pb e ²¹⁰Po) que podem ser dispersos pelos agentes atmosféricos, e o ²²⁶Ra na água que pode ser disperso pelo transporte hidrológico. Em condições climáticas favoráveis (como é o caso de um clima seco), os

isótopos de vida longa, nomeadamente o ²³⁰Th, poderão ter um contributo para a exposição radiológica ambiental através do arrastamento de poeiras.

2.2.2.2 A série do actíneo ²³⁵U (4n+3)

A família do ²³⁵U está representada na Tabela 2-2 com as sucessivas etapas da desintegração.

Nuclídeo	Emissor	Período	Unidades	Constante de decaimento, λ	Vida média, τ
²³⁵ U	α	7,10 x 10 ⁸	anos	9,76 x 10 ⁻¹⁰	1,02 x 10 ⁹
²³¹ Th	β	2,56 x 10	horas	2,71 x 10 ⁻²	3,69 x 10
²³¹ Pa	α	3,43 x 10 ⁴	anos	2,02 x 10 ⁻⁵	4,95 x 10 ³
²²⁷ Ac	α, β	2,18 x 10	anos	3,18 x 10 ⁻²	3,14 x 10
²²³ Fr	β	2,1 x 10	minutos	3,30 x 10 ⁻²	3,03 x 10
²²⁷ Th	α	1,87 x 10	dias	3,71 x 10 ⁻²	2,70 x 10
²²³ Ra	α	1,14 x 10	dias	6,08 x 10 ⁻²	1,64 x 10
²¹⁹ Rn	α	3,92	segundos	0,18	5,66
²¹⁵ Po	α	1,83 x 10 ⁻³	segundos	3,79 x 10 ²	0,00
²¹¹ Pb	β	3,61 x 10	minutos	1,92 x 10 ⁻²	5,21 x 10
²¹¹ Bi	α, β	2,16	horas	0,32	3,12
²⁰⁷ TI	β	4,79	minutos	0,14	6,61
²¹¹ Po	α	0,52	segundos	1,33	0,75
²⁰⁷ Pb					

Tabela 2-2: Série do ²³⁵U.

Fonte: Fiúza (2003).

2.3 Descrição quantitativa do modelo de repartição da actividade

A sequência de equações que a seguir se apresentam constituem o modelo ou o algoritmo para determinar a repartição da actividade pelos radionuclídeos dos resíduos da extracção e beneficiação do minério de urânio, e que vai ser o ponto de partida para o cálculo do fluxo de ²²²Rn libertado para a atmosfera através do conteúdo (actividade) em rádio no resíduo.

Para a série do ²³⁸U, a distribuição dos radionuclídeos nos resíduos encontrase descrita na Tabela 2-1. Apenas os quatro primeiros radionuclídeos (²³⁸U, ²³⁴Th, ²³⁴Pa, ²³⁴U) da cadeia do ²³⁸U são solúveis, encontrando-se os restantes radionuclídeos nos resíduos sólidos.

As expressões seguintes descrevem as etapas de dedução das expressões matemáticas do algoritmo para estimar a distribuição da actividade pelos radioisótopos.

Considerando que T_1 (kg/t) representa o teor médio de concentrado de óxido de urânio (U₃O₈) no minério de urânio, o teor de ²³⁸U (kg U/t) no concentrado U₃O₈, T_2 , pode ser calculado pela expressão:

$$T_{2} = T_{1} \frac{3 M_{r}(U)}{3 M_{r}(U) + 8 M_{r}(O)}$$
(2-11)

 T_1 : teor médio do concentrado, (kg U_3O_8/t)

T₂: teor médio de ²³⁸U no concentrado, (kg U/t)

M_r (U): massa atómica do urânio, (238 g/mol)

M_r(O): massa atómica do oxigénio, (16 g/mol).

Sendo o minério de urânio constituído por 99,28 % de 238 U e 0,71 % 235 U então o concentrado U₃O₈ é composto por:

$$U_{3}O_{8} = 99,28^{238}U + 0,71^{235}U$$
 (2-12)

A massa de 238 U, M_t, em 1 kg ou em 1000 g de concentrado de U₃O₈ é:

$$M_t = 1000 \times 0.9928 \times T_2$$
 (2-13)

 M_t : massa total (g) de ²³⁸U em 1000 g de concentrado U_3O_8

0,9928: proporção de ²³⁸U presente em U₃O₈

O número de átomos de ²³⁸U presentes em 1 kg de minério é dado por:

$$N(^{238}U) = \frac{M_{t}(^{238}U)}{M_{r}(U) \ 6,05523 \ x \ 10^{23}}$$
(2-14)

em que 6,05523 x 10²³ representa o número de Avogadro.

O número de átomos dos restantes radionuclídeos, presentes em 1 kg de minério, é calculado pela equação do equilíbrio radioactivo:

$$\lambda_1 \mathbf{N}_1 = \lambda_2 \mathbf{N}_2 \qquad \mathbf{N}_2 = \frac{\lambda_1 \mathbf{N}_1}{\lambda_2}$$
(2-15)

ou seja,

 $\lambda_{_{238}_{U}}N_{_{238}_{U}} = \lambda N \tag{2-16}$

$$N = \frac{\lambda_{238_{U}} N_{238_{U}}}{\lambda}$$
(2-17)

Página 20

A actividade resultante é dada por:

$$A_1 = \lambda N \tag{2-18}$$

$$A_2 = \frac{A_1}{1000}$$
(2-19)

A₁: actividade no minério, (Bq/t)
A₂: actividade no minério, (Bq/kg)
λ: constante de decaimento radioactivo, (s⁻¹)
N: número de átomos/t.

Se o rendimento da lixiviação for 90 %, significa que no resíduo apenas se encontram cerca de 10 % dos radionuclídeos solúveis (²³⁸U, ²³⁴Th, ²³⁴Pa, ²³⁴U). A actividade para estes radionuclídeos (solúveis) é dada por:

$$A_3 = \frac{(100 - \Re)}{100} A_2$$
 (2-20)

em que A_3 corresponde à actividade nos resíduos sólidos (radionuclídeos solúveis), (Bq/kg) e \Re representa o rendimento da lixiviação expresso em percentagem. A actividade correspondente aos radionuclídeos insolúveis e que portanto não foram lixiviados, é representada por A_2 . A massa de cada radionuclídeo (i) no equilíbrio é estimada por:

$$M_{i} = \frac{A_{i} / \lambda}{6,022523 \times 10^{23} M_{r} \times 1000}$$
(2-21)

em que o parâmetro A_i (Bq/kg) é igual a A_3 para os radionuclídeos solúveis ou igual a A_2 para os radionuclídeos nos resíduos sólidos e M_i (g/t) representa a massa de cada radionuclídeo no equilíbrio. A actividade resultante expressa em nCi/kg é estimada por:

$$A_{i}(nCi/kg) = \frac{A_{i}(Bq/kg)}{37(Bq/nCi)}$$
(2-22)

Por sua vez, a actividade expressa em Bq é dada por:

$$A_{i}(Bq) = \frac{A_{i}(Bq/kg) \times M_{i}(g/ton)}{1000}$$
(2-23)

Se o rendimento da lixiviação for 100 %, a actividade resultante dos radionuclídeos solúveis será zero, uma vez que foram completamente removidos do resíduo. Para os restantes radionuclídeos, a actividade será igual a A₂.

Para a cadeia do ²³⁵U a distribuição dos radionuclídeos no resíduo encontra-se na Tabela 2-2. Deve referir-se que apenas os dois primeiros radionuclídeos (²³⁵U, ²³¹Th) são solúveis. Para calcular a repartição dos radionuclídeos da cadeia do ²³⁵U as equações usadas anteriormente para a série do ²³⁸U são válidas também para este radionuclídeo, com excepção do cálculo da massa de ²³⁵U em 1 kg de minério, uma vez que este apenas contém 0,71 % de ²³⁵U. A expressão a usar para estimar M_t é dada por:

$$M_{t} = 1000 \times 0,0071 \times T_{2}$$
 (2-24)

2.4 Exploração do modelo da repartição da actividade

Na exploração deste modelo podemos fazer variar o rendimento de lixiviação e o teor do minério. No presente estudo simulou-se a repartição da actividade para rendimentos de lixiviação de 90 % e de 100 %. Consideraram-se dois minérios com diferentes teores médios do concentrado de urânio, nomeadamente, 1 kg U₃O₈/t e 0,2 kg U₃O₈/t. Calculou-se ainda repartição das actividades num minério com um teor de 0,2 kg U₃O₈/t para um rendimento de lixiviação igual a zero ou seja, um minério bruto que não foi lixiviado.

2.4.1 Minério com teor 1 kg U₃O₈/t lixiviado a 90 %

Para a primeira simulação consideramos um minério com teor médio (T₁) igual a 1 kg U₃O₈/t e um rendimento da lixiviação (\Re) igual a 90 %. O teor médio de urânio no concentrado (T₂) calculado pela expressão (2-13) é igual a 0,847981 kg U/t. A massa (M_t) de ²³⁸U em 1 kg de concentrado de U₃O₈, calculada pela expressão (2-13) é igual a 841,9 g/t. Os restantes parâmetros calculados para a série ²³⁸U, encontramse na Tabela 2-3.

Nuclídeo	λ (s ⁻¹)	N.º átomos/t	Actividade no minério (Bg/kg)	Actividade (Ba/ka) %=90 %	Massa no equilíbrio (g/t)	Actividade (Bq)
²³⁸ U	4,87 x 10 ⁻¹⁸	2,13 x 10 ²⁴	10375	1037.5	84,19	87,35
²³⁴ Th	3,33 x 10 ⁻⁷	3,12 x 10 ¹³	10375	1037,5	1,21 x 10 ⁻⁹	1,26 x 10 ⁻⁹
²³⁴ Pa	1,01 x 10 ⁻²	1,02 x 10 ⁹	10375	1037,5	3,98 x 10 ⁻¹⁴	4,13 x 10 ⁻¹⁴
²³⁴ U	8,17 x 10 ⁻¹⁴	1,27 x 10 ²⁰	10375	1037,5	4,94 x 10 ⁻³	5,12 x 10 ⁻³
²³⁰ Th	2,65 x 10 ⁻¹³	3,92 x 10 ¹⁹	10375	10375	1,50 x 10 ⁻²	1,55 x 10 ⁻¹
²²⁶ Ra	1,36 x 10 ⁻¹¹	7,65 x 10 ¹⁷	10375	10375	2,87 x 10 ⁻⁴	2,98 x 10 ⁻³
²²² Rn	2,10 x 10 ⁻⁶	4,94 x 10 ¹²	10375	10375	1,82 x 10 ⁻⁹	1,89 x 10 ⁻⁸
²¹⁸ Po	3,79 x 10 ⁻³	2,74 x 10 ⁹	10375	10375	9,92 x 10 ⁻¹³	1,03 x 10 ⁻¹¹
²¹⁴ Pb	4,31 x 10 ⁻⁴	2,41 x 10 ¹⁰	10375	10375	8,55 x 10 ⁻¹²	8,87 x 10 ⁻¹¹
²¹⁴ Bi	5,86 x 10 ⁻⁴	1,77 x 10 ¹⁰	10375	10375	6,29 x 10 ⁻¹²	6,52 x 10 ⁻¹¹
²¹⁰ TI	8,75 x 10 ⁻³	1,19 x 10 ⁹	10375	10375	4,13 x 10 ⁻¹³	4,29 x 10 ⁻¹²
²¹⁴ Po	1,46 x 10 ⁻⁴	7,09 x 10 ¹⁰	10375	10375	2,52 x 10 ⁻¹¹	2,61 x 10 ⁻¹⁰
²¹⁰ Pb	9,98 x 10 ⁻¹⁰	1,04 x 10 ¹⁶	10375	10375	3,62 x 10 ⁻⁶	3,76 x 10 ⁻⁵
²¹⁰ Bi	1,60 x 10 ⁻⁶	6,47 x 10 ¹²	10375	10375	2,25 x 10 ⁻⁸	2,34 x 10 ⁻⁸
²¹⁰ Po	5,73 x 10 ⁻⁸	1,81 x 10 ¹⁴	10375	10375	6,31 x 10 ⁻⁸	6,55 x 10 ⁻⁷
²⁰⁶ Pb						
			155 627	118 277		87,51

Tabela 2-3: Repartição da actividade pelos radioisótopos da série do 238 U (\Re = 90 %).

A actividade mássica total presente num minério com teor de 1 kg/t é de 155 627 Bq/kg, com origem na série do ²³⁸U. Por outro lado, a actividade presente nos resíduos sólidos, admitindo que o rendimento da lixiviação foi de 90 %, é de 118 277 Bq/kg. Para a série do ²³⁵U, a massa (M_t) de ²³⁵U em 1 kg de concentrado de U₃O₈ pode ser calculada pela expressão 2-13, substituindo a proporção do ²³⁸U (99,28 %) no minério pela proporção do ²³⁵U (0,71 %) e obtém-se M_t igual a 6 g/t. Os restantes parâmetros calculados para a série do ²³⁵U estão representados na Tabela 2-4.

Nuclídeo	λ (s ⁻¹)	N.º	Actividade no	Actividade	Massa no	Actividade
		átomos/t	minério (Bq/kg)	(Bq/kg) ℜ=90 %	equilíbrio (g/t)	(Bq)
²³⁵ U	3,09 x 10 ⁻¹⁷	1,52 x 10 ²²	471	47	0,59	2,80 x 10 ⁻²
²³¹ Th	7,52 x 10 ⁻⁶	6,27 x 10 ¹⁰	471	47	2,4 x 10 ⁻¹²	$1,13 \times 10^{-13}$
²³¹ Pa	6,40x 10 ⁻¹³	7,36 x 10 ¹⁷	471	471	2,82 x 10 ⁻⁴	$1,33 \times 10^{-4}$
²²⁷ Ac	1,01 x 10 ⁻⁹	4,67 x 10 ¹⁴	471	471	1,76 x 10 ⁻⁷	8,30 x 10 ⁻⁸
²²³ Fr	5,5 x 10 ⁻⁴	8,57x 10 ⁸	471	471	3,17 x 10 ⁻¹³	1,49 x 10 ⁻¹³
²²⁷ Th	4,29 x 10 ⁻⁷	1,10 x10 ¹²	471	471	4,14 x 10 ⁻¹⁰	1,95 x 10 ⁻¹⁰
²²³ Ra	7,05 x 10 ⁻⁷	6,70 x 10 ¹¹	471	471	2,48 x 10 ⁻¹⁰	1.17×10^{-10}
²¹⁹ Rn	1,77 x 10 ⁻¹	2,67 x 10 ⁶	471	471	9,60 x 10 ⁻¹⁶	4,53 x 10 ⁻¹⁶
²¹⁵ Po	3,79 x 10 ²	1,24 x 10 ⁰³	471	471	4,44 x 10 ⁻¹⁹	2.09 x 10 ⁻¹⁹
²¹¹ Pb	3,20 x 10 ⁻⁴	1,47 x 10 ⁹	471	471	5,16 x 10 ⁻¹³	2.43 x 10 ⁻¹³
²¹¹ Bi	8,91 x 10 ⁻⁵	5,29 x 10 ⁹	471	471	1,85 x 10 ⁻¹²	8.73 x 10 ⁻¹³
²⁰⁷ TI	2,41 x 10 ⁻³	1,95 x 10 ⁸	471	471	6,72 x 10 ⁻¹⁴	3.16 x 10 ⁻¹⁴
²¹¹ Po	$1,33 \times 10^{0}$	3,54 x 10 ⁵	471	471	1,24 x 10 ⁻¹⁶	5.84 x 10 ⁻¹⁷
²⁰⁷ Pb						-,-
			6126	5278		2,81 x 10 ⁻²

Tabela 2-4: Repartição da actividade pelos radioisótopos da série do 235 U (\Re = 90 %).

Para esta série (²³⁵U), a actividade mássica total presente num minério com teor de 1 kg/t é de 6126 Bq/kg e a actividade presente nos resíduos sólidos, admitindo um rendimento da lixiviação de 90 %, é de 5278 Bq/kg.

Para um minério com um teor de 1 kg/t, a actividade mássica total originada pelas duas séries radioactivas, ²³⁸U e ²³⁵U, é igual 161 753 Bq/kg. Nos resíduos sólidos a actividade mássica total é igual a 123 555 Bq/kg ou 3339,65 nCi/kg.

2.4.2 Minério com teor 0,2 kg U_3O_8/t lixiviado a 100 %

Para a segunda simulação consideramos um minério com teor médio (T₁) igual a 0,2 kg U₃O₈/t e um rendimento (\Re) da lixiviação igual a 100 %. O teor médio de urânio no concentrado (T₂) calculado pela expressão (2-13) é igual a 0,169596 (kg U/t). A massa de ²³⁵U (M_t) em 1 kg de concentrado de U₃O₈ calculada pela expressão (2-14) é de 168,4 g/t. Os restantes parâmetros calculados para a série radioactiva do ²³⁸U estão representados na Tabela 2-5.

Nuclídeo	N.º	Actividade no Actividade nos resíduos		Massa no	Actividade
	átomos/t	minério (Bq/kg)	sólidos (Bq/kg) ℜ=100 %	equilíbrio (g/t)	(Bq)
²³⁸ U	4,26 x 10 ²³	2075	0	168,38	0
²³⁴ Th	6,23 x 10 ¹²	2075	0	2,42 x 10 ⁻⁹	0
²³⁴ Pa	2,05 x 10 ⁸	2075	0	7,96 x 10 ⁻¹⁴	0
²³⁴ U	2,54 x 10 ¹⁹	2075	0	9,87 x 10 ⁻³	0
²³⁰ Th	7,84 x 10 ¹⁸	2075	2075	2,99 x 10 ⁻³	6,21 x 10 ⁻³
²²⁶ Ra	1,53 x 10 ¹⁷	2075	2075	5,74 x 10 ⁻⁵	1,19 x 10 ⁻⁴
²²² Rn	9,88 x 10 ¹¹	2075	2075	3,64 x 10 ⁻¹⁰	7,56 x 10 ⁻¹⁰
²¹⁸ Po	5,48 x 10 ⁸	2075	2075	1,98 x 10 ⁻¹³	4,11 x 10 ⁻¹³
²¹⁴ Pb	4,81 x 10 ⁹	2075	2075	1,71 x 10 ⁻¹²	3,55 x 10 ⁻¹²
²¹⁴ Bi	3,54 x 10 ⁹	2075	2075	1,26 x 10 ⁻¹²	2,61 x 10 ⁻¹²
²¹⁰ TI	2,37 x 10 ⁸	2075	2075	8,27 x 10 ⁻¹⁴	1,72 x 10 ⁻¹³
²¹⁴ Po	1,42 x 10 ¹⁰	2075	2075	5,04 x 10 ⁻¹²	1,04 x 10 ⁻¹¹
²¹⁰ Pb	2,08 x 10 ¹⁵	2075	2075	7,25 x 10 ⁻⁷	1,50 x 10 ⁻⁶
²¹⁰ Bi	1,29 x 10 ¹²	2075	2075	4,51 x 10 ⁻¹⁰	9,36 x 10 ⁻¹⁰
²¹⁰ Po	3,62 x 10 ¹³	2075	2075	1,26 x 10 ⁻⁸	2,62 x 10 ⁻⁸
²⁰⁶ Pb					
		31 125	22 825		6,33 x 10 ⁻³

Tabela 2-5: Repartição da actividade pelos radioisótopos da série do 238 U (\Re = 100 %).

A actividade mássica total presente no minério com um teor de 0,2 kg/t é de 31 125 Bq/kg, com origem na série do ²³⁸U. A actividade mássica total presente nos resíduos sólidos, para um rendimento de lixiviação igual a 100 %, é de 22 825 Bq/kg. Para a série do ²³⁵U, a estimativa dos restantes parâmetros encontra-se representada na Tabela 2-6.

			F	r	r
Nuclídeo	N.º	Actividade no	Actividade nos resíduos	Massa no equilíbrio	Actividade
	átomos/t	minério (Bq/kg)	sólidos (Bq/kg) ℜ=100 %	(g/t)	(Bq)
²³⁵ U	3,05 x 10 ²¹	94	0	1,19	0
²³¹ Th	1,25 x 10 ¹⁰	94	0	4,81 x 10 ⁻¹²	0
²³¹ Pa	1,47 x 10 ¹⁷	94	94	5,65 x 10 ⁻⁵	5,32 x 10 ⁻⁶
²²⁷ Ac	9,34 x 10 ¹³	94	94	3,52 x 10 ⁻⁸	3,32 x 10 ⁻⁹
²²³ Fr	1,71 x 10 ⁸	94	94	6,34 x 10 ⁻¹⁴	5,98 x 10 ⁻¹⁵
²²⁷ Th	2,20 x 10 ¹¹	94	94	8,28 x 10 ⁻¹¹	7,80 x 10 ⁻¹²
²²³ Ra	1,34 x 10 ¹¹	94	94	4,96 x 10 ⁻¹¹	4,67 x 10 ⁻¹²
²¹⁹ Rn	5,33 x 10 ⁵	94	94	1,94 x 10 ⁻¹⁶	1,81 x 10 ⁻¹⁷
²¹⁵ Po	2,49 x 10 ⁰²	94	94	8,88 x 10 ⁻²⁰	8,37 x 10 ⁻²¹
²¹¹ Pb	2,95 x 10 ⁸	94	94	1,03 x 10 ⁻¹³	9,73 x 10 ⁻¹⁵
²¹¹ Bi	1,06 x 10 ⁹	94	94	3,07 x 10 ⁻¹³	3,49 x 10 ⁻¹⁴
²⁰⁷ TI	3,91 x 10 ⁷	94	94	1,34 x 10 ⁻¹⁴	1,27 x 10 ⁻¹⁵
²¹¹ Po	$7,07 \times 10^4$	94	94	2,48 x 10 ⁻¹⁷	2,33 x 10 ⁻¹⁸
²⁰⁷ Pb					-
		1225	1037		5,32 x 10 ⁻⁶

Tabela 2-6: Repartição da actividade pelos radioisótopos da série do 235 U (\Re = 100 %).

Para esta série (²³⁵U), um minério com um teor de 0,2 kg/t apresenta uma actividade mássica total de 1225 Bq/kg e os resíduos sólidos apresentam uma actividade mássica de 1037 Bq/kg. A actividade total no minério das duas séries, ²³⁸U e ²³⁵U, é de 32 350 Bq/kg. Nos resíduos sólidos, a actividade total é de 23 862 Bq/kg ou 645,02 nCi/kg.

2.4.3 Minério com teor 0,2 kg U₃O₈/t lixiviado a 0 %

A Tabela 2-7 seguinte resume a repartição dos radionuclídeos para as duas cadeias (²³⁸U e ²³⁵U), resultante de um minério com teor de 0,2 kg/t sem ser lixiviado.

Nuclídeo	Actividade	Massa no	Actividade	Nuclídeo	Actividade	Massa no	Actividade
	(Bq/kg)	equilíbrio (g/t)	(Bq)		(Bq/kg)	equilíbrio (g/t)	(Bq)
²³⁸ U	2075	168,38	349,38	²³⁵ U	94	1,19	0,11
²³⁴ Th	2075	2,42 x 10 ⁻⁹	5,03 x 10 ⁻⁹	²³¹ Th	94	4,81 x 10 ⁻¹²	4,53 x 10 ⁻¹³
²³⁴ Pa	2075	7,96 x 10 ⁻¹⁴	1,65 x 10 ⁻¹³	²³¹ Pa	94	5,65 x 10 ⁻⁵	5,32 x 10 ⁻⁶
²³⁴ U	2075	9,87 x 10 ⁻³	2,05 x 10 ⁻²	²²⁷ Ac	94	3,52 x 10 ⁻⁸	3,32 x 10 ⁻⁹
²³⁰ Th	2075	2,99 x 10 ⁻³	6,21 x 10 ⁻³	²²³ Fr	94	6,34 x 10 ⁻¹⁴	5,98 x 10 ⁻¹⁵
²²⁶ Ra	2075	5,74 x 10 ⁻⁵	1,19 x 10 ⁻⁴	²²⁷ Th	94	8,28 x 10 ⁻¹¹	$7,80 \times 10^{-12}$
²²² Rn	2075	3,64 x 10 ⁻¹⁰	7,56 x 10 ⁻¹⁰	²²³ Ra	94	4,96 x 10 ⁻¹¹	4,67 x 10 ⁻¹²
²¹⁸ Po	2075	1,98 x 10 ⁻¹³	4,11 x 10 ⁻¹³	²¹⁹ Rn	94	1,94 x 10 ⁻¹⁶	1,81 x 10 ⁻¹⁷
²¹⁴ Pb	2075	1,71 x 10 ⁻¹²	$3,55 \times 10^{-12}$	²¹⁵ Po	94	8,88 x 10 ⁻²⁰	8,37 x 10 ⁻²¹
²¹⁴ Bi	2075	1,26 x 10 ⁻¹²	$2,61 \times 10^{-12}$	²¹¹ Pb	94	1,03 x 10 ⁻¹³	9,73 x 10 ⁻¹⁵
²¹⁰ TI	2075	8,27 x 10 ⁻¹⁴	$1,72 \times 10^{-13}$	²¹¹ Bi	94	3,07 x 10 ⁻¹³	3,49 x 10 ⁻¹⁴
²¹⁴ Po	2075	5,04 x 10 ⁻¹²	1.04×10^{-11}	²⁰⁷ TI	94	1,34 x 10 ⁻¹⁴	1,27 x 10 ⁻¹⁵
²¹⁰ Pb	2075	7,25 x 10 ⁻⁷	1,50 x 10 ⁻⁶	²¹¹ Po	94	2,48 x 10 ⁻¹⁷	2,33 x 10 ⁻¹⁸
²¹⁰ Bi	2075	4,51 x 10 ⁻¹⁰	9,36 x 10 ⁻¹⁰	²⁰⁷ Pb			
²¹⁰ Po	2075	1,26 x 10 ⁻⁸	2,62 x 10 ⁻⁸				
²⁰⁶ Pb							
	31 125		349		1225		0,11

Tabela 2-7: Repartição da actividade pelos radioisótopos da série do 238 U e do 235 U (\Re = 0 %).

Podemos resumir que um minério com este teor, em bruto, isto é que não foi sujeito a lixiviação, origina uma actividade mássica total de 32 350 Bq/kg ou 874,12 nCi/kg, a que corresponde uma actividade total de 350 Bq.

2.5 Conclusões

Os radionuclídeos existem naturalmente em todos os meios ambientais receptores. A actividade que vai ser armazenada numa barragem de estéreis sob a forma de resíduos não é nova no local, uma vez que já existia no jazigo. Uma parte da actividade, cerca de 30 %, que constitui o concentrado, é retirada. A fracção sólida do resíduo contém cerca de 70 % dos constituintes radioactivos totais originalmente presentes no minério, incluindo quase toda a quantidade dos isótopos de ²³⁰Th e ²²⁶Ra. Estes radionuclídeos presentes nos resíduos sólidos representam uma potencial fonte de contaminação para o ambiente circundante, a menos que sejam eficazmente confinados e mantidos. A exposição ao perigo destes resíduos poderá ter origem na instabilidade das estruturas que constituem o confinamento do resíduo, levando a perdas acidentais dos sólidos, perda dos finos devido à acção do vento, erosão pela água, e percolação das águas da chuva através dos sólidos que transportam os contaminantes dissolvidos até às camadas profundas do solo, nomeadamente até aos aquíferos (Fiúza, 1995). A deposição é, inúmeras vezes, feita à superfície, estando sujeita a diversas formas de erosão, o que não acontecia no jazigo. Depois da fragmentação e da lixiviação há um acréscimo da mobilidade dos radioisótopos. As taxas de transferência para a atmosfera (radão e poeiras) e a velocidade de dissolução em meio aquoso (especialmente do rádio) são maiores do que no jazigo.

Muitas vezes a concentração da actividade dos radionuclídeos no local contaminado é heterogénea e variável sazonalmente, como acontece com o radão que depende das condições climáticas, nomeadamente da humidade, principal factor na emanação deste gás. O modelo de repartição da actividade pelos radionuclídeos permite-nos estimar a actividade de cada nuclídeo presente no resíduo, teoricamente, considerando presente o equilíbrio radioactivo. Os resultados obtidos foram usados nos modelos seguintes sempre que não foi possível obter medições ou valores concretos do local tomado para estudo.

"O meu intento não é ensinar aqui o método

que cada qual deve seguir para bem conduzir a sua razão,

mas somente mostrar de que maneira procurarei conduzir a minha."

Decartes

Capítulo 3

Modelo de libertação e de dispersão no ar

Resumo

O transporte atmosférico é composto por um modelo bidimensional para calcular o fluxo de radão (222Rn) emitido a partir de um resíduo e a sua difusão através deste, a concentração de radão a uma altura do solo definida (altura respirável ou altura de mistura) e a sua dispersão na atmosfera. A dispersão atmosférica é modelada pela teoria da pluma atmosférica de Gauss, que estima a dispersão média dos contaminantes libertados da fonte desencadeada pela velocidade do vento. O fluxo de radão que se liberta a partir do decaimento do rádio presente nos resíduos é estimado com base nos princípios da difusão num meio poroso permitindo descrever matematicamente o transporte do radão através do resíduo e de uma cobertura. O fluxo de radão libertado é calculado a partir dos parâmetros característicos de cada um dos meios onde ocorre a difusão do radão. Uma outra abordagem do modelo permite o dimensionamento de um hipotético sistema de cobertura, de uma ou várias camadas de diferentes materiais, para respeitar um fluxo imposto como limite. Desta forma, o modelo desenvolvido prevê a atenuação do radão através do sistema de cobertura pela estimativa da difusão do fluxo nos resíduos e em cada camada da cobertura. O transporte atmosférico do radão pressupõe o cálculo prévio da sua concentração na atmosfera local resultante do fluxo libertado da escombreira. A dispersão atmosférica é simulada tendo por base a equação matemática da pluma de dispersão de Gauss que permite estimar a dispersão da concentração de radão com o regime eólico em várias direcções e especificamente na direcção preferencial do vento, desde a fonte de libertação até uma distância estipulada onde se considera localizado o receptor ou o ponto de exposição.

3.1 Introdução

O armazenamento de resíduos radioactivos resultantes da beneficiação do urânio constitui a maior fonte de contaminação ambiental, das operações envolvidas na exploração e no tratamento de minérios radioactivos. Os materiais depositados estão sujeitos a uma dispersão ambiental pelos agentes naturais, podendo afectar áreas extensas. O vento e a água da chuva são os principais agentes responsáveis pelo transporte e dispersão na atmosfera.

Um caso particular no transporte atmosférico dos radionuclídeos (RDN) é representado pelo radão (²²²Rn), no estado gasoso, resultante do decaimento radioactivo do rádio: a sua libertação da matriz do resíduo ocorre por processos diferentes dos outros RDN pelo que o modelo para a sua libertação, transporte e dispersão na atmosfera será abordado especificamente. O modelo atmosférico apresenta-se assim dividido em dois submodelos: o modelo de libertação de radão por difusão e o modelo de transporte e dispersão na atmosfera. Na exploração do modelo foram consideradas várias situações para simulação.

Neste capítulo consideramos que resíduos, estéreis e rejeitados representam indistintamente a fonte de contaminação, da mesma forma que barragem e escombreira representam o local de armazenamento da fonte de contaminação.

3.2 Modelo de libertação do radão por difusão

As emissões do gás radão a partir dos estéreis resultantes da mineração do urânio constituem uma elevada fonte de contaminação ambiental. Este isótopo é gerado pelo decaimento radioactivo do rádio tendo um período de semi-vida de 3,8 dias, permitindo-lhe, neste espaço de tempo, migrar até distâncias consideráveis, antes de decair para outro nuclídeo. A geração de radão mantém-se continuamente por muitos anos devido ao longo período de semi-vida do rádio (²²⁶Ra) e do tório (²³⁰Th), presentes nos estéreis e nos resíduos. O radão é um gás inerte e por este motivo não se combina quimicamente com outros elementos.

A gestão destes materiais que originam a exalação do radão assume uma forte importância ambiental sendo uma das principais preocupações minimizar as emissões de radão para a atmosfera. O controlo das emissões de radão resultantes de uma barragem de estéreis de urânio pode ser feita através do cálculo da espessura dos materiais de cobertura, que atenuem o fluxo de radão para os níveis de fundo. Este cálculo baseia-se na teoria de difusão que descreve adequadamente o transporte a longo prazo do radão através dos estéreis e dos materiais da cobertura. O efeito da advecção a longo prazo no fluxo de radão para a superfície é muito pequeno podendo ser desprezado (NUREG, 1984).
A migração do radão através da cobertura é um processo complexo, através do qual, o vazio dos poros, o ar e a humidade têm grande influência na eficiência da cobertura para atenuar o fluxo de radão. Esta eficiência depende da capacidade do material para restringir a difusão o tempo suficiente para que o radão sofra um decaimento para um elemento sólido e que fique aprisionado antes de ultrapassar a cobertura. O parâmetro que caracteriza o movimento do radão no solo é o coeficiente de difusão ou a difusividade.

3.2.1 Descrição conceptual do modelo de libertação do radão

Pretende-se estudar a concentração de radão no ar resultante de uma barragem de estéreis de urânio sendo necessário simular a libertação da fonte de contaminação e a dispersão dos contaminantes através de um modelo quantitativo. A fonte de contaminação é constituída por uma barragem de estéreis que pode ou não ter uma cobertura. A cobertura pode ser constituída por uma só camada ou várias camadas de diferentes materiais. Uma outra abordagem do modelo permite o dimensionamento de um hipotético sistema de cobertura, de uma ou várias camadas de diferentes materiais, para respeitar um fluxo imposto como limite.

No local, o radão é gerado a partir do rádio presente nos resíduos; o seu transporte é orientado pelo gradiente de concentração e mantido pela contínua geração do radão; é libertado para o ar essencialmente por um processo de difusão ficando disponível para a dispersão na direcção preferencial do vento. Uma vez na atmosfera respirável, pode ser inalado pela população local ou por um receptor localizado a uma distância definida constituindo assim uma forma de exposição. Poderá sofrer uma deposição nas plantas e no solo e ser ingerido e ainda, originar uma exposição externa através da irradiação directa da superfície do solo. Esta exposição também se verifica fora do local de contaminação, uma vez que o radão poderá ser disperso para outros locais através do transporte atmosférico.

3.2.2 Descrição matemática do modelo de libertação

A atenuação do fluxo de radão pelos materiais de cobertura vai depender da espessura da cobertura, determinada em função de um critério quantitativo fixado como um objectivo: estipular a libertação através da cobertura de um determinado fluxo de radão aceitável. O valor desta espessura pode ser calculado directamente através dos parâmetros característicos dos estéreis e da cobertura, estimados ou

medidos, que incluem o coeficiente de difusão do radão, a porosidade e a humidade, o conteúdo em rádio e o poder de emanação do radão ou pode ser determinado através de cálculos iterativos experimentando vários valores para a espessura até se obter o valor que permite a passagem do fluxo estipulado inicialmente (a espessura calculada apenas deverá permitir a difusão deste valor).

O coeficiente de difusão para o radão nos vazios totais do solo é designado por D e o coeficiente de difusão efectivo no solo é designado por D_e e relacionam-se com a porosidade do solo (ϵ) da seguinte forma (NUREG, 1984):

$$D = \frac{D_e}{\varepsilon}$$
(3-1)

3.2.2.1 A equação de difusão

A equação de difusão para um sistema multifásico pode ser deduzida a partir de balanços mássicos, o que permite obter as expressões que descrevem a difusão através do sistema. Uma vez que a equação básica da difusão pressupõe um sistema unifásico, para um sistema de duas fases serão necessárias duas equações de difusão como ponto de partida. A equação genérica para a difusão é dada por:

$$D\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \lambda C + \frac{R\rho\lambda E}{\varepsilon} = 0$$
(3-2)

As equações que traduzem a difusão no vazio preenchido com ar e no vazio preenchido com água, para um sistema multifásico, podem ser descritas pelas expressões (3-3) e (3-4), respectivamente (NUREG, 1984):

$$D_{a} \frac{\partial^{2} C_{a}}{\partial x^{2}} - \lambda C_{a} + \frac{R\rho\lambda E_{a}}{\varepsilon - \theta} + \frac{T_{wa}}{\varepsilon - \theta} = 0$$
(3-3)

$$D_{w} \frac{\partial^{2} C_{wa}}{\partial x^{2}} - \lambda C_{wa} + \frac{R\rho\lambda E_{w}}{\theta} - \frac{T_{wa}}{\theta} = 0$$
(3-4)

em que,

$$C = \frac{C_{a}(\varepsilon - \theta) + C_{wa}\theta}{\varepsilon}$$
(3-5)

Combinando as expressões (3-3), (3-4) e (3-5) obtemos a equação genérica da difusão descrita na expressão (3-2) e que traduz a abordagem tradicional da difusão num meio poroso em estado estacionário. O coeficiente de difusão total (no ar e na água que preenchem os poros) é dado por:

$$D = \frac{D_{a}(\varepsilon - \theta) + D_{w}\theta K_{wa}}{\varepsilon - (1 - k)\theta}$$
(3-6)

$$K_{wa} = \frac{C_{wa}}{C_a}$$
(3-7)

em que,

- D_a: coeficiente de difusão nos poros preenchidos com ar, (m².s⁻¹)
- D_w: coeficiente de difusão nos poros preenchidos com água, (m².s⁻¹)

C_a: concentração de rádio nos poros preenchidos com ar, (Bq.m⁻³)

 θ : humidade, (-)

$$\epsilon$$
 - θ : porosidade preenchida com ar, (-)

- λ : constante de decaimento do radão, (s⁻¹)
- R: actividade específica do rádio no solo, (Bq.kg⁻¹)
- ρ : massa volúmica do solo, (kg.m⁻³)
- E_a: coeficiente de emanação nos poros preenchidos com ar, (-)
- E_w: coeficiente de emanação nos poros preenchidos com água, (-)
- T_{wa} : débito de transferência de radão da água para o ar, (Bq.m⁻³.s⁻¹)
- K_{wa} : coeficiente de partilha água ar para o radão (k = 0,26 para T = 20°C).

A soma do termo E_a com E_w corresponde ao coeficiente de emanação total do solo, E, e o parâmetro C representa a concentração de radão no vazio total dos poros (NUREG, 1984). O fluxo de radão, J (Bq.m⁻².s⁻¹), que se liberta através do volume de material no solo relaciona-se com a concentração de radão no vazio dos poros pela lei de Fick:

$$J = -D\varepsilon \frac{dC}{dx}$$
(3-8)

3.2.2.2 Fluxo de radão que se liberta dos estéreis sem cobertura

O fluxo de radão que se liberta para a atmosfera é a condição determinante para o cálculo da espessura da cobertura. A aplicação da expressão (3-2) para o caso particular de uma pilha de estéreis sem cobertura, pode ser deduzida para as seguintes condições iniciais (NUREG, 1984):

$$\frac{dC}{dx}(x = x_t) = 0$$
(3-9)

$$C(x=0) = 0$$
 (3-10)

o que origina a seguinte expressão para o fluxo de radão através do material estéril depositado sem cobertura (NUREG, 1984):

$$\mathbf{J}_{t} = \mathbf{R}\rho \mathbf{E}\sqrt{\lambda \mathbf{D}_{t}} \mathbf{t} \mathbf{g} \mathbf{h} \left(\sqrt{\frac{\lambda}{\mathbf{D}_{t}}} \mathbf{x}_{t} \right)$$
(3-11)

J_t: fluxo de radão através do resíduo para a superfície sem cobertura, (Bq.m⁻².s⁻¹) x_t : espessura dos estéreis, (m).

A Figura 3-1 representa a variação do fluxo normalizado, $J_t / (R\rho E)$, em função da espessura dos estéreis (x_t) para diferentes valores do coeficiente de difusão (D):



Figura 3-1: Fluxo normalizado dos estéreis sem cobertura, J_t/ (RρE), em função da espessura dos estéreis, x (cm), e do coeficiente de difusão, D, (cm².s⁻¹). Fonte: NUREG (1984).

Verifica-se pela análise da Figura 3-1 que a maioria do fluxo de radão tem origem nas camadas superficiais dos estéreis e que depois de atingir um valor máximo, permanece praticamente constante passando a ser independente do aumento da espessura dos mesmos.

3.2.2.3 Fluxo de radão que se liberta dos estéreis com cobertura

No caso de existir uma camada de cobertura, a solução da equação de difusão aplica-se a um sistema de duas fases (cobertura e estéreis) como o representado na Figura 3-2.



Figura 3-2: Sistema de duas fases cobertura/estéreis.

Para simplificar os cálculos, admite-se que não existe contaminação na cobertura (fonte nula) e que a contaminação tem origem na interface cobertura - estéreis. Desta forma há que considerar a continuidade do fluxo e da concentração de radão no ar e na água através da interface. Estes pressupostos podem ser traduzidos através das seguintes condições na interface (NUREG, 1984):

• a igualdade de concentração na interface:

$$\frac{C_{t}}{1 - (1 - k_{wa})\frac{\theta}{\epsilon}} = \frac{C_{c}}{1 - (1 - k_{wa})\frac{\theta}{\epsilon}}$$
(3-12)

$$C = \frac{C_{a}(\varepsilon - \theta) + C_{w}\theta}{\varepsilon}$$
(3-13)

• a continuidade do fluxo na interface:

$$\mathsf{D}_{\mathsf{t}}\varepsilon_{\mathsf{t}} \frac{\partial \mathsf{C}_{\mathsf{t}}}{\partial \mathsf{x}} = \mathsf{D}_{\mathsf{c}}\varepsilon_{\mathsf{c}} \frac{\partial \mathsf{C}_{\mathsf{c}}}{\partial \mathsf{x}}$$
(3-14)

• as condições fronteira:

$$\frac{dC}{dx}(x = x_c) = 0$$
(3-15)

A solução da expressão (3-2) para as condições fronteira consideradas representa a solução exacta de modelos difusioniais para um sistema de 2 fases (estéreis - cobertura), e pode ser traduzida pela expressão (3-16) (NUREG, 1984):

$$J_{c}(x_{c}) = \frac{2 \cdot J_{t} e^{-b_{c} x_{c}}}{\left[1 + \sqrt{\frac{a_{t}}{a_{c}}} \operatorname{tgh}(b_{t} x_{t})\right] + \left[1 - \sqrt{\frac{a_{t}}{a_{c}}} \operatorname{tgh}(b_{t} x_{t})\right] e^{-2 \cdot b_{c} x_{c}}}$$

$$b_{i} = \sqrt{\frac{\lambda}{D_{i}}} (i = c \text{ ou } t), (m^{-1})$$
(3-16)
(3-17)

$$a_i = \epsilon_i^2 D_i [1 - (1 - k)m_i]^2$$
, $(m^2 \cdot s^{-1})$ (3-18)

$$m = 10^{-2} \frac{\rho M}{\epsilon}$$
(3-19)

- x_c: espessura da cobertura, (m)
- M: teor em humidade, (% de peso seco)
- m: saturação em humidade, (-)
- K_{wa} : 0,26 Bq/m³ em água por Bq/m³ de ar.

É possível definir algumas condições para os parâmetros $a_c e a_t$ para analisar a sensibilidade do parâmetro J mediante algumas variações dos parâmetros envolvidos. O quociente entre $J_c e J_t$ vai representar a atenuação obtida pela variação destes parâmetros em função da espessura da cobertura. Os resultados para as seguintes condições definidas encontram-se representados na Figura 3-3:

 para a_t = a_c e para uma espessura dos estéreis tal que a tangente hiperbólica do termo (b_tx_t) é aproximadamente igual a 1, a expressão (3-16) toma a forma:

$$J_{c} = J_{t} e^{-b_{c} x_{c}}$$
 (3-20)

descrita pela curva A da Figura 3-3.

• se a_t << a_c, a expressão (3-16) toma a forma:

$$J_{c} = \frac{2J_{t}e^{-b_{c}x_{c}}}{1+e^{(-2b_{c}x_{c})}}$$
(3-21)

 para pequenos valores de x_c, J_c é aproximadamente igual a J_t descrito pela curva B da Figura 3-3, antes do fluxo começar a diminuir. Para elevados valores de x_c, a expressão (3-21) transforma-se em:

$$J_{c}(x_{c} \text{ elevado}) = 2 \cdot J_{t} e^{-b_{c} x_{c}}$$
(3-22)

Verifica-se que J_c decresce exponencialmente da mesma forma que na expressão (3-20), mas a atenuação é superior como se pode ver na curva B da Figura 3-3.



Figura 3-3: Fluxo de radão através da cobertura para a variação da espessura da cobertura e da camada de estéreis, $D = 1.0 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$. Fonte: NUREG (1984).

3.2.2.4 Espessura da cobertura a partir do fluxo estabelecido

O valor de x_c necessário para um permitir apenas a libertação de um fluxo específico pode ser obtido pela adaptação da expressão (3-16), assumindo que a

camada do resíduo tem uma espessura superior a 1 m e admitindo que exp (-2. b_c . x_c) é aproximadamente igual a (J_c / J_t)². A expressão resultante é dada por:

$$\mathbf{x}_{c} = \sqrt{\frac{D_{c}}{\lambda}} \ln \left[\frac{2 \cdot J_{t} / J_{c}}{\left(1 + \sqrt{\frac{a_{t}}{a_{c}}} \operatorname{tgh}(b_{t} \mathbf{x}_{t}) \right) + \left(1 - \sqrt{\frac{a_{t}}{a_{c}}} \operatorname{tgh}(b_{t} \mathbf{x}_{t}) \right) \left(J_{c} / J_{t} \right)^{2}} \right]$$
(3-23)

Na prática, pretende-se obter um significativo grau de atenuação do fluxo, tal que o último termo aditivo do denominador da expressão (3-23) seja desprezável. As soluções mais relevantes abrangem três situações distintas:

- fluxo de radão dos resíduos directamente para a atmosfera respirável;
- o fluxo através de uma cobertura de material homogéneo;
- e o fluxo através de uma cobertura constituída por várias camadas de diferentes materiais.

3.2.2.5 Sistema de cobertura com várias camadas

Para determinar o fluxo e a concentração de radão para a atmosfera e optimizar a espessura da cobertura de forma a satisfazer um fluxo máximo estipulado, é necessário aplicar sequencialmente as expressões (3-16) e (3-23) para cada camada da cobertura. Cada camada em questão é tratada como uma camada simples.



Figura 3-4: Parâmetros necessários para um sistema de cobertura com várias camadas de diferentes materiais. Fonte: NUREG (1984).

Para aplicar a expressão (3-23) à $1.^{a}$ camada a considerar, deve-se proceder a uma estimativa do fluxo de radão a partir da camada anterior, J_{t} , e do coeficiente de difusão da fonte, D_{t} . A metodologia a adoptar é descrita a seguir (NUREG, 1984).

- Calcular o fluxo de radão da 1.ª cobertura, J_{c1}, através da expressão (3-16) para os parâmetros dos estéreis e da 1.ª camada de cobertura.
- II. Calcular um coeficiente de difusão equivalente ao da fonte, D_{t1}, a partir da expressão (3-24):

$$D_{t1} = D_t e^{-b_{c1} x_{c1}} + D_{c1} (1 - e^{-b_{c1} x_{c1}})$$
(3-24)

- III. O valor de D_{t1} é utilizado na análise da segunda camada de cobertura. Se a cobertura total consiste apenas em 2 camadas, usa-se J_{c1} como J_t e D_{t1} como D_t na expressão (3-23) para calcular a espessura requerida para a camada 2, x_{c2}. A espessura do novo termo da fonte é x_{c1} + x_t. O valor de D_{t1} é usado para calcular a_t e b_t com a expressão (3-17) e com a expressão (3-18), necessários à expressão (3-23).
- IV. Se x_{c2} é definido previamente e se pretende ajustar a espessura de uma 3.ª camada de forma a satisfazer um determinado fluxo estabelecido, então pode-se usar a expressão (3-16) para calcular um novo J_{c2} com J_{c1} como J_t, D_{t1} e D_t e x_{c1} + x_t como a espessura da fonte. O D_{t1} é usado para determinar a_t e b_t na expressão (3-16).
- V. Obter um novo coeficiente de difusão para a fonte a partir da expressão (3-25):

$$D_{t2} = D_t e^{-b_{c1}x_{c1} - b_{c2}x_{c2}} + D_{c1}(1 - e^{-b_{c1}x_{c1}})e^{-b_{c2}x_{c2}} + D_{c2}(1 - e^{-b_{c2}x_{c2}})$$
(3-25)

- VI. Se a cobertura for constituída por três camadas, então usa-se J_{c2} com J_t, D_{t2} como D_t para determinar a_t e b_t, e a soma de x_{c1} + x_{c2} + x_t para a espessura da fonte na expressão (3-23) para calcular a espessura necessária para a terceira camada.
- VII. Para mais de três camadas deve-se repetir o processo tantas vezes quantas as necessárias, usando a expressão (3-26) para obter o coeficiente de difusão para o termo da fonte modificado para a camada n+1.

$$D_{tn} = D_{t}e^{-\sum_{i=1}^{n} b_{ci}x_{ci}} + D_{cn}(1 - e^{-b_{cn}x_{cn}}) + \sum_{i=1}^{n-1} D_{ci}(1 - e^{-b_{ci}x_{ci}})e^{-\sum_{j=1+1}^{n} b_{cj}x_{cj}}$$
(3-26)

Em resumo, a libertação de radão a partir dos estéreis pode ser estimada através da teoria da difusão num meio poroso, se forem usados os coeficientes de difusão apropriados. Estes podem ser medidos ou estimados empiricamente, tendo presente a sua considerável variação com a humidade. A sequência de cálculo a usar para a estimativa da espessura de um adequado sistema de cobertura é a seguinte:

- cálculo de todos os parâmetros da fonte (1);
- cálculo dos parâmetros da cobertura (2);
- cálculo dos parâmetros de atenuação da cobertura e do fluxo dos estéreis sem cobertura (3);
- cálculo da espessura da cobertura necessária (4);
- no caso de um sistema de multicamada, cálculo do fluxo superficial da 1.ª camada (5);
- cálculo do coeficiente de difusão para a potência da fonte efectiva (6);
- repetir (5) e (6) até a camada de topo estar calculada.

3.2.3 Medições do coeficiente de difusão do radão

O grau de atenuação do fluxo de radão resultante de uma dada cobertura depende do tempo necessário para o radão se difundir através da cobertura e parcialmente decair nesta mesma cobertura.

Os coeficientes de difusão são praticamente constantes na ausência de humidade, tendo por valor médio $6 \times 10^{-6} \pm 0,006 \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ para os solos secos, mas este valor diminui à medida que aumenta a humidade.

A variação do coeficiente de difusão a humidades intermédias pode ser atribuída, em grande parte, à variabilidade na distribuição do tamanho dos poros, contudo para a variação de elevados teores de humidade (0,9 > θ < 1) esta justificação já não é lícita (NUREG, 1984). Em vez disso, esta variação resultará da acentuada oscilação do coeficiente de difusão com a humidade, à medida que θ se aproxima da unidade. O coeficiente de difusão para solos completamente saturados é de 6,0 x 10⁻¹⁰ m².s⁻¹. Este parâmetro tem sido medido com o objectivo de avaliar a eficiência dos materiais usados como cobertura dos estéreis.

3.2.4 Estimativa dos coeficientes de difusão

A humidade do solo e a compactação são parâmetros importantes para determinar o valor do coeficiente de difusão, D, de um tipo de solo.

O teor de humidade nos materiais da cobertura pode afectar as suas propriedades para a difusão do gás radão e para o transporte dos radionuclídeos, a estabilidade física e o suporte da vegetação. Por estes motivos, o teor de humidade na cobertura dos estéreis de urânio é de particular interesse para a própria contenção e estabilização destes materiais e dos seus produtos de decaimento radioactivo. Uma vez que estes sistemas de confinamento têm de durar longos períodos, o equilíbrio da humidade, a longo prazo, é de grande importância.

Existem várias abordagens empíricas e semi-empíricas que permitem uma estimativa razoável da humidade a longo prazo. A correlação entre o grau de saturação expresso em percentagem, m (%), e a porosidade ε permite estimar o coeficiente de difusão, expresso em unidades m².s⁻¹ (NUREG, 1984):

$$D_{+} = 7 \times 10^{-6} e^{\left[-4\left(m - m\epsilon^{2} + m^{5}\right)\right]}$$
(3-27)

Existem vários modelos mais complexos e completos para calcular a humidade de equilíbrio no solo, contudo são necessários dados variáveis sazonalmente (meteorologia, hidrogeofísica e geofísica) que nem sempre se encontram disponíveis. Uma das fórmulas empíricas mais simples permite uma estimativa satisfatória da humidade a longo prazo e é dada pela expressão (3-28) (NUREG, 1984):

$$m_{r} = \left[0,124 \cdot P^{0,5} - 0,0012 \cdot E_{vap} - 0,04 + 0,156 \cdot f_{cm}\right]$$
(3-28)

m_r: humidade residual do solo ou grau de saturação, (-)

f_{cm}: % de finos (material que passa a 200 #)

E_{vap}: evaporação anual, (m)

P: precipitação anual, (m).

A relação entre o grau de saturação, m, e a humidade expressa em percentagem, M, é dada por:

$$m = 10^{-2} \frac{M}{(1/\rho - 1/g)}$$
(3-29)

m: fracção de saturação, (-)

M: humidade, % do peso seco (gm de água / gm de solo seco) x 10^2

 ρ : densidade seca (g.cm⁻³) = 1,67

g: peso específico $(g.cm^{-3}) = 2$

A expressão (3-28) também pode ser expressa de forma a representar a percentagem de humidade (peso seco) no solo (M):

$$M = 3.1 \cdot P^{0.5} - 0.03 \cdot E_{vap} + 3.9 \cdot f_{cm} - 1$$
(3-30)

3.2.5 Outros factores que influenciam a migração do radão

Existem outros factores que influenciam a migração do radão no solo descritos pela potência da fonte, o transporte advectivo do radão e os danos na cobertura. Nas subsecções seguintes é feita uma breve descrição da influência destes factores.

3.2.5.1 Potência da fonte

Os parâmetros principais que caracterizam a potência da fonte são a concentração de rádio, o peso específico dos estéreis (densidade), o coeficiente de emanação e o coeficiente de difusão.

A concentração de rádio nos estéreis pode ser estimada (na impossibilidade da sua medição) pela concentração de urânio no minério em função do seu teor, através da expressão (NUREG, 1984):

$$C_{Ra} = K_a T_3$$
(3-31)

C_{Ra}: concentração da actividade de rádio nos estéreis, (Bq/g)

 T_3 : teor do minério (% de U_3O_8)

 K_a : 104,04 Bq (²²⁶Ra) por g de solo.

Esta equação pressupõe o equilíbrio entre o urânio e o rádio no minério e que todo o rádio está contido nos estéreis sendo, por isso, a única fonte de radão.

A massa volúmica (densidade) do material sólido de uma barragem de estéreis pode ter o valor de 1500 a 1600 kg/m³. O poder de emanação descrito pelo coeficiente, E, representa a fracção de radão gerado nos estéreis de urânio e que está livre para se difundir nos poros. Sabe-se que este parâmetro varia com a humidade e pode variar consideravelmente de local para local, contudo, um valor igual a 0,2 é bastante aceitável para a maioria dos casos (Reis et al., 2000).

3.2.5.2 Materiais constituintes da camada de cobertura

Alguns materiais resultantes do processo de extracção e de beneficiação do urânio podem ser reutilizados como material de cobertura, como é o caso das areias dos estéreis, diminuindo o fluxo de radão libertado. Estes materiais não são tão eficientes como seria um material de cobertura limpo, uma vez que podem ter elevadas concentrações de rádio. No entanto, o seu uso como camada de base da cobertura resulta numa diminuição da quantidade de material limpo necessário, cuja eficiência varia de 60 % a 80 %, diminuindo com o aumento da espessura da camada de estéreis. Uma eficiência de cobertura de 70 % significa que 1 m das areias dos resíduos como cobertura é equivalente a 0,7 m de uma cobertura de solo limpo com o mesmo coeficiente de difusão. Geralmente, os materiais de cobertura utilizados são caracterizados por um coeficiente de difusão de 10⁻⁶ cm².s⁻¹ ou 10⁻¹⁰ m².s⁻¹ (NUREG, 1984).

Existem alguns mecanismos que podem danificar a cobertura e uma vez que o radão geralmente segue as trajectórias de menor resistência, estes mecanismos podem levar a uma menor eficiência da cobertura em atenuar o fluxo de radão para a superfície. Os mecanismos responsáveis pela difusão e advecção permitem o transporte de radão através dos materiais porosos podendo levar o radão a migrar até distâncias consideráveis, relativamente ao ponto de origem, se houver defeitos no material da cobertura. Alguns destes mecanismos são o crescimento da vegetação, a fissuração e a escavação feita pelos animais na cobertura.

No caso da vegetação, as plantas vão remover a humidade da cobertura e esta perda de humidade pode reduzir drasticamente a eficiência da cobertura em atenuar a libertação do radão. Por outro lado, a fissuração é relativamente superficial tendo um efeito menor no fluxo de radão para a superfície, até porque o risco de fissuração pode ser reduzido evitando certos materiais com tendência para estes riscos. Inclui-se nestes, os solos ricos em argilas com aluminossilicatos que podem formar fissuras em extensão e em profundidade e os solos de fácil erosão pela precipitação e escorrências, como é o caso dos solos sódicos que contém uma invulgar percentagem do ião sódio e por isso são facilmente lixiviáveis.

3.3 Modelo de transporte e dispersão de radão

O modelo proposto pretende simular o transporte atmosférico do radão, sendo constituído por vários submodelos que estimam primeiro a difusão de radão através do solo e depois a sua concentração na atmosfera local e a dispersão pelo regime eólico ou na direcção dominante do vento, ao longo de uma distância estipulada onde se considera que existe um potencial receptor.

Pretende-se que o modelo desenvolvido estime a variação espacial da concentração do radão a uma altura do solo definida (altura respirável) e a sua transferência no ambiente vizinho originada pela dispersão ao longo de uma distância estipulada. Desta forma, o modelo permite uma quantificação da fonte de libertação para o radão, a sua dispersão na atmosfera imediata e fora do local contaminado com a introdução de algumas variáveis do transporte ambiental (parâmetros locais e regionais) e de alguns dados meteorológicos (categoria de estabilidade, velocidade e frequência do vento).

3.3.1 Descrição conceptual do modelo de transporte e de dispersão

A libertação do radão do solo para a atmosfera é descrita pela teoria da difusão. A fonte de contaminação é definida como uma área de emissão, adoptandose o modelo de "caixa" (ou compartimento) em estado estacionário com diluição do radão pelo vento (Figura 3-5). O modelo quantifica a diluição do radão devido à mistura que ocorre na zona de "ar respirável" imediatamente por cima da superfície de solo afectada (atmosfera local) com base numa altura de mistura definida e numa velocidade média e constante do vento. A área de libertação é rectangular e constitui a soma de várias fontes pontuais gerando uma concentração homogénea e constante em toda a área. A extensão da zona de mistura é igual à dimensão lateral da superfície do solo da área exposta, paralela à direcção do vento considerada.



Figura 3-5: Modelo da "caixa" e da dispersão segundo a pluma Gaussiana.

A adopção deste modelo de transporte e de dispersão implica os seguintes pressupostos:

- não há construção habitacional sobre o local contaminado, logo o transporte de radão no solo é dominado pelo processo de difusão para a atmosfera exterior;
- a área de libertação é descrita pelo modelo da "caixa" que representa a soma de várias fontes pontuais e na qual ocorre a diluição do radão pelo vento;
- a altura da mistura atmosférica é a altura respirável que corresponde à altura média de um adulto (1,7 m);
- dentro da "caixa" considera-se a existência de uma velocidade média e constante do vento para a qual se adoptou um valor igual a 4,4 m.s⁻¹.

A abordagem mais comum para representar a concentração atmosférica e a deposição do material na direcção do vento, desde o ponto de libertação, é o modelo de transporte atmosférico da pluma de Gauss. O modelo da pluma Gaussiana simula o transporte atmosférico dos contaminantes para fontes pontuais e a consequente dispersão na direcção do vento.

A concentração estimada para a atmosfera local à altura respirável representa a concentração inicial para a dispersão. Seguidamente ao cálculo da dispersão, é possível quantificar a depleção da pluma que pode ocorrer durante o transporte devido à deposição por via húmida, à deposição por via seca e ao decaimento radioactivo.

O modelo adaptado para este caso em estudo implementa assim um algoritmo com base na pluma de dispersão Gaussiana (Moore et al., 1979), (Colls, 1997) para estimar a dispersão média dos radionuclídeos libertados da fonte. O modelo inclui ainda algoritmos para a avaliação de diversos componentes do transporte atmosférico, nomeadamente a ascensão da pluma, a dispersão da pluma e a depleção resultante da remoção dos radionuclídeos da pluma por decaimento radioactivo, pela deposição húmida e pela deposição seca (Colls, 1997), (Briggs, 1969).

As equações matemáticas que definem o modelo de dispersão da pluma de Gauss são baseadas nos seguintes processos (Briggs, 1969), (Pasquill, 1961): i) no parâmetro de flutuabilidade do fluxo, tendo em consideração a diferença entre a temperatura do contaminante emitido e a do ar uma vez que o modelo da pluma de Gauss foi inicialmente desenvolvido para estimar contaminações originadas por emissões gasosas, a temperaturas elevadas, a partir de chaminés; ii) na fórmula de Briggs que estima a elevação da pluma a uma certa distância da fonte na direcção do vento; iii) nos coeficientes de dispersão, $\sigma_y e \sigma_z$, calculados de acordo com a classe de estabilidade atmosférica de Pasquill e com a distância à fonte; iv) na equação de Pasquill que descreve a distribuição Gaussiana do poluente, usando a elevação e os coeficientes de dispersão da pluma.

Foi necessário adoptar os mesmos pressupostos, e as limitações inerentes em que se baseia a equação Gaussiana da pluma de dispersão, à formulação matemática do modelo conceptual do transporte atmosférico do radão. Os pressupostos de que partimos para adoptar as equações matemáticas do modelo de dispersão Gaussiana são os seguintes:

- a difusão ocorre num terreno plano e a variação na concentração do radão, devido à topografia, não pode ser modelada;
- a avaliação da contaminação é feita para distâncias e direcções numa grelha circular com um raio que pode ser variável;
- o potencial receptor encontra-se dentro da grelha circular definida;
- a contaminação da área é considerada uniforme;
- o débito de emissão é constante;
- não ocorre decaimento radioactivo durante o transporte do radão;
- o coeficiente de dispersão, σ, não tem em consideração a altura acima da superfície, a libertação da superfície e a velocidade do vento; as variações verticais e horizontais são apenas função da distância x;
- os perfis da concentração na pluma seguem a distribuição de Gauss segundo as direcções y e z;
- a dispersão na direcção x é desprezável quando comparada com o transporte originado pela velocidade média do vento;
- a velocidade do vento é considerada constante com a altura, o que raramente se verifica: na realidade, as variações da velocidade do vento com a altura podem ser descritas por um perfil logarítmico (Taylor, 1999);
- para a altura efectiva da pluma adoptou-se a mesma altura da fonte de contaminação: nas emissões ao nível do solo a diferença de temperatura e a velocidade de emissão não são significativas, pelo que a ascensão da pluma é desprezável contrariamente ao que se passa com as emissões gasosas a partir de chaminés.

O modelo atmosférico de transporte e de dispersão para o gás radão pode ser então descrito em duas fases:

- (1) Cálculo da concentração de radão na atmosfera local emitida por uma fonte definida como uma área de emissão, representada pelo modelo de "caixa" (ou compartimento) em estado estacionário com diluição do radão pelo vento dentro da caixa;
- (2) Cálculo da dispersão atmosférica pelo modelo da pluma Gaussiana resultante da diluição em que a fonte passa a ser considerada como uma emissão pontual.

3.3.2 Descrição matemática do modelo de transporte e dispersão

Para a calcular a dispersão do radão na atmosfera é necessário quantificar o fluxo libertado do solo por difusão, a sua diluição na atmosfera local e a respectiva concentração no ar respirável. Estes valores vão ser os dados de partida para a estimativa da variação espacial da concentração do radão em função da sua dispersão ao longo de uma distância estipulada.

3.3.2.1 Coeficiente de difusividade

No caso em estudo, considera-se que a libertação do radão ocorre para a atmosfera livre em consequência do transporte por difusão no solo ou nos estéreis. O coeficiente de difusão no meio onde ocorre o transporte pode ser estimado pela expressão (3-32) (Lyman, 1990):

$$D = 10^{-4} \cdot D_{ar} \frac{\theta_{as}^{3,33}}{\epsilon}$$
 (3-32)

D: coeficiente de difusão, $(m^2.s^{-1})$

 θ_{as} : volume de ar nos poros do material onde se dá a difusão, (cm³ ar / cm³ solo)

 ϵ : porosidade total, (cm³ solo / cm³ solo)

 D_{ar} : coeficiente de difusão no ar, (cm².s⁻¹)

 10^{-4} : factor de conversão de cm² a m².

O coeficiente de difusão no ar (D_{ar}) resulta do transporte molecular num meio gasoso movido pela colisão intermolecular. O processo pode ser desencadeado pelos gradientes de pressão, de temperatura e de concentração. O débito de difusão é uma função das propriedades dos dois compostos envolvidos não dependendo apenas da natureza do composto em questão mas também do meio através do qual o componente se move.

O coeficiente de difusão no ar pode ser estimado por vários métodos, nomeadamente pelo método de *"Wilke and Lee"* (WL) que permite obter o coeficiente teórico da difusão de um contaminante num gás. A difusão dos gases por colisão intermolecular é uma função da constante de Boltzmann (k), da massa molar do ar (M_A) e do contaminante (M_B), do integral de colisão que representa a colisão entre os átomos (Ω) e do comprimento característico (σ_{AB}) da molécula A interagindo com a molécula B. Este método é descrito pela expressão (3-33) (Lyman, 1990) em que o índice "A" refere-se ao ar e o "B" refere-se ao poluente, que neste caso é o radão:

$$\mathsf{D}_{\mathsf{ar}} = \frac{\mathsf{B} \cdot \mathsf{T}^{3/2} \cdot \sqrt{\frac{\mathsf{M}_{\mathsf{A}} + \mathsf{M}_{\mathsf{B}}}{\mathsf{M}_{\mathsf{A}} \cdot \mathsf{M}_{\mathsf{B}}}}}{\mathsf{P} \cdot \sigma_{\mathsf{AB}}^2 \cdot \Omega}$$
(3-33)

O coeficiente de difusão do radão no ar é representado por (D_{ar} , $cm^2.s^{-1}$), B é uma constante empírica calculada pela expressão (3-34), T é a temperatura absoluta (K), M_A é a massa molar do ar (g.mol⁻¹), M_B é a massa molar do radão (g.mol⁻¹), P é a pressão absoluta (atm), σ é o diâmetro da colisão (Å) e Ω é o integral da colisão para a difusão (função adimensional da temperatura). Os valores de Ω e de σ_{AB} são funções da temperatura e dependem do potencial intermolecular. A constante B pode ser estimada pela expressão (3-34) (Lyman et al., 1990):

$$B = 0,00217 - 0,00050\sqrt{\frac{1}{M_{A}} + \frac{1}{M_{B}}}$$
(3-34)

O integral da colisão (Ω) é uma função da energia molecular de atracção¹ (ω) e da constante de Boltzmann (k) e é expresso em função da variável adimensional T* (Neufell et al., 1972):

$$\Omega = \frac{a}{(T^*)^b} + \frac{c}{e^{T^*d}} + \frac{e}{e^{T^*f}} + \frac{g}{e^{T^*h}}$$
(3-35)

em que T* é dado por:

$$\mathsf{T}^* = \frac{\mathsf{T}}{(\omega/\mathsf{k})_{\mathsf{AB}}} \tag{3-36}$$

¹ Originalmente e na bibliografía da especialidade a energia molecular de atracção é representada por ε, mas como este símbolo já foi atribuído neste trabalho para a porosidade, adoptamos ω para a representar.

e as constantes, a, b, c, d, e, f, g, h, têm os seguintes valores (Lyman et al., 1990): a = 1,06036; b = 0,15610; c = 0,19300; d = 0,47635; e = 1,03587; f = 1,52996; g = 1,76474; h = 3,89411.

O denominador da expressão (3-36) pode ser expresso em Kelvin (K) por:

$$(\omega/k)_{AB} = \sqrt{(\omega/k)_{A}(\omega/k)_{B}}$$
(3-37)

em que $(\omega/k)_A$ é relativo ao ar e tem o valor tabelado de 78,6 K definido por Hirschfelder et al. (1954), enquanto que a forma $(\omega/k)_B$ é definida por Wilke & Lee (1955) em função da temperatura de ebulição, T_b:

$$(\omega/k)_{\rm B} = 1,15 \cdot T_{\rm b}$$
 (3-38)

O diâmetro da colisão² σ_{AB} ou o comprimento característico da molécula A interagindo com a molécula B é dado pela expressão (3-39):

$$\sigma_{AB} = \frac{\sigma_A + \sigma_B}{2}$$
(3-39)

em que σ_A para o ar é igual a 3,711 (Å) obtido a partir de dados da viscosidade (Hirschfelder et al., 1954) enquanto que σ_B é determinado pela correlação proposta por Wilke & Lee (1955) em função do volume molal, V'_B:

$$\sigma_{\rm B} = 1,18 \, ({\rm V'}_{\rm B})^{1/3} \tag{3-40}$$

$$V_{\rm B} \approx (0.85 \, {\rm a} \, 0.90) V'_{\rm B}$$
 (3-41)

$$V_{B}^{'} = \frac{\text{massa molar}}{\text{densidade}} = \frac{0,22202 \,(\text{kg/mol})}{9,73 \times 10^{-3} (\text{kg/cm}^3)} = 22,818 \,(\text{cm}^3/\text{mol})$$
 (3-42)

- D_{ar}: coeficiente de difusão no ar, (cm².s⁻¹)
 k: constante de Boltzmann, (J/K) (1 J/K = kg.m².s⁻².K⁻¹)
- M_A : massa molar do ar, (27,96 g.mol⁻¹)
- M_B: massa molar do contaminante B, (g.mol⁻¹)

T: temperatura, (K)

² Num gás ideal, as moléculas não interagem e movem-se como esferas rígidas colidindo umas com as outras e com as paredes do recipiente que as contém. As esferas rígidas só interagem durante as colisões e o diâmetro resultante da junção das esferas durante a colisão é definido pelo diâmetro da colisão.

- T_b: temperatura de ebulição, (K)
- B: constante empírica, (-)
- σ_{A} : diâmetro da colisão, (Å) (1 Å = 10⁻¹⁰ m)
- σ_{AB}: comprimento característico, função do volume molal no ponto de ebulição, (Å)
- Ω: integral da colisão para a difusão, (-)
- ω: energia molecular de colisão, (erg) (1 erg = 10^{-7} J = 10^{-7} kg.m².s⁻²)
- V'_B: volume molal, (cm³.mol⁻¹).

O coeficiente de difusão na forma gasosa é uma função da densidade, pressão e temperatura sendo inversamente proporcional relativamente aos dois primeiros parâmetros. Esta mesma expressão (3-32) pode ser usada para o cálculo do coeficiente de difusividade do radão no resíduo (D_t), substituindo os valores do volume de ar na zona vadosa do solo (cobertura) e da porosidade total do solo (cobertura) pelos valores referentes ao resíduo.

3.3.2.2 Concentração de radão na atmosfera exterior

Para qualquer um dos casos anteriores, o fluxo de radão no exterior é calculado pela equação de difusão que pode consistir de quantas componentes quantas as camadas consideradas para a cobertura ou para os resíduos que por sua vez podem ter diferentes concentrações de rádio e originar diferentes fluxos de radão. A concentração de radão no exterior a uma altura de mistura igual a H_d é calculada por (Hung, 2000):

$$C_{0} = \frac{J \cdot L_{x}}{H_{d} \cdot \mu_{m}}$$
(3-43)

C₀: concentração de radão no exterior (atmosfera local), (Bq.m⁻³)

J: fluxo de radão que se liberta, $(Bq.m^{-2}.s^{-1})$

- L_x: extensão do local contaminado, (m)
- H_d: altura de mistura no exterior, (m)
- μ_m : velocidade média do vento, (m.s⁻¹).

3.3.2.3 Cálculo da dispersão atmosférica

A abordagem tradicional de análise do transporte de contaminantes na atmosfera pode ser dividida em duas fases: i) estimativa da ascensão da pluma e ii) a estimativa da dispersão da pluma após ter atingido a altura máxima (Figura 3-6).

A ascensão da pluma dá-se em resposta à velocidade de emissão dos contaminantes (origina o fluxo quantidade de movimento) e à diferença de temperatura entre o contaminante emitido e a atmosfera (origina o fluxo défice de densidade ou de temperatura). Esta diferença impele a pluma na vertical até uma altura máxima, que será determinada por forças que travam a sua ascensão. As forças responsáveis incluem a força do vento que contraria a sua subida, o arrefecimento da pluma que provoca a dissipação do seu calor e impossibilita a ascensão, e ainda, os fenómenos de turbulência atmosférica que provocam a dispersão da pluma.

A ascensão da pluma ($\Delta_h = H - h$), é descrita pela fórmula de Briggs (1969), em função do fluxo de excesso de calor relativamente ao ambiente (F_p), o que vai originar um défice de densidade em função da distância na direcção do vento (x). A expressão (3-44) pode ser usada para estimar a ascensão da pluma (La Grega, 1994) se a distância x considerada for inferior a dez vezes a altura da fonte de emissão. No caso de exceder esta distância, deve-se substituir x na expressão (3-44) por dez vezes a altura da fonte de libertação (La Grega, 1994):

$$A_{h} = \frac{1.6 \cdot F_{p}^{1/3} \cdot x^{2/3}}{\mu}$$
(3-44)

 Δ_{h} : ascensão da pluma relativamente à linha central horizontal da pluma, (m)

 F_p : fluxo défice de densidade ou 3,7 x 10⁵.Q_H

Q_H: emissão de calor resultante da libertação, (cal.s⁻¹)

x: distância na direcção do vento, (m).



Figura 3-6: Distribuição Gaussiana da concentração dos contaminantes (La Grega et al., 1994).

Em locais contaminados a libertação não ocorre através de uma chaminé mas sim ao nível do solo em que o fluxo quantidade de movimento é desprezável e o défice de densidade é muito pequeno. Apesar de existirem diferenças entre o peso molecular do ar e o peso molecular do contaminante libertado, a sua concentração não é suficiente para originar um fluxo défice de densidade que permita a ascensão da pluma. Desta forma, para a maioria das libertações ao nível do solo em locais contaminados, a ascensão da pluma é desprezável.

Após ter atingido a altura máxima, a pluma tende a tornar-se horizontal e a dispersar. A estimativa da dispersão é importante, porque quanto maior for a ascensão da pluma, menor é a concentração de contaminantes ao nível do solo segundo a direcção do vento e maior é a diluição. A turbulência torna-se o agente principal na dispersão dos contaminantes. Não tem um padrão uniforme devido às muitas variações temporais e espaciais com origem na estabilidade atmosférica.

A estabilidade atmosférica é um indicador da turbulência que depende da estabilidade estática (variação da temperatura com a altura), da turbulência térmica (originada pelo aquecimento do solo), da turbulência mecânica (função da velocidade do vento e da rugosidade) e traduz a tendência para a mistura na vertical por correntes de convecção naturais.

Pasquill (1961) e Gifford (1976) descrevem seis classes de estabilidade atmosférica, desde a A, mais instável, até à F, mais estável, a cada uma das quais associaram parâmetros de dispersão na horizontal (σ_y) e parâmetros de dispersão na vertical (σ_z) (Moore et al., 1979). Estes coeficientes de dispersão dependem da distância na direcção do vento, do tipo de terreno e da estabilidade atmosférica.

O sistema de classificação da estabilidade definido por Pasquill-Gifford é descrito pelas características apresentadas na Tabela 3-1 (Connor et al., 1998):

Classe de estabilidade Pasquill-Gifford						
А	Muito instável	Aumento da			•	
В	Moderadamente instável	cobertura pelas				
С	Levemente instável	nuvens	Aumento da	Aumento	Aumento	
D	Neutra	(reduzida	velocidade	da	da turbulência	
Е	Levemente estável	transferência	do vento	rugosidade	da mistura	
F	Moderadamente estável	de calor)				

Tabela 3-1: Classificação da estabilidade para a modelagem do transporte atmosférico.

Fonte: Connor et al. (1998).

Os coeficientes de dispersão atmosférica são estimados em função da distância do receptor à fonte (x) e da categoria de estabilidade atmosférica de Pasquill (A, B, C, D, E, ou F), presente durante a emissão a partir da fonte, de acordo com as expressões da Tabela 3-2 (Hung, 1996).

Categoria de Pasquill	σ _y (m)	σ _z (m)	
Α	0,22.x.(1+0,0001.x) ^{-1/2}	0,20.x	
В	0,16.x.(1+0,0001.x) ^{-1/2}	0,12.x	
С	0,11.x.(1+0,0001.x) ^{-1/2}	0,08.x.(1+0,0002.x) ^{-1/2}	
D	0,08.x.(1+0,0001.x) ^{-1/2}	0,06.x.(1+0,0015.x) ^{-1/2}	
E	0,06.x.(1+0,0001.x) ^{-1/2}	0,03.x.(1+0,0003.x) ⁻¹	
F	0,04.x.(1+0,0001.x) ^{-1/2}	0,016.x.(1+0,0003.x) ⁻¹	

Tabela 3-2: Coeficientes de dispersão, segundo a categoria de estabilidade de Pasquill.

Fonte: EPA (2000).

A classe de estabilidade de um dado local pode variar com as rápidas alterações atmosféricas. Os desvios padrões $\sigma_y e \sigma_z$ podem ser estimados a partir dos ábacos de Pasquill-Gifford (Figura 3-7 e Figura 3-8), desde que se conheça a distância x e a categoria de estabilidade a considerar. Estes mesmos autores avançaram a teoria em que a turbulência, sob quaisquer condições de estabilidade atmosférica, origina uma concentração dos contaminantes em torno da linha central da pluma que pode ser descrita pela distribuição de Gauss ou seja, uma distribuição normal (Moore et al., 1979), (Colls, 1997).

O modelo Gaussiano resulta da solução de uma equação de advecçãodispersão tridimensional. A advecção ocorre devido ao transporte pelo vento e a dispersão é originada pela turbulência atmosférica.

Com base na distribuição Gaussiana, Pasquill derivou a seguinte equação, na versão modificada por Gifford, para descrever a concentração dos contaminantes da pluma na direcção do vento (Moore et al., 1979), (Pasquill, 1961):

$$X = \frac{Q}{2\pi\mu\sigma_{y}\sigma_{z}} e^{\left[-1/2\left(\frac{y}{\sigma_{y}}\right)^{2}\right]} \left\{ e^{\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{z-H}{\sigma_{z}}\right)^{2}\right]} + e^{\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{z+H}{\sigma_{z}}\right)^{2}\right]} \right\}$$
(3-45)

em que,

 $\mathbf{H} = \Delta \mathbf{h} + \mathbf{h} \tag{3-46}$

Página 53

- X_(i): concentração do RDN (i) no ar a x (m) na direcção do vento, a y (m) na direcção contrária ao do vento e a z (m) acima da superfície do solo, (Bq.m⁻³)
- Q: potência da fonte (débito de libertação da fonte), (Bq.s⁻¹)
- H: altura efectiva da fonte de libertação, (m)
- σ_{y} : parâmetros de dispersão, desvio padrão na horizontal, (m)
- σ_z: parâmetros de dispersão, desvio padrão na vertical, (m)
- y: direcção transversal a partir da linha central da pluma, (m)
- z: elevação relativamente à superfície do solo, (m)
- μ_m : velocidade média do vento, (m.s⁻¹)

A expressão (3-45) permite calcular a concentração de um contaminante em qualquer ponto (x, y, z) da pluma. O sistema de coordenadas corresponde à seguinte localização na origem: x = 0 na chaminé, y = 0 na linha central da pluma e z = 0 na superfície do solo.

Se a altura efectiva da fonte de libertação for H, a coordenada z da linha central da pluma é (z - H), sendo z medido em sentido ascendente a partir da superfície do solo. Pressupondo a lei da conservação da massa, admite-se que todo o contacto da pluma com o solo é reflectido sendo representado pelo último termo exponencial da expressão (3-45).



Figura 3-8: Coeficiente de dispersão σ_{y} .



Figura 3-7: Coeficiente de dispersão σ_z .

No caso em estudo, a área considerada é representada por um círculo, dividido em oito partes iguais (sectores) nas quais o vento sopra com uma determinada velocidade, afectando distintamente a população concentrada em cada sector. A divisão adoptada no modelo para simular o transporte atmosférico em cada direcção (N, S, E, W, NW, NE, SE, SW) deve-se ao facto de os dados nacionais meteorológicos referentes à velocidade do vento apenas contemplarem octantes.

A expressão (3-45) pode ser modificada para representar a concentração ao nível do solo na linha central da pluma, com o pressuposto de y = z = 0:

$$X = \frac{Q}{\pi\mu\sigma_{y}\sigma_{z}} e^{\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{H}{\sigma_{z}}\right)^{2}\right]}$$
(3-47)

A concentração no ar ao nível médio do solo em cada sector pode ser aproximada pela expressão (3-48) (EPA, 2000a):

 $\chi_{\rm ar} = f' \chi \tag{3-48}$

em que,

$$\mathbf{f}' = \int_{0}^{\infty} \mathbf{e}^{\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\mathbf{y}}{\sigma_{\mathbf{y}}}\right)^{2}\right]}$$
(3-49)

O valor de y na fronteira de cada sector, representado por y_s , é dado pelo valor da distância x, na direcção do vento, multiplicado pela tangente de metade do ângulo do sector. Considerando na expressão (3-45) o intervalo de integração de 0 até infinito e dividindo pelo valor de y na fronteira de cada sector, y_s , a expressão que define f' é dada por (EPA, 2000a):

$$y_{s} = x \operatorname{tg}(\alpha/2)$$

$$f' = \frac{\int_{0}^{\infty} e^{\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{y}{\sigma_{y}}\right)^{2}\right]} dy}{y_{s}}$$
(3-50)
(3-51)

y_s: valor de y na fronteira de cada sector, (m)

 α : ângulo de cada sector (45°).

O integral definido no numerador da expressão (3-51) pode ser simplificado em (EPA, 2000a):

$$f' = \frac{\int_{0}^{\infty} e^{\left[-0.5 \cdot \left(\frac{y}{\sigma_y}\right)^2\right]} dy}{y_s} = \frac{\sigma_y \cdot (\pi/2)^{1/2}}{x \cdot tg(\alpha/2)} = \frac{3,026 \cdot \sigma_y}{x}$$
(3-52)

Substituindo na expressão (3-48), f' e X (EPA, 2000a) obtemos a concentração no ar ao nível médio do solo:

$$X_{ar} = \frac{Q \cdot f}{0,3305\pi x \mu \sigma_z} e^{\left[-0.5 \left(\frac{H}{\sigma_z}\right)^2\right]}$$
(3-53)

X_{ar}: concentração média no ar ao nível médio do solo, (Bq.m⁻³)

f: frequência do vento em cada direcção considerada, (-)

y_s: valor de y na fronteira de cada sector, (m)

 α : ângulo de cada sector (45°).

Em condições normais, a temperatura atmosférica diminui com o aumento da altitude. Os poluentes libertados na atmosfera são transportados na vertical no sentido da camada mais quente para a camada mais fria até uma distância máxima (Figura 3-9, a). Contudo, na presença de certas condições meteorológicas pode formar-se uma camada atmosférica em que a temperatura aumenta com a altitude. Esta camada é conhecida pela camada de inversão térmica. O ar que se situa abaixo desta camada é muito estável, com pouco movimento e reduzida mistura na vertical. A camada atmosférica entre a superfície do solo e a base da camada de inversão, representa a camada de mistura atmosférica e a respectiva distância na vertical representa a altura de mistura atmosférica.

A camada de inversão térmica é uma camada atmosférica de espessura da ordem de uma centena de metros que ocorre a uma altitude de cerca de 1 km sobre áreas continentais. A inversão térmica de altitude funciona como uma "tampa" para os poluentes emitidos. Neste caso, os poluentes ficam aprisionados ao nível do solo, onde a exposição é maior. O ar frio fica aprisionado entre a camada mais quente (camada de inversão) e os poluentes na camada mais fria não podem ser dispersos sendo concentrados ao nível médio do solo (Figura 3-9, b).



Figura 3-9: Dispersão dos poluentes atmosféricos em condições atmosféricas normais (a) e com o efeito de inversão térmica (b). Fonte: Miller (1998).

A dispersão da pluma na vertical é então travada quando encontra uma camada atmosférica estável a uma dada altura dentro da troposfera. A troposfera estende-se desde a superfície do solo até uma altitude média de 12 km e contém todo o vapor de água, incluindo nuvens e precipitação. Na troposfera verifica-se uma mistura rápida na vertical dos componentes atmosféricos. A parte mais baixa da troposfera é a camada limite atmosférica que se estende em altitude até 2 km da superfície do solo e onde se forma a camada de inversão térmica (Moore et al., 1979), (Taylor, 1999).

O modelo assume que a camada de inversão térmica não afecta a pluma para distâncias inferiores a $2.x_L$, onde x_L é o valor de x para o qual a dispersão na vertical, σ_z , é 0,47 vezes maior que a altura da camada de inversão térmica (Turner, 1969). Para valores maiores do que $2.x_L$, a dispersão vertical é restrita e a concentração dos radionuclídeos no ar é considerada uniforme desde o nível médio do solo até à camada estável. Desta forma, a concentração média entre o solo e a camada estável, que não é mais do que a concentração no ar ao nível do solo, para valores de x maiores do que $2.x_L$, pode ser expressa por (Barry, 1992):

$$\chi_{at} = \frac{\int_{0}^{0} \chi \, dz}{L_{d}}$$
(3-54)

em que X é dado pela expressão (3-45) e L_d representa a altura da base da camada de inversão térmica.

O valor de H na expressão (3-45) pode ser assumido como zero, uma vez que X_{at} não é uma função da altura efectiva da fonte de libertação. A expressão resultante pode ser simplificada com x e y constantes, mantendo σ_z e σ_y constantes, através de um integral similar ao da expressão (3-52):

$$\chi_{at} = \frac{\int_{0}^{\infty} \frac{Q \cdot f}{\pi \cdot x \cdot \sigma_{y} \cdot \sigma_{z} \cdot \mu} e^{\left(-z^{2}/2\sigma_{z}^{2}\right)} e^{\left(-y^{2}/2\sigma_{y}^{2}\right)} dz}{L_{d}}$$
(3-55)

e resulta na simplificação:

$$\chi_{at} = \frac{Q \cdot f}{2,5066 \cdot L_{d} \cdot \sigma_{y} \cdot \mu} e^{\left(\frac{y^{2}/2\sigma_{y}^{2}}{2}\right)}$$
(3-56)

Finalmente, obtém-se a concentração média entre o solo e a base da camada de inversão térmica substituindo a expressão exponencial contendo y na expressão (3-54) por f' da expressão (3-52):

$$\chi_{at} = \frac{Q \cdot f}{0,8283 \cdot L_{d} \cdot x \cdot \mu}$$
(3-57)

No modelo desenvolvido, considerou-se que a base da camada de inversão térmica encontra-se a uma altitude de 800 m (baixa troposfera) à qual a velocidade do vento é constante e tem o valor de 5,347 m.s⁻¹ (Barry, 1992). Deve referir-se que para valores de distâncias na direcção do vento maiores do que a dispersão $2.x_L$, como acontece na expressão (3-57), a concentração deixa de ser representada pela equação de Pasquill. O modelo é simplesmente, uma distribuição uniforme em rectângulo com dimensões L_d e 2.x.tg ($\alpha/2$).

3.3.2.4 Deposição seca e deposição húmida

O modelo da pluma Gaussiana não contempla a deposição das partículas da pluma, uma vez que assume a completa reflexão da pluma ao nível do solo, podendo subestimar a concentração e acumulação dos contaminantes no solo. Desta forma, torna-se necessário abordar este problema separadamente.

Existem dois mecanismos principais para a remoção dos poluentes da atmosfera: a deposição seca e a deposição húmida. A deposição húmida consiste na transferência de uma substância da atmosfera para a superfície da terra através da chuva ou da neve. A deposição seca consiste na transferência directa para as superfícies naturais como o solo, a vegetação, água ou neve, quer pela deposição das partículas quer pela absorção dos gases. A deposição seca é calculada a partir da velocidade de deposição sendo proporcional à concentração de RDN ao nível do solo (Moore et al., 1979):

 $R_{d} = V_{d} \cdot \chi_{ar}$ (3-58)

R_d: fluxo de deposição seca, (Bq.m⁻².s⁻¹)

V_d: velocidade de deposição, (m.s⁻¹)

X_{ar}: concentração do RDN na atmosfera ao nível médio do solo, (Bq.m⁻³).

A velocidade de deposição para os gases pode ser calculada pelo quociente entre o fluxo que se liberta por difusão (Bq.m⁻².s⁻¹) e a concentração na atmosfera respirável (Bq.m⁻³) (Colls, 1997):

$$V_{d} = \frac{J}{C_{0}}$$
(3-59)

V_d: velocidade de deposição para o radão, (m.s⁻¹)

J: fluxo de radão que se liberta por difusão, (Bq.m⁻².s⁻¹)

C₀: concentração na atmosfera respirável, (Bq.m⁻³).

A deposição húmida é calculada em função do fluxo de remoção por via húmida, (Λ), expresso em função da precipitação (P_r) e do coeficiente de deposição por via húmida (ϕ) (EPA, 2000a):

$$\mathsf{R}_{\mathsf{w}} = \Lambda \cdot \chi_{\mathsf{at}} \cdot \mathsf{L}_{\mathsf{d}} \tag{3-60}$$

$$\Lambda = \phi \cdot \mathsf{P}_{\mathsf{r}} \tag{3-61}$$

- R_w: débito de deposição por via húmida, (Bq.m⁻².s⁻¹)
- Λ : fluxo de remoção por via húmida, (s⁻¹)
- ϕ : coeficiente de deposição por via húmida, (ano.m⁻¹s⁻¹)
- X_{at}: concentração do RDN desde a superfície do solo até à camada atmosférica estável, (Bq.m⁻³)
- L_d: altura da camada atmosférica estável ou de inversão térmica, (m)
- P_r : precipitação, (m.ano⁻¹).

3.3.3 A depleção da pluma

À medida que ocorre o transporte e a dispersão, a pluma sofre uma depleção pela remoção dos radionuclídeos por deposição húmida, por deposição seca e por decaimento radioactivo. A depleção da pluma pode ser quantificada através da substituição de um débito de libertação reduzido (Q₁) por um débito de libertação original (Q) para cada distância x na direcção do vento e para cada um dos processos

de remoção dos radionuclídeos. O quociente entre a libertação reduzida e a libertação original representa a fracção de depleção (Q_1/Q) para cada distância x na direcção do vento. A depleção total é estimada pelo produto das três fracções de depleção: por deposição húmida, por deposição seca e a resultante do decaimento radioactivo, que se verificam durante o transporte.

Na metodologia adoptada para estimar a fracção de depleção devido à deposição húmida e ao decaimento radioactivo consideraram-se três velocidades do vento representativas das fronteiras inferior e superior da maioria dos dados meteorológicos (1 m.s⁻¹ e 6 m.s⁻¹) e a velocidade média no respectivo octante para simular o espectro actual da velocidade numa das direcções e para cada categoria de estabilidade de Pasquill. Se f_1 , f_2 , e f_3 representarem as fracções de tempo para as três velocidades consideradas, então:

$$f_1 + (\mu_a \cdot f_2) + 6 \cdot f_3 = \mu_a$$
 (3-62)

$$f_1 + \frac{f_2}{\mu_a} + \frac{f_3}{6} = \frac{1}{\mu_r}$$
(3-63)

$$f_1 + (\mu_a \cdot f_2) + 6 \cdot f_3 = \mu_a$$
 (3-64)

em que,

 μ_a : média aritmética da velocidade do vento, (m.s⁻¹)

 μ_r : média harmónica da velocidade do vento, (m.s⁻¹).

Resolvendo as três expressões (3-62), (3-63) e (3-64):

$$f_1 = 1 - f_2 - f_3$$
 (3-65)

$$f_{2} = \frac{\left(\frac{7}{6}\right) \cdot \left(\frac{\mu_{a}}{6}\right) \cdot \left(\frac{1}{\mu_{r}}\right)}{\left(\frac{7}{6}\right) \cdot \left(\frac{\mu_{a}}{6}\right) \cdot \left(\frac{1}{\mu_{a}}\right)}$$
(3-66)

$$f_3 = \frac{(\mu_a - 1)(1 - f_2)}{5}$$
(3-67)

A fracção de depleção para quantificar o decaimento radioactivo (EPA, 2000a):

$$\frac{Q_{1a}}{Q} = f_1 e^{(-\lambda_R X)} + f_2 e^{[-\lambda_R (X/\mu_a)]} + f_3 e^{[-\lambda_R (X/6)]}$$
(3-68)

A fracção de depleção devido à deposição húmida (EPA, 2000a):

$$\frac{Q_{1b}}{Q} = f_1 e^{(-\phi X)} + f_2 e^{[-\phi(X/\mu_a)]} + f_3 e^{[-\phi(X/6)]}$$
(3-69)

A fracção de depleção devido à deposição seca é obtida através da expressão (3-45) fazendo z = 0 para as concentrações ao nível médio do solo e subtraindo a quantidade V_{g} x / μ , à altura efectiva, H (EPA, 2000a):

$$\frac{Q_{1c}}{Q} = e^{\left\{-\left((2/\pi)^{1/2}\right)\frac{V_{d}}{\mu}\int_{0}^{x} \frac{e^{\left[\frac{(H-V_{g}x/\mu)^{2}}{2\sigma_{z}^{2}}\right]}}{\sigma_{z}}dx\right\}}$$
(3-70)

Apesar da precipitação poder absorver os gases e actuar como um impulsor da deposição, o efeito deste mecanismo na dispersão de poluentes com origem em áreas contaminadas é desprezável (La Grega et al., 1994). No entanto, a deposição de matéria particulada devido à força da gravidade pode ser bastante significativa.

E por último, a fracção de depleção total (Q_1/Q) é calculada pelo produto das três fracções de depleção:

$$\left(\frac{\mathbf{Q}_{1}}{\mathbf{Q}}\right) = \left(\frac{\mathbf{Q}_{1a}}{\mathbf{Q}}\right) \left(\frac{\mathbf{Q}_{1b}}{\mathbf{Q}}\right) \left(\frac{\mathbf{Q}_{1c}}{\mathbf{Q}}\right)$$
(3-71)

3.4 O modelo matemático adaptado ao caso de estudo

3.4.1 Definição da forma da área

Para a adopção do modelo atmosférico definiu-se como área de estudo a área representada por um polígono regular dividida em áreas iguais (sectores) em que cada área é caracterizada por uma velocidade média do vento o que vai gerar diferentes concentrações de radão em cada sector. A área definida por um polígono regular de n lados com um comprimento L para cada lado é dada pela expressão (3-72).

$$A = \frac{1}{4}nL^{2}\cot g\left(\frac{\pi}{n}\right)$$
(3-72)

Para o caso de estudo em particular, definiu-se um polígono com oito lados fazendo corresponder a cada sector os dados meteorológicos nacionais, que apenas contemplam octantes, segundo as seguintes direcções do vento: N S E W NW NE SE SW (Figura 3-10).



Figura 3-10: Definição da área em estudo segundo um polígono regular de 8 lados.

Neste caso, a área delimitada pelo octógono é dada por:

$$A = \frac{8}{4}L^{2} \cot g\left(\frac{\pi}{8}\right) = 2L^{2} \cot g\left(\frac{\pi}{8}\right)$$
(3-73)

Se A for conhecido, então L é dado por:

$$L = \sqrt{\frac{A}{2 \cot g\left(\frac{\pi}{8}\right)}}$$
(3-74)

A relação entre o lado de um polígono regular de n lados e o raio da circunferência circunscrita, R, é dado por:

$$R = \frac{L}{2} \csc\left(\frac{\pi}{n}\right)$$
(3-75)

Para um octógono, o número de lados é igual a oito e a expressão (3-75) toma a forma:

$$R = \frac{L}{2} \csc\left(\frac{\pi}{8}\right)$$
(3-76)

3.4.2 Implementação do modelo de cálculo da concentração de radão num local de deposição de resíduos

A área de libertação do radão para a atmosfera é descrita por um compartimento em que se pressupõe que a emissão da fonte é uniforme ao longo de toda a área contaminada. O débito de emissão da área ou a potência da fonte é igual à massa de contaminante libertada por unidade de área por unidade de tempo. As dimensões da área contaminada são definidas pela largura e pelo comprimento do compartimento e que juntamente com a altura de mistura, definem o volume no qual toda a emissão é uniformemente misturada: uma mistura completa, instantânea e espacialmente homogénea dentro do volume definido. Este compartimento pode ser assim comparado a um reactor tipo mistura no qual a variação da massa de radão dentro do compartimento de volume constante, V, é dada pela diferença entre a quantidade de radão que entra no compartimento (ϕ .A) e a quantidade que sai (μ .S.y):

$$V\frac{dy}{dt} = \phi A - \mu Sy$$
 (3-77)

No estado estacionário, a variação da concentração ao longo do tempo é nula:

$$V\frac{dy}{dt} = 0$$
 (3-78)

o que equivale a ter:

$$y = \frac{\phi A}{\mu S}$$
(3-79)

em que, para a divisão octógono em 8 sectores definidos pela velocidade do vento disponível para 8 direcções:

$$S = 8 \cdot L \cdot h \tag{3-80}$$

- L: comprimento de cada lado, (m)
- h: altura média respirável, (m)
- μ : velocidade média do vento segundo cada uma das 8 direcções, (m.s⁻¹)

A concentração de radão no exterior (atmosfera local), à altura média respirável, h, segundo cada direcção do vento (Figura 3-11), pode ser definida pela seguinte expressão:

$$C_0 = \frac{Q}{u \cdot 8 \cdot L \cdot h}$$

(3-81)

com a seguinte correspondência: y = $C_{_0}\,, \ \varphi = J \ e \ J \cdot A = Q$.



Figura 3-11: Representação da área em estudo para estimar a concentração à altura h.

Para calcular a concentração à altura respirável, h, segundo a direcção dominante do vento, apenas se considera um dos lados do octógono a que corresponde a direcção dominante do vento (Figura 3-12). Nestas condições, C_0 , é estimado por:

$$C_0 = \frac{Q}{\mu \cdot L \cdot h}$$
(3-82)

em que μ passa a ser a velocidade média do vento na direcção predominante.



Figura 3-12: Representação da área em estudo segundo a direcção dominante do vento.

Para o caso em estudo definiram-se várias áreas com diferente concentração em rádio (A₁, A₂, A₃, ..., A_i). Calculou-se a área aproximada de cada zona e definiramse as coordenadas do ponto central de cada uma. A área total (A) é representada pela soma das áreas parciais e o ponto médio da área total é representado pela média das coordenadas do ponto central de cada área considerada. O fluxo de radão que se liberta pode ser estimado pelas expressões já apresentadas ou ser introduzido como um *input* se o valor de J for conhecido para cada uma das áreas consideradas. O fluxo total pode ser estimado pela expressão (3-83):

$$J = \frac{M}{A}$$
(3-83)

em que M representa a massa total de radão que se liberta estimada por:

$$M = J_1 \cdot A_1 + J_2 \cdot A_2 + J_3 \cdot A_3 + J_4 \cdot A_4 + \dots + J_i \cdot A_i$$
(3-84)

e o débito total de libertação da fonte:

$$Q = J \cdot A \tag{3-85}$$

A concentração de radão à altura respirável (h) no ponto médio da emissão é estimada pela expressão (3-81), em que μ representa a velocidade média do vento ponderada pela sua frequência. À distância R (raio da circunferência circunscrita no polígono) do ponto médio, em cada direcção do vento, a concentração é dada por:

$$X_{ar} = \frac{Q \cdot f}{\mu \cdot L \cdot h}$$
(3-86)

Desde o ponto médio até distância x, que se definiu ser de 2 km, e em cada direcção do vento, a concentração é dada por:

$$X_{ar} = \frac{Q \cdot f}{\pi \cdot \sigma_{y} \cdot \sigma_{z} \cdot \mu}$$
(3-87)

3.4.3 Parâmetros de dispersão para uma fonte pontual

Os desvios padrões $\sigma_y e \sigma_z$ podem ser estimados a partir de equações que se aproximam das curvas de Pasquill-Gifford (Turner, 1994) e nas quais se baseiam o cálculo de $\sigma_z e \sigma_y$ para a opção rural. A equação usada para calcular σ_z (em metros) é da forma:

$$\sigma_z = \mathbf{a} \cdot \mathbf{x}^{\mathrm{b}} \tag{3-88}$$

A equação usada para determinar σ_y (em metros) é da forma:

 $\sigma_{y} = 465,11628 \cdot x \cdot tg(TH)$ (3-89)
$$TH = 0,017453293 \cdot [c - d \cdot ln(x)]$$
 (3-90)

Nas expressões (3-88), (3-89), e (3-90) a distância na direcção do vento (x) está expressa em quilómetros e o ângulo (TH) está expresso em radianos. Os coeficientes a e b obtêm-se a partir da Tabela 3-3.

Tabela 3-3: Parâmetros de dispersão vertical, σ_z , segundo Pasquill-Gifford (Turner, 1994).

Classe de estabilidade de Pasquill	x (km)	а	b
	< 0,10	122,800	0,94470
	0,10 - 0,15	158,080	1,05420
	0,16 - 0,20	170,220	1,09320
	0,21 - 0,25	179,520	1,12620
A*	0,26 - 0,30	217,410	1,26440
	0,31 - 0,40	258,890	1,40940
	0,41 - 0,50	346,750	1,72830
	0,51 - 3,11	453,850	2,11660
	> 3,11	**	**
	< 0,20	1,0857	0,93198
B*	0,21 - 0,40	98,483	0,98332
	> 0,40	109,300	1,09710
C*	0 - ∞	61,141	0,91465
	< 0,30	34,459	0,86974
	0,31 - 1,00	32,093	0,81066
D	1,01 - 3,00	32,093	0,64403
D	3,01 - 10,00	33,504	0,60486
	10,01 - 30,00	36,650	0,56589
	> 30,00	44,053	0,51179
	< 0,10	24,260	0,83660
	0,10 - 0,30	23,331	0,81956
	0,31 - 1,00	21,628	0,75660
	1,01 - 2,00	21,628	0,63077
E	2,01 - 4,00	22,534	0,57154
	4,01 - 10,00	24,703	0,50527
	10,01 - 20,00	26,970	0,46713
	20,01 - 40,00	35,420	0,37615
	> 40,00	47,618	0,29592
	< 0,20	15,209	0,81558
	0,21 - 0,70	14,457	0,78407
	0,71 - 1,00	13,953	0,68465
	1,01 - 2,00	13,953	0,63227
F	2,01 - 3,00	14,823	0,54503
	3,01 - 7,00	16,187	0,46490
	7,01 - 15,00	17,836	0,41507
	15,01 - 30,00	22,651	0,32681
	30,01 - 60,00	27,074	0,27436
	> 60,00	34,219	0,21716

* Se o valor calculado de σ_z exceder 5 000 m, σ_z = 5 000 m; ** σ_z = 5000 m.

Os coeficientes c e d obtêm-se a partir da Tabela 3-4:

Classe de estabilidade de Pasquill	С	d
А	24,1670	2,53340
В	18,3330	1,80960
С	12,5000	1,08570
D	8,33300	0,72382
E	6,25000	0,54287
F	4,16670	0,36191

Tabela 3-4: Parâmetros de dispersão horizontal, σ_y , segundo Pasquill-Gifford (Turner, 1994).

Na Tabela 3-5 e na Tabela 3-6 apresentam-se as equações usadas para determinar $\sigma_v e \sigma_z$ para a opção urbana.

|--|

Classe de estabilidade de Pasquill	σ _y (metros); x (metros)
A	$0,32.x.(1,0 + 0,0004.x)^{-1/2}$
В	$0,32.x.(1,0 + 0,0004.x)^{-1/2}$
С	$0,22.x.(1,0 + 0,0004.x)^{-1/2}$
D	$0,16.x.(1,0 + 0,0004.x)^{-1/2}$
E	$0,11.x.(1,0 + 0,0004.x)^{-1/2}$
F	$0,11.x.(1,0+0,0004.x)^{-1/2}$

Tabela 3-6: Coeficientes de dispersão vertical urbana, σ_z, segundo Briggs (Turner, 1994).

Classe de estabilidade Pasquill	σ _z (metros); x (metros)
А	$0,24.x.(1,0+0,0004.x)^{-1/2}$
В	$0,24.x.(1,0 + 0,0004.x)^{-1/2}$
С	$0,20.x.(1,0 + 0,0004.x)^{-1/2}$
D	$0,14.x.(1,0 + 0,0004.x)^{-1/2}$
E	$0,08.x.(1,0 + 0,0004.x)^{-1/2}$
F	$0,08.x.(1,0 + 0,0004.x)^{-1/2}$

3.5 A exploração do modelo

Para verificar a sensibilidade dos modelos desenvolvidos para a simulação da libertação de radão por difusão e a sua dispersão no ar, efectuaram-se algumas simulações em casos muito simples bem como uma análise de sensibilidade à alteração de alguns dos parâmetros.

Foram realizadas várias explorações com diferentes características para o material de um local de deposição de resíduos e com diferentes tipos de dados referentes ao mesmo local de estudo. A exploração do modelo teve por objectivo a estimativa da dispersão da concentração do radão na direcção do vento para diferentes distâncias específicas da fonte em função da estabilidade atmosférica e da velocidade do vento. A exploração do modelo foi feita na seguinte sequência:

- (i). o cálculo da actividade de rádio gerada pela cadeia do ²³⁸U, uma vez que o radão resulta do rádio por decaimento radioactivo;
- (ii). cálculo dos coeficientes de difusão do radão no material constituinte do resíduo e na cobertura;
- (iii). a concentração de radão na atmosfera respirável e
- (iv). a dispersão atmosférica do radão.

A depleção da pluma por deposição para o radão não foi considerada na exploração do modelo. O radão é um gás inerte que não reage quimicamente e apesar de ser continuamente gerado pelo decaimento do rádio não está sujeito à deposição seca ou húmida porque a sua semi-vida é apenas de 3,8 dias. Contudo, a sua diminuição na pluma pode ocorrer por decaimento radioactivo para o elemento seguinte da série do ²³⁸U, o ²¹⁰Pb, que adere rapidamente aos aerossóis atmosféricos. No caso deste último radionuclídeo, com uma semi-vida de 22 anos, os processos dominantes de remoção da pluma são a deposição húmida e seca, contrariamente à remoção por decaimento radioactivo, como acontece com a restante matéria particulada.

O modelo atmosférico foi desenvolvido para estimar a concentração de um poluente (neste caso o radão), na direcção do vento (direcção segundo x), de uma fonte de contaminação, a distâncias específicas em função da estabilidade atmosférica e da velocidade do vento. Basicamente, o modelo pode ser dividido em duas fases: (1) o cálculo da concentração de radão na atmosfera local, em que a fonte é definida como uma área de emissão, adoptando-se o modelo de "caixa" (ou compartimento) em estado estacionário com diluição do radão pelo vento e (2) a dispersão atmosférica, em que a fonte passa a ser considerada como uma emissão pontual, descrita pelo modelo da pluma Gaussiana, traduzindo a diluição pela dispersão atmosférica.

O modelo calcula a concentração máxima à "altura respirável" (direcção segundo z = 1,7 m) e que ocorre directamente abaixo da linha central da pluma (direcção segundo y = 0), em função da distância à fonte, para as diferentes categorias de estabilidade (6 classes), representando uma medida da mistura vertical na atmosfera, por convecção. O modelo utiliza os coeficientes de dispersão de Pasquill-Gifford permitindo seleccionar qualquer uma das classes de estabilidade atmosférica (A, B, C, D, E, F). Considera-se a velocidade do vento dentro de cada octante representativo da área contaminada. A distância da simulação varia entre 0 e 2000 metros. A plataforma do software é o Matlab.

3.5.1 Dados de entrada

Para a exploração do modelo são necessários os seguintes dados de entrada em cada fase da simulação.

Coeficiente de difusão para o radão (resíduo e cobertura)

- θ_{as} : volume de ar nos poros do material da cobertura, (cm³ ar / cm³ solo)
- ϵ_c : porosidade total da cobertura, (cm³ solo / cm³ solo)
- D_{ar} : coeficiente de difusão no ar, (m².s⁻¹)
- M_A : massa molar da espécie A, (g.mol⁻¹)
- M_B: massa molar da espécie B, (g.mol⁻¹)
- P: pressão, (atm)
- T: temperatura, (K)
- T_b: temperatura de ebulição, (K)
- σ^{2}_{AB} : comprimento característico, função do volume molal no ponto de ebulição, (Å)
- Ω : integral da colisão (-)
- V'_B : volume molal, (cm³.mol⁻¹).

Fluxo de radão libertado directamente para a atmosfera

- xt: espessura da camada de resíduo, (m)
- R: conteúdo de rádio no resíduo, (Bq.kg⁻¹)
- ρ_t : densidade do resíduo, (kg.m⁻³)
- E: coeficiente de emanação do radão, (-)
- λ : constante de decaimento radioactivo, (s⁻¹)
- ϵ_t : porosidade do resíduo, (-).

Fluxo de radão libertado através da cobertura por difusão

- x_c: espessura da camada de cobertura, (m)
- ϵ_c : porosidade do material da cobertura, (-).

Concentração de radão na atmosfera respirável

- L_x: extensão do local contaminado, (m)
- h: altura média respirável, (m)
- μ_{m} : velocidade média do vento, (m.s⁻¹).

Dispersão de radão na atmosfera pela pluma de Gauss

- σ_{v} : parâmetros de dispersão horizontal, (m)
- σ_z : parâmetros de dispersão na vertical, (m)
- y: distância horizontal transversal a partir do centro da pluma, (m)
- z: elevação da superfície, (m)
- A: área da fonte emissora, (m^2)
- α : ângulo de cada sector, (45 °)
- f: frequência do vento em cada direcção considerada, (-)
- y_s: valor de y na fronteira de cada sector, (m).

Depleção da pluma

- V_d : velocidade de deposição, (m.s⁻¹)
- φ: coeficiente de deposição por via húmida, (ano.m⁻¹.s⁻¹)
- L_d: altura da camada atmosférica estável, (m)
- P_r: precipitação, (m.ano⁻¹)
- μ_a : média aritmética da velocidade do vento, (m.s⁻¹)
- μ_r : média harmónica da velocidade do vento, (m.s⁻¹)
- λ_r constante de decaimento efectivo na pluma, (s⁻¹)
- V_g : velocidade gravitacional, (m.s⁻¹)
- x: distância na direcção do vento, (m).

3.5.2 1.º Caso de exploração

A primeira exploração do modelo foi feita para um caso teórico. A fonte de contaminação é representada pelos resíduos de uma escombreira com um sistema de cobertura. No local, a concentração de radão é gerada pelo decaimento radioactivo do rádio presente nos resíduos e é libertado para a atmosfera ocorrendo a partir daqui a

sua dispersão na direcção do vento. Como resultado obtém-se o fluxo de radão que se liberta do solo por difusão, a sua diluição na atmosfera local e a dispersão pelo vento quantificando os valores da concentração do radão no local à "altura respirável" e a sua distribuição resultante da dispersão ao longo de uma distância estipulada.

3.5.2.1 Coeficiente de difusão dos resíduos e da cobertura

O cálculo do coeficiente de difusão do radão no resíduo (D_t) é feito pelas expressões descritas na secção 3.2 substituindo os valores dos parâmetros referentes ao solo pelos valores dos parâmetros referentes ao resíduo. Foram feitas duas estimativas com valores diferentes de porosidades para a cobertura e para o resíduo que se apresentam na Tabela 3-7.

	Exemplo	Porosidade total	Volume de ar	D (m ² .s ⁻¹)
1.º	Resíduo	0,438	0,30	1,2979 x 10 ⁻⁶
	Cobertura	0,287	0,20	7,8350 x 10 ⁻⁷
2.º	Resíduo	0,30	0,207	8,0410 x 10 ⁻⁷
	Cobertura	0,30	0,207	8,0410 x 10 ⁻⁷

Tabela 3-7: Porosidade total e volume de ar para o material da cobertura e do resíduo.

3.5.2.2 Fluxo de radão libertado para o exterior por difusão

Para o cálculo do fluxo libertado consideraram-se três situações distintas e que abrangem as hipóteses possíveis: i) fluxo de radão libertado directamente dos resíduos para o ar sem sistema de cobertura; ii) fluxo de radão libertado para o ar com uma camada de cobertura e iii) fluxo de radão libertado com um sistema de cobertura de duas camadas.

No primeiro caso considera-se que a espessura dos resíduos é igual a 3 m; o conteúdo de rádio no resíduo é de 10 376 Bq.kg⁻¹; a densidade do resíduo é de 1600 kg.m⁻³, a porosidade total do resíduo é de 0,438 para o 1.º exemplo e 0,30 para o 2.º exemplo, o coeficiente de emanação para o radão é 0,2 e a constante de decaimento radioactivo para o radão é igual a 2,10 x 10⁻⁶ s⁻¹.

Os resultados obtidos para o 1.º exemplo e para o 2.º exemplo são, respectivamente: $J_t = 5,13$ Bq.m⁻².s⁻¹ e $J_t = 4,04$ Bq.m⁻².s⁻¹.

No segundo caso considera-se uma cobertura de material homogéneo, com 2 m de espessura, de forma a apresentar as seguintes características:

Coeficiente de difusão	D (m ² .s ⁻¹)
D _c (1.º exemplo)	7,835 x 10 ⁻⁷
D _c (2.º exemplo)	8,041 x 10 ⁻⁷
Porosidade	(%)
ϵ_{c} (1.º exemplo)	0,287
	1

Tabela 3-8: Características do material de cobertura.

Obteve-se um fluxo igual a 0,131 Bq.m⁻².s⁻¹ para o 1.º exemplo e igual a 0,159 Bq.m⁻².s⁻¹ no segundo exemplo. O fluxo libertado diminui consideravelmente para ambos os exemplos em que se considerou a existência da camada de cobertura.

Se for aceitável um fluxo superior ao obtido, podemos repetir os cálculos com uma espessura da cobertura menor ou determinar a espessura necessária para permitir apenas o valor de um fluxo imposto. Os resultados obtidos nestas condições para o primeiro exemplo e para o segundo exemplo foram, respectivamente, $x_c = 94,73$ cm e $x_c = 105,1$ cm, respeitando um fluxo imposto de 0,74 Bq.m⁻².s⁻¹. Assim, com uma camada de espessura inferior à inicialmente considerada (2 m), é possível limitar o fluxo libertado para o valor que constitui a referência da libertação máxima de radão em presença de um sistema eficaz de armazenamento de resíduos radioactivos.

No terceiro caso considera-se um sistema de cobertura com duas camadas semelhante ao representado na Figura 3-4. O objectivo é dimensionar um sistema de cobertura com várias camadas para cobrir os resíduos. É necessário efectuar os cálculos anteriores para cada camada que compõe o sistema.

Considerou-se a aplicação de uma camada de argila com 50 cm e uma camada de material da decapagem limpo, com espessura suficiente para apenas permitir um fluxo médio à superfície de 0,74 Bq.m⁻².s⁻¹. O fluxo através do resíduo sem cobertura (J_t) já foi calculado no exemplo anterior e é igual a 5,13 Bq.m⁻².s⁻¹.

De seguida, é necessário calcular a espessura das duas camadas (x_{c1} , x_{c2}). Os valores dos parâmetros básicos necessários à simulação encontram-se na Tabela 3-9:

Parâmetros	D (m ² .s ⁻¹)	3	М	m
Resíduo (t)	1,2979 x 10 ⁻⁶	0,438	11,7	0,4
Argila (c ₁)	7,8350 x 10 ⁻⁷	0,287	6,3	0,4
Material inerte (c ₂)	2,2083 x 10 ⁻⁶	0,37	5,4	0,25

Tabela 3-9: Parâmetros necessários ao sistema de cobertura com duas camadas.

Para estimar o fluxo libertado dos resíduos bem como de cada camada do sistema de cobertura deve-se seguir a metodologia já descrita.

- Cálculo da atenuação do fluxo (J_{c1}) através da camada de argila: $J_t = 5,13$ $(Bq.m^{-2}.s^{-1}) e J_{c1} = 1,63 (Bq.m^{-2}.s^{-1}).$
- Cálculo do coeficiente de difusão equivalente (D_{t1}) da fonte para o material inerte de cobertura. A camada de resíduo e a camada de argila passam a constituir a nova fonte e a sua espessura passa a ser a soma das duas (3 + 0,5 = 3,5 m). O coeficiente de difusão para a nova fonte (D_{t1}) é 1,06 x 10⁻⁶ m².s⁻¹.
- O valor de D_{t1} é substituído por D_t e J_{c1} = 1,63 Bq.m⁻².s⁻¹ é substituído por J_t e a espessura de material inerte constituinte da 2.ª camada da cobertura é igual a x_{c2} = 102 cm.
- A espessura total da cobertura obtém-se somando a espessura de cada uma das camadas do sistema de cobertura: 102 + 50 = 152 cm.

Este exemplo não pressupõe qualquer fluxo de radão proveniente do rádio na cobertura. No entanto, quando existe contaminação na cobertura, o fluxo resultante é muito pequeno e pode ser adicionado ao calculado, não alterando significativamente o resultado (NUREG, 1984).

Se aplicarmos a mesma metodologia ao 2.º exemplo, em que a porosidade do resíduo é igual à porosidade da cobertura ($\varepsilon_c = \varepsilon_t = 0,30$), obtemos os valores descritos na Tabela 3-10, para o fluxo através dos resíduos sem cobertura (J_t), a atenuação do fluxo através de uma camada de cobertura de 50 cm de argila (J_{c1}), e a espessura necessária de uma cobertura de com duas camadas (argila + material inerte) para permitir apenas um fluxo de 0,74 Bq.m⁻².s⁻¹ (J_{c2}).

Fluxo	(Bq.m ⁻² .s ⁻¹)
Jt	5,13
J _{c1}	1,63
J _{c2}	0,74
Espessura	(cm)
X _{c1}	50
X _{c2}	115,79
X _{c (total)}	165,79

Tabela 3-10: Fluxo e espessura de cada camada.

3.5.2.3 Cálculo da concentração de radão na atmosfera respirável

A exploração deste modelo baseou-se numa área de libertação rectangular representando a soma de várias fontes de emissão pontuais. A extensão do local contaminado é de 400 m (L_x: extensão da zona de mistura) e a altura da mistura atmosférica é de 1,70 m (h: altura respirável ou de inalação). A velocidade do vento é considerada constante dentro deste compartimento e tem um valor médio igual a 4,4 m.s⁻¹ (μ_m). A concentração na atmosfera local originada pelo fluxo que se liberta através dos resíduos sem cobertura é dada por C_t, a concentração gerada pelo fluxo de resíduos através da camada de cobertura de argila, com espessura de 50 cm, é dada por C_{c1} e a concentração gerada pelo fluxo libertado, através de um sistema de cobertura de duas camadas (argila + material inerte da decapagem), é dado por C_{c2}. A simulação foi feita para os dois exemplos da Tabela 3-7. Os resultados encontram-se representados na Tabela 3-11.

Resultados	C, Concentração no local (Bq.m ⁻³)
1.º	C _t = 274,55
	C _{c1} = 87,30
	C _{c2} = 39,57
2.º	C _t = 216,28
	$C_{c1} = 96,41$
	C _{c2} = 39,57

Tabela 3-11: Concentração na atmosfera local.

3.5.2.4 Dispersão de radão na atmosfera pela pluma de Gauss

A partir da concentração de radão na atmosfera local é possível determinar a potência da fonte, Q, para os dois exemplos considerados. Os parâmetros necessários encontram-se descritos na Tabela 3-12.

Tabela 3-12: Parâmetros necessários para a estimativa da potência da fonte.

Parâmetros	Valores
µ _m (m.s⁻¹)	4,4
A (m²)	60 000
z (m)	1,70
μ (m/s)	[4,5278; 6,5556; 4,3889; 3,1944; 3,7778; 4,0556; 4,6667; 3,9444; 4,5278]
f (-)	[0,0288; 0,1703; 0,0440; 0,0426; 0,1181; 0,3503; 0,1964; 0,045; 0,0288]

A velocidade média do vento (μ , m/s) é apresentada para cada rumo (8 direcções) com a respectiva frequência de ocorrência desse rumo (f, %). Os rumos considerados são: N S E W NW NE SE SW. Repetiu-se no final do intervalo a velocidade e frequência do primeiro rumo para fechar o octógono representativo da área que representa a fonte de libertação.

Analogamente, a potência da fonte originada pelos resíduos sem cobertura é dada por Q_t , pelo fluxo através de uma camada de argila de 50 cm é dada por Q_{c1} e a originada pelo fluxo através de um sistema de cobertura de duas camadas (argila + material inerte da decapagem) é dada por Q_{c2} (Tabela 3-13).

Resultados	Q, Potência da fonte (Bq.s ⁻¹)
1.º	$Q_t = 3,08 \times 10^5$
	$Q_{c1} = 8,83 \times 10^4$
	$Q_{c2} = 4,44 \times 10^4$
2.º	$Q_t = 2,43 \times 10^5$
	$Q_{c1} = 1,08 \times 10^5$
	$Q_{c2} = 4,44 \times 10^4$

Tabela 3-13: Potência da fonte para cada caso considerado.

A potência da fonte vai ser o ponto de partida para a dispersão do radão em cada octante segundo a respectiva direcção do vento. Simulou-se esta dispersão apenas para o 1.º exemplo da Tabela 3-7 (porosidade do resíduo = 0,438), considerando as duas situações: a 1.ª sem cobertura e a 2.ª com um sistema de cobertura de duas camadas, constituída por argila, ($\varepsilon_{c1} = 0,287$) e material inerte da decapagem ($\varepsilon_{c2} = 0,37$), segundo cada uma das categorias de estabilidade de Pasquill. O valor mais elevado para a dispersão, em função das diferentes categorias de estabilidade, encontra-se na Tabela 3-14 consoante se considere a existência ou não de cobertura.

Tabela 3-14: Dispersão em função da categoria de estabilidade atmosférica.

Sem cobertura	Α	В	С	D	Е	F
X _{ar} (Bq.m ⁻³)	2,05	3,41	5,22	7,96	14,28	22,94
Com cobertura						
X _{ar} (Bq.m ⁻³)	0,295	0,492	0,755	1,143	2,057	3,578

Se consideramos que não há cobertura, o fluxo de radão libertado é superior e, consequentemente, a quantidade disponível para a dispersão. No caso de existir uma

cobertura, ocorre a atenuação do fluxo libertado, diminuindo a quantidade de radão disponível para a dispersão.

Em ambos os casos considerados (com ou sem cobertura), os valores mais elevados para a concentração ao nível médio do solo verificam-se na categoria F. Esta categoria de estabilidade ocorre predominantemente durante a noite. As categorias A e B apresentam os valores mais baixos. Os valores das categorias C e D são inferiores às categorias E e F e superiores aos valores das categorias A e B. A categoria D (neutra) abrange características meteorológicas bastante vastas e os valores da velocidade do vento utilizados para esta simulação aproximam-se bastante do espectro de velocidades que caracterizam esta categoria de estabilidade (EPA, 2000a).

Das seis categorias de estabilidade exploradas, a categoria F apresenta os valores mais elevados para dispersão de radão na atmosfera. Embora estejam associados a esta categoria os valores mais baixos de σ_z , este parâmetro é inversamente proporcional à dispersão atmosférica, pelo que gera os valores mais elevados. A dispersão do radão é inversamente proporcional ao parâmetro que caracteriza cada categoria de estabilidade, ou seja ao desvio padrão σ_z .

A análise destas considerações e destes valores tiveram na origem da escolha das categorias F e D para o seguimento da exploração dos modelos, isto porque a categoria F representa o pior cenário para todos os parâmetros estudados e a categoria D abrange condições meteorológicas bastante vastas, sendo a sua probabilidade de ocorrência bastante elevada relativamente às outras categorias. No entanto, embora a categoria F represente o pior cenário, em termos de valores de concentração e fluxo de radão, esta categoria de estabilidade ocorre especificamente durante a noite, logo, o período de exposição durante o dia será sempre superior, uma vez que se considerou que receptor estará permanentemente em exposição. Por outro lado, os dados da velocidade do vento utilizados enquadram-se nas velocidades para as categorias de estabilidade C ou D, afastando-se muito das velocidades típicas das categorias A, B, E e F.

3.5.3 2.º Caso de exploração

Numa segunda abordagem do modelo adoptaram-se alguns valores referentes a um local em particular, as escombreiras da mina da Urgeiriça, nomeadamente os valores do fluxo médio de radão publicados por Reis et al. (2000) referentes à barragem velha de rejeitados da Urgeiriça.

Considerou-se que a área contaminada a estudar é constituída por 4 zonas de armazenamento de resíduos com características diferentes, identificadas por B_1 , B_2 , B_3 e B_4 . A área correspondente a cada uma das zonas foi calculada por aproximação. Definiram-se as coordenadas do ponto central de cada uma das áreas que representam a fonte pontual de emissão. Estipulou-se que todas as zonas têm uma altura de 15 m (x_t) e uma cobertura de 1,2 m de solo limpo (x_c).

Pressupõe-se que o material presente nas diferentes zonas apresenta actividade diferente consoante o teor do minério em que tiveram origem e o rendimento do processo de tratamento a que o mesmo foi submetido: um minério pobre com teor de 0,2 kg/t lixiviado a 100 % e um minério com teor de 1 kg/t lixiviado a 90 %. Isto significa que, no primeiro caso, os radionuclídeos solúveis foram removidos totalmente e não se encontram presentes no resíduo sólido e que, no segundo caso, apenas 10 % dos radionuclídeos solúveis irão para o resíduo.

Local	Área (m²)	Coordenadas (x, y), m
B ₁	28 255	(20 456,93 288)
B ₂	37 622	(20 540,93 200)
B ₃	26 476	(20 580,93 356)
B ₄	17 969	(20 872,93 460)
Total	110 321	

Tabela 3-15: Área de cada zona a estudar e a respectiva coordenada do ponto médio.

3.5.3.1 A actividade de rádio gerada pela cadeia do ²³⁸U

A actividade no material do resíduo foi calculada com base no modelo apresentado no capítulo 2. Fez-se corresponder às zonas B_1 , $B_2 e B_3$, os resíduos do tratamento do minério de urânio com teor igual a 1 kg/ton, lixiviado a 90 %, e à zona B_4 os resíduos do tratamento do mesmo minério, mas com teor igual a 0,2 kg/ton e lixiviado a 100 %. A actividade resultante para cada área encontra-se representada na Tabela 3-16.

Local	Teor do minério	Rendimento da lixiviação	Actividade
	(kg/ton)	(%)	(Bq/kg)
B ₁	1	90	10 376
B ₂	1	90	10 376
B ₃	1	90	10 376
B_4	0,2	100	2 075

Tabela 3-16: Actividade estimada para cada uma das zonas consideradas.

3.5.3.2 Cálculo de coeficiente de difusão para o radão

Para estimar o fluxo de radão para a atmosfera é necessário calcular o coeficiente de difusão do radão no material do resíduo que depende do coeficiente de difusão do radão no ar, D_{ar}. Este coeficiente foi calculado através do método de Wilke & Lee (Lyman, 1990) com os parâmetros de entrada descritos na Tabela 3-17.

Parâmetros de entrada	Valores	Parâmetros de entrada	Valores
ϵ_t (resíduos), %	0,438	V _B ' (cm ³ .mol ⁻¹)	22,818
θ_t (resíduos), %	0,30	(ε/k) _A (K)	78,6
ϵ_{c} (cobertura), %	0,37	а	1,06036
θ_{c} (cobertura), %	0,318	b	0,15610
M _A (g.mol ⁻¹)	28,97	С	0,19300
M _B (radão) (g.mol⁻¹)	222,02	d	0,47635
P (atm)	1	е	1,03587
Т (К)	273	f	1,52996
T _b (K)	211,4	g	1,76474
σ _A (Å)	3,711	h	3,89411

Tabela 3-17: Parâmetros de entrada necessários à estimativa do coeficiente de difusão no ar.

Na Tabela 3-18 são apresentados os resultados do coeficiente de difusão no ar para o radão obtidos com estes valores de entrada.

Parâmetros calculados	Valores
B (constante)	2,0712 x 10 ⁻³
Ω (-)	1,0801
(ω/k) _{AB} (K)	138,23
(ω/k) _B (K)	243,11
σ _{AB} (Å)	3,5289
σ _B (Å)	3,3469
T* (K)	1,9749

Tabela 3-18: Parâmetros estimados para o cálculo do coeficiente de difusão no ar.

O valor obtido para o coeficiente de difusão no ar é igual a 1,372 x 10^{-5} m².s⁻¹ e vai ser o valor a usar nos cálculos do coeficiente de difusão na cobertura (D_c) e nos resíduos (D_t). Na bibliografia consultada (Yu, 1993) é indicado o valor de 1,1 x 10^{-5} m².s⁻¹ para a difusão do radão em ar aberto. Comparando este valor, determinado experimentalmente, com o valor calculado verifica-se um ligeiro desvio entre os dois valores. Os resultados obtidos para o coeficiente de difusão, na cobertura e nos resíduos, respectivamente, são:

Tabela 3-19: Coeficiente de difusão para a cobertura e para os resíduos (método Wilke & Lee).

Coeficiente de difusão	(m ² .s ⁻¹)
D _c	2,2083 x 10 ⁻⁶
D _t	1,2979 x 10 ⁻⁶

O passo seguinte é estimar o fluxo de radão que se liberta para o exterior. Os parâmetros de entrada para calcular o fluxo de radão são os seguintes:

Tabela 3-20: Parâmetros de entrada necessários para estimar o fluxo libertado para o exterior.

Parâmetros de entrada	Valores
A (Bq.kg ⁻¹) - B ₁ = B ₂ = B ₃	10 376
A (Bq.kg ⁻¹) - B ₄	2 075
x _t (m)	15
x _c (m)	1,2
λ (²²² Rn) (s ⁻¹)	2,10 x 10 ⁻⁶
E (-)	0,25
$\rho_t (kg/m^3)$	1600

O parâmetro E representa o coeficiente de emanação de radão e pode ser definido como sendo a fracção de átomos que, após libertação, fica disponível para se

difundir, ou seja, representa a razão entre a quantidade de radão que se liberta das partículas e a que é gerada por desintegração do rádio. Adoptou-se um valor igual a 0,25 (Yu, 1993).

O fluxo que se liberta através do resíduo, J_t , e através da cobertura, J_c , em cada uma das zonas para a espessura considerada, encontra-se representado na Tabela 3-21.

Local	J _t (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	J _c (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)
B ₁	6,852	2,219
B ₂	6,852	2,219
B ₃	6,852	2,219
B ₄	1,370	0,444

Tabela 3-21: Fluxo de radão que se liberta em cada área considerada.

O fluxo de radão que se liberta depende directamente da porosidade do material e, consequentemente, do coeficiente de difusão. A humidade da cobertura é um parâmetro dominante que também afecta o coeficiente de difusão e influencia a atenuação do radão. No caso de não haver cobertura, o fluxo obtido varia segundo a porosidade do resíduo: quanto mais poroso, maior o coeficiente de difusão e maior é o fluxo que se liberta para a atmosfera. O fluxo gerado pelo minério pobre não tratado é inferior ao gerado pelos resíduos do minério rico. A cobertura de 1,2 m de solo limpo permitiu uma atenuação de cerca de 32% do fluxo libertado.

Considerou-se até agora a emissão pontual de quatro fontes de contaminação, georeferenciadas segundo o ponto médio de cada área, obtendo-se quatro fluxos de radão. O modelo vai associar as quatro fontes pontuais, passando a ser uma só fonte de emissão, com ponto médio central dado pela coordenada (x, y) resultante da média aritmética das coordenadas de cada uma das fontes pontuais (Tabela 3-22).

Local	Coordenadas (x, y), m
B ₁	(20 456,93 288)
B ₂	(20 540,93 200)
B ₃	(20 580,93 356)
B ₄	(20 872,93 460)
Coordenada média	(20 612,93 326)

Tabela 3-22: Média das coordenadas de cada área considerada.

A área total contaminada a considerar (A) será a soma das 4 áreas parcelares e igual a 110 321 m², e o fluxo total que se liberta desta nova área é dado pelo quociente entre a massa total de radão que se liberta ($J_1.A_1 + J_2.A_2 + J_3.A_3 + J_4.A_4$) e a área total ($A_1 + A_2 + A_3 + A_4$).

A potência da fonte, Q (Bq.s⁻¹) é dada pelo produto da área total pelo fluxo total e representa a radiação libertada em toda a zona contaminada. Os resultados obtidos para o fluxo total e para a potência da fonte para os resíduos e para a cobertura encontram-se representados na Tabela 3-23.

Tabela 3-23: Fluxo total (J) e potência da fonte (Q) para os resíduos (t) e para a cobertura (c).

Material	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	Q (Bq.s ⁻¹)
Resíduos (t)	5,9591	6,5742 x 10 ⁵
Cobertura (c)	1,9299	2,1291 x 10 ⁵

3.5.3.3 A concentração de radão na atmosfera respirável

Definiu-se uma área contaminada de 110 321 m² que corresponde à área definida pela geometria de um polígono regular, dividido em 8 partes iguais ou sectores, constituindo o octógono já referido na secção anterior. Cada sector é caracterizado pela velocidade média do vento com diferentes concentrações de radão segundo a direcção do vento associada a cada sector (N S E W NW NE SE SW).

As dimensões da área contaminada são definidas pela área do octógono, pelo comprimento de cada um dos 8 lados e pelo raio da circunferência circunscrita ao polígono e que juntamente com a altura de mistura, h, definem o volume no qual toda a emissão é uniformemente misturada o que resulta numa emissão uniforme em toda a área contaminada.

A concentração de radão na atmosfera local, à altura de mistura, h, ou seja a altura média respirável (1,7 m), vai descrever a concentração de radão que se liberta e que se dilui pela velocidade média do vento, μ_m (constante), até à altura h, em toda a área constituída pelos 8 sectores.

A velocidade média do vento a adoptar na zona de mistura deverá ser a média do espectro de velocidades anual ponderada pela sua frequência (f) segundo a direcção associada a cada octante.

Parâmetros	Valores
A (m ²)	110 321
L _x (m)	151,16 ³
h (m)	1,7
μ (m/s)	[4,5278;6,5556;4,3889;3,1944;3,7778;4,0556;4,6667;3,9444]
f (-)	[0,0288; 0,1703; 0,0440; 0,0426; 0,1181; 0,3503; 0,1964; 0,045]
Direcção	N S E W NW NE SE SW
μ_m (m/s)	4,557

Tabela 3-24: Parâmetros locais necessários à estimativa da concentração de radão.

Se não houver camada de cobertura, a concentração de radão no exterior na atmosfera local à altura média respirável, é dada por C_t. No caso de se considerar a existência de uma camada de cobertura, a concentração resultante do fluxo que atravessa a cobertura, é dada por C_c. Os resultados obtidos no modelo para estes dois parâmetros são: C_t = 70,171 (Bq.m⁻³) e C_c = 22,725 (Bq.m⁻³).

A direcção NE representa a orientação segundo a qual a respectiva velocidade se verifica com maior frequência ao longo do ano, o que significa que esta é a direcção dominante do vento no espectro de velocidades considerado. A concentração à altura respirável, h, na direcção dominante do vento corresponde apenas ao lado do octógono que limita o sector que apresenta esta direcção do vento (apenas se considera um lado). A velocidade média do vento na direcção dominante e que foi usada no cálculo C_t e de C_c, corresponde a 4,0556 m/s. Os resultados obtidos no modelo para estes dois parâmetros na direcção dominante do vento são: C_t = 630,83 (Bq.m⁻³) e C_c = 204,30 (Bq.m⁻³).

3.5.3.4 Dispersão de radão na atmosfera pela pluma de Gauss

Após a libertação de radão para a atmosfera vai ocorrer a sua dispersão pelo vento a partir da fonte de emissão que se considerou estar localizada no centro da área contaminada localizada pela coordenada média do seu ponto central.

A concentração originada pela dispersão vai ser diferente em cada sector de acordo com os diferentes valores da velocidade do vento (μ_m) e as respectivas frequências (f) de cada um dos octantes que constituem a área contaminada. A Figura 3-13 e a Figura 3-14 representam a dispersão do radão desde a fonte de emissão até

³ Comprimento do lado do octógono para a área de 110 321 m².

a uma distância x, que se definiu ser de 2 km, em cada direcção do vento. As figuras contemplam a exploração com e sem camada de cobertura, respectivamente.



Figura 3-13: Dispersão de radão em cada direcção do vento (com cobertura), (Bq.m⁻³).





No caso da dispersão na direcção dominante do vento, estamos a considerar que a dispersão apenas ocorre no lado do octógono associado a esta direcção, NE. Isto significa que toda a emissão de radão desde o centro até ao limite do octógono é constante e igual à concentração à altura média respirável para um só lado. A sua

dispersão só ocorre a partir deste limite, tendo como ponto central o alinhamento definido pela direcção NE, sendo nula nas restantes direcções e nos sectores definidos por estas. Também em toda a extensão do lado do octógono, a concentração de radão é constante e igual à concentração à altura de 1,7 m até cerca de 200 m na horizontal.

É possível associar ao modelo da dispersão na direcção dominante do vento o modelo da "caixa" (ou compartimento), em que a fonte disponível para a dispersão é definida como uma área de emissão e não por um ponto como acontecia no caso anterior. A área é representada por um compartimento rectangular, com concentração homogénea e constitui a soma de várias fontes pontuais. As dimensões consideradas para a área de emissão, a partir da qual ocorre a dispersão, são dadas pela largura de 200 m e pelo comprimento igual ao lado do octógono.

A Figura 3-15 e a Figura 3-16 representam a dispersão do radão na direcção dominante do vento desde a fonte de emissão até uma distância de 2 km. As figuras contemplam os dois casos de exploração com e sem camada de cobertura, respectivamente.



Figura 3-15: Dispersão de radão na direcção dominante do vento (com cobertura), (Bq.m⁻³).



Figura 3-16: Dispersão de radão na direcção dominante do vento (sem cobertura), (Bq.m⁻³).

3.5.4 3.º Caso de exploração

No 3.º caso de exploração foram efectuadas sucessivas modelagens inversas para definir os valores dos parâmetros que deram origem ao fluxo de radão, que se liberta em cada uma das zonas, publicado por Reis et al. (2000).

Os resultados obtidos no estudo efectuado pelo Instituto Tecnológico e Nuclear (ITN) resultaram de uma primeira avaliação efectuada na barragem velha de rejeitados da mina da Urgeiriça (BV) com detectores sólidos de traço (detectores passivos). Os fluxos médios anuais medidos para o fluxo de exalação de radão nas diferentes zonas encontram-se representados na Tabela 3-25, (Reis et al., 2000).

Local	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹) – valores médios anuais
B ₁	0,288
B ₂	0,163
B ₃	0,206
B_4^4	0,156

Tabela 3-25: Fluxo de radão medido nas diferentes zonas da BV da Urgeiriça.

A expressão apresentada em Reis et al. (2000) para o cálculo do fluxo de radão pressupõe que não existe camada de cobertura sobre o material depositado na

⁴ Identificada no relatório do ITN com o n.º 8.

barragem velha de rejeitados ou que esta pode ser desprezada. Fazendo uma modelagem inversa tendo como partida o fluxo de radão medido e sabendo a actividade em rádio que lhe deu origem, calculou-se os respectivos coeficientes de difusão, D, pela expressão (3-91):

$$D = \left(\frac{J}{R\rho E}\right)^2 \cdot \frac{1}{\lambda}$$
(3-91)

Aplicando esta expressão a cada uma das zonas em estudo, obtiveram-se os seguintes fluxos:

Local	R (Bq/kg)	ρ (kg/m³)	E (-)	D (m ² .s ⁻¹)
B ₁	47 000	1600	0,25	1,12 x 10 ⁻¹⁰
B ₂	8 000	1600	0,25	1,24 x 10 ⁻⁹
B ₃	8 000	1600	0,25	1,97x 10 ⁻⁹
B ₄	2 000	1600	0,25	1,81 x 10 ⁻⁸

Tabela 3-26: Coeficiente de difusão para o radão estimado com a expressão (3-91).

Fez-se ainda uma modelagem inversa para calcular o valor de m, a percentagem de humidade do solo (% em peso seco) adaptando a seguinte expressão empírica em função do coeficiente de difusão (Reis et al., 2000):

$$D = 1.06 \times 10^{-5} e^{(-0.261 \cdot m)}$$
(3-92)

$$m = -\frac{1}{0,261} \cdot \left[\ln(1,06x10^{-5}) + \ln(D) \right]$$
(3-93)

Os resultados obtidos encontram-se representados na Tabela 3-27.

Tabela 3-27: Humidade do solo, *m*, estimada pela expressão empírica (3-93).

Local	m (% em peso)
B ₁	43,91
B ₂	34,70
B ₃	32,91
B ₄	24,41

Os valores apresentados em Reis et al. (2000) resultaram da determinação da humidade em amostras de solo colhidas numa camada de 10 cm de profundidade, as quais foram posteriormente secas a 110°C, e determinada a percentagem de

humidade do solo. Estes valores obtidos experimentalmente são ligeiramente diferentes dos valores calculados. Os resultados encontram-se na Tabela 3-28.

Local	m (% em peso)
B ₁	27 - 38
B ₂	1 - 33
B ₃	1 - 33
B ₄	_5

Tabela 3-28: Humidade do solo, *m*, determinada experimentalmente.

Tentou-se adaptar os parâmetros físicos do solo do local em estudo, nomeadamente para a humidade (% em peso ou % em saturação), aos modelos já desenvolvidos. Na estimativa do coeficiente de difusão, as variações mais significativas são dadas pela porosidade total (ϵ) e pelo volume de ar (θ) tendo-se adoptado para estes parâmetros os valores da Tabela 3-29 para cada uma das zonas.

Tabela 3-29: Porosidade total (ϵ) e volume de ar (θ) no material de cada zona.

Local	ϵ (cm ³ - solo/cm ³ – solo)	θ (cm ³ – ar/ cm ³ - solo)	D (m ² .s ⁻¹)
B ₁	0,46	0,0186	1,12 x 10 ⁻¹⁰
B ₂	0,46	0,0383	1,24 x 10 ⁻⁹
B_3	0,46	0,0440	1,97 x 10 ⁻⁹
B ₄	0,46	0,0857	1,81 x 10 ⁻⁸

Considerou-se que a porosidade total é igual em todas as zonas obtendo-se assim os mesmos coeficientes de difusão de Reis et al. (2000) e portanto os mesmos valores para o fluxo de radão.

Efectuou-se a exploração dos modelos de dispersão com os fluxos determinados em Reis et al. (2000) adoptando as áreas do 1.º caso de exploração, bem como as coordenadas do ponto médio de cada área.

O fluxo total obtido para uma só fonte de emissão, representativa das quatro áreas iniciais, é igual a J = 0,2042 Bq.m⁻².s⁻¹. A concentração de radão à altura média respirável é C = 2,4045 Bq.m⁻³ e a dispersão segundo cada direcção do vento e em cada sector encontra-se representada na Figura 3-17.

⁵ Não há referência para esta zona.



Figura 3-17: Dispersão de radão em cada direcção do vento, (Bq.m⁻³).

A concentração de radão na direcção dominante do vento, NE, é igual a 21,616 Bq.m⁻³ e a dispersão segundo esta mesma direcção encontra-se representada na Figura 3-18.



Figura 3-18: Dispersão de radão na direcção dominante do vento, (Bq.m⁻³).

Por fim, aplicaram-se alguns valores do 2.º caso de exploração ao 1.º caso fazendo a exploração do 1.º caso teórico com os coeficientes de difusão determinados para o 2.º caso de exploração a partir dos valores medidos da humidade no solo (Tabela 3-30).

Local	ϵ (cm ³ - solo/cm ³ – solo)	θ (cm ³ – ar/cm ³ -solo)	D (m ² .s ⁻¹)
B ₁	0,46	0,0383	1,24 x 10 ⁻⁹
B ₂	0,46	0,0383	1,24 x 10 ⁻⁹
B ₃	0,46	0,0383	1,24 x 10 ⁻⁹
B ₄	0,46	0,0857	1,81 x 10 ⁻⁸

Tabela 3-30: Coeficientes de difusão determinados para o 2.º caso de exploração a partir dos valores da humidade no solo obtidos experimentalmente.

O fluxo de radão obtido para cada uma das zonas consideradas encontra-se representado na Tabela 3-31.

Tabela 3-31: Fluxo de radão estimado com os valores da Tabela 3-30.

Local	R (Bq/kg)	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)
B ₁	10376	0,2119
B ₂	10376	0,2119
B ₃	10376	0,2119
B ₄	2075	0,8101

O fluxo total (J) é igual a 0,3093 (Bq.m⁻².s⁻¹), a potência da fonte (Q) é igual a 3,4126 x 10^4 (Bq.s⁻¹) e a concentração à altura de 1,7 m para a área total (C₀), em cada direcção do vento é igual a 3,6425 (Bq.m⁻³). A dispersão destes valores encontrase representada na Figura 3-19.



Figura 3-19: Dispersão de radão em cada direcção do vento, (Bq.m⁻³).

Na direcção dominante do vento, o fluxo total (J) é igual a 0,3093 (Bq.m⁻².s⁻¹), a potência da fonte (Q) é igual a 3,4126 x 10^4 (Bq.s⁻¹) e a concentração à altura de 1,7 m (C₀) é igual a 32,7459 (Bq.m⁻³). A dispersão destes valores encontra-se representada na Figura 3-20.



Figura 3-20: Dispersão de radão na direcção dominante do vento, (Bq.m⁻³).

3.5.5 4.º Caso de exploração

Este caso de exploração refere-se ao mesmo local de estudo do caso anterior mas os dados a usar têm origem diferente tendo sido cedidos pela EXMIN (2003).

Com os valores de alguns parâmetros medidos localmente tentou-se relacionar o mais possível a exploração do modelo atmosférico com o local em estudo. Assim, foi necessário estimar a área correspondente a cada zona individualizada de acordo com o teor em rádio (Bg/kg), estimar a concentração média para cada uma destas zonas, converter as coordenadas de UTM obtidas pelo GPS em coordenadas militares M e P (meridiano e paralelo) para a representação espacial da concentração de radão, determinar a coordenada média que teoricamente representará o ponto médio de cada zona definida e finalmente adaptar os valores de humidade georeferenciados, determinados em % do peso húmido, nas unidades necessárias para estimar o coeficiente de difusão do radão. As etapas seguidas podem ser sintetizadas da seguinte forma:

- Determinar a área a que corresponde zonas com diferentes teores em rádio.
 Consideraram-se 7 áreas e que se identificam por: A₁, B₁, B₂, B₃, B₄, B₅ e B₆;
- Determinar o teor médio em rádio para cada área;
- Transformar as coordenadas UTM em coordenadas militares M e P;
- Determinar a coordenada do ponto médio;
- Converter os valores da humidade de % em peso húmido nas unidades necessárias, consoante a expressão a usar no cálculo do coeficiente de difusão do radão;
- Determinar o coeficiente de difusão do radão;
- Determinar o fluxo médio do radão em cada zona;
- Determinar o fluxo médio do radão para toda área contaminada, a concentração ao nível médio do solo e a sua dispersão espacial.

3.5.5.1 Área de cada zona, teor médio em rádio e coordenada do ponto médio

A área das zonas B₁, B₂, B₃, B₄, B₅ e B₆ foi estimada geometricamente através da representação cartográfica da barragem velha da Urgeiriça (EXMIN, 2003). A área da zona A₁ foi estimada por diferença entre a área total da escombreira velha (133 000 m²) e a soma das áreas das zonas B₁, B₂, B₃, B₄, B₅ e B₆ (22 425 m²). O teor médio em rádio para cada área foi estimado a partir dos teores obtidos nas sondagens efectuadas pela EXMIN (2003) em cada uma destas áreas. Foram efectuadas 10 sondagens na área total da escombreira numeradas de 1 a 10.

Γabela 3-32: Actividade média do ²²⁶ Ra (Bq.kg ⁻¹) determinada nas amostras colhidas nas
sondagens efectuadas na barragem velha da Urgeiriça (EXMIN, 2003).

Sondagem	Actividade ²²⁶ Ra (Bg.kg ⁻¹)	M (X)	P (Y)
S ₁	21500	20 563,45	93 230,73
S ₂	3440	20 530,08	93 130,91
S_3	27200	20 474,10	93 160,93
S_4	60025	20 432,79	93 242,90
S_5	66600	20 465,70	93 279,08
S_6	6355	20 506,47	93 224,34
S ₇	16700	20 543,81	93 310,01
S ₈	39850	20 568,87	93 340,62
S ₉	3360	20 616,59	93 531,57
S ₁₀	16167	2 0641,29	93 609,99



Figura 3-21: Localização dos furos de sondagens na barragem velha da Urgeiriça.

A correspondência entre cada uma das sondagens e as áreas definidas e o respectivo teor médio em rádio encontram-se na Tabela 3-33 (EXMIN, 2003):

Área	Sondagem	Actividade média em ²²⁶ Ra (Bg.kg ⁻¹)
A ₁	S ₆ e S ₂	4898
B ₁	S ₁₀	9764
B ₂	S ₉	9764
B ₃	S ₇ e S ₈	28275
B ₄	S ₁	21500
B ₅	S ₃	27200
B ₆	S ₅ e S ₄	63312

Tabela 3-33: Actividade média do ²²⁶Ra (Bq.kg⁻¹) em cada área a estudar.

As coordenadas foram convertidas de UTM (aferidas ao *Datum* Europeu de 1950) em coordenadas militares Meridiano e Paralelo com recurso aos utilitários da página do Instituto Geográfico do Exército (IGeoE).

Designação	A (m²)	Rádio (Bg.kg⁻¹)	UTM (X)	UTM (Y)	M (X)	P (Y)
A ₁	110575	4898	594072	4484998	20512	93321
B ₁	1575	9764	594197	4485300	20640	93621
B ₂	1575	9764	594175	4485244	20618	93566
B ₃	2750	28275	594128	4485018	20581	93340
B ₄	6825	21500	594121	4484867	20560	93189
B ₅	4075	27200	594050	4484852	20489	93175
B ₆	5625	63313	594005	4484953	20445	93276
B total	22425					
Área total	133000					

Tabela 3-34: Localização do ponto médio de cada área, em coordenadas UTM (aferidas ao *Datum* Europeu de 1950) e em coordenadas militares M e P (meridiano e paralelo).

Em trabalhos anteriores, Faísca e al. (1999) efectuaram medições em dois locais distintos da escombreira velha, em quatro alturas do ano e obtiveram actividades em rádio da ordem dos 47 000 Bq/kg para um dos locais (que corresponderá à zona $B = B_1 + B_2 + B_3 + B_4 + B_5 + B_6$) e actividades em rádio da ordem dos 8 000 Bq/kg para o outro local (que corresponderá à zona A₁).

Outros autores, nomeadamente, Reis et al. (2000) subdividiram a barragem velha em 5 zonas numeradas de 1 a 5 em que a primeira área apresenta actividade em rádio da ordem de 47 000 Bq/kg, as áreas 2 e 3 apresentam actividade em rádio da ordem de 8000 Bq/kg. Nada é referido relativamente à actividade das zonas 4 e 5. Na exploração anterior do modelo usaram-se estes valores de actividade ao considerarem-se quatro zonas com as seguintes actividades: 47 000; 8 000; 8 000 e 2 000 Bq.kg⁻¹ numa área total 133 000 m². O fluxo médio estimado para toda a área, resultante destes valores da concentração em rádio, foi de 5,96 Bq.m⁻².s⁻¹.

Como resultado da caracterização radiológica, mineralógica e litológica do material das sondagens efectuadas pela EXMIN (2003), a área total foi classificada em 4 zonas principais identificadas por: A; B (periferia); B (centro) e C.

Tabela 3-35: Áreas definidas segundo a caracterização radiológica, mineralógica e litológica.

Unidade	Α	B (periferia)	B (centro)	С
Sondagem	S ₂ + S ₆	$S_1 + S_3 + S_7$	$S_8 + S_4 + S_5$	S ₉ + S ₁₀
Rádio (Bg.kg ⁻¹)	4898	21800	55492	9764

Estamos assim em presença de três situações distintas mediante a concentração em rádio que define o número de áreas a estudar: inicialmente temos 7

zonas definidas pela EXMIN (2003) e adoptadas também em outros trabalhos (Vicente, 2005); no estudo de Faísca et al. (1999) são definidas duas zonas e por fim, com base na radiologia de superfície e nas análises do material das sondagens, EXMIN (2003) resume as 7 zonas definidas inicialmente a 4 zonas principais de acordo com a sua caracterização radiológica, mineralógica e litológica.

Cada caso foi abordado separadamente apresentando-se no final uma comparação ente os resultados obtidos para as três situações diferentes.

3.5.5.2 Humidade determinada experimentalmente em cada local

A humidade do material constituinte de cada zona foi determinada em função da % de peso húmido. Na Figura 3-22 e na Figura 3-23 estão representados graficamente a localização dos pontos onde foram recolhidas as amostras para determinar a humidade.



Figura 3-22: Localização dos pontos onde foi determinada a humidade.



Figura 3-23: Interpolação dos valores da humidade em % (software GMS).

Os valores médios resultantes para cada zona encontram-se na Tabela 3-36 (Vicente, 2005):

W % (peso húmido)
14,6
27,5
32,8
34,4
25,8
24,4
17,7

Tabela 3-36: Humidade calculada em função da % de peso húmido (Vicente, 2005).

Nas expressões apresentadas anteriormente para a estimativa do coeficiente de difusão, a fracção de saturação do solo é estimada com a % em peso seco. Como os dados obtidos experimentalmente referem-se à humidade em peso húmido é necessário estimar este parâmetro em % de peso seco. Assim, foi necessário assumir que a massa volúmica das partículas do solo é 2,6 g.cm⁻³ (Yu, 2001); a massa da

amostra inicial (amostra húmida) é em média 750 g, uma vez que a massa de cada amostra variou entre 500 e 1000 g (Vicente, 2005) e a densidade da amostra húmida (*wet density,* ρ_{wet}) varia entre 1,67 e 1,83 g.cm⁻³ (Bowles, 2002).

A humidade, W, em % de massa húmida foi calculada pela seguinte expressão:

$$W(\%) = \frac{P_{h\acute{u}mido} - P_{sec o}}{P_{h\acute{u}mido}} \cdot 100$$
(3-94)

A massa seca da amostra (P_{seco}) foi determinada assumindo que todas as amostras analisadas apresentavam inicialmente uma massa média de 750 g.

Local	W % (peso húmido)	P _{húmido} (g)	P _{seco} (g)	W % (peso seco)
A ₁	14,6	750	640,5	17,1
B ₁	27,5	750	544	37,9
B ₂	32,8	750	504	48,8
B ₃	34,4	750	492	52,4
B ₄	25,8	750	556,5	34,8
B ₅	24,4	750	567	32,3
B ₆	17,7	750	617	21,5

Tabela 3-37: Humidade referente a cada área a estudar, W, % em peso seco.

3.5.5.3 Coeficiente de difusão determinado por vários métodos

Na bibliografia é possível encontrar várias expressões para o cálculo do coeficiente de difusão. Como este parâmetro é decisivo para a estimativa do fluxo libertado fez-se uma abordagem de cada uma das expressões na exploração do modelo. As diferentes expressões usadas no cálculo do coeficiente de difusão foram identificadas por: a) método de Wilke & Lee; b) expressão (1) de Rogers; c) expressão (2) de Rogers e d) expressão (3) de Rogers.

a) Coeficiente de difusão calculado pelo método de Wilke & Lee

Para os parâmetros de entrada referentes ao local vão ser necessários os seguintes valores:

- a porosidade do material da cobertura;
- a fracção volumétrica do conteúdo em água do material da cobertura;
- a porosidade do material que constitui o resíduo;

a fracção volumétrica do conteúdo em água do material que constitui o resíduo.

O coeficiente de difusão efectivo na fase gasosa pode ser calculado pela seguinte expressão (Trap, 1997):

$$\mathsf{D}_{\mathsf{e}(\mathsf{fase gasosa})} = \frac{\mathsf{D}_{\mathsf{ar}} \left(\varepsilon - \theta\right)^{\frac{10}{3}}}{\varepsilon^2} \tag{3-95}$$

em que D_{ar} é o coeficiente de difusão do radão em ar aberto e pode ser calculado pela expressão de Wilke & Lee já descrita anteriormente. O coeficiente de difusão efectivo do radão na fase aquosa é dada por (Trap, 1997):

$$\mathsf{D}_{\mathsf{e}(\mathsf{fase aquosa})} = \frac{\mathsf{D}_{\mathsf{w}} \cdot \theta^{\frac{10}{3}}}{\varepsilon^2}$$
(3-96)

em que D_w é o coeficiente de difusão do radão na água que em meio completamente saturado pode atingir valores da ordem de 1 x 10⁻¹⁰ m².s⁻¹ (NUREG, 1984). O valor de D_w pode ser calculado através da expressão de Scheibel (Lyman, 1990):

$$\mathsf{D}_{\mathsf{w}} = \frac{13,26 \times 10^{-5}}{\eta_{\mathsf{w}}^{1,14} \mathsf{V}_{\mathsf{B}}^{'\,0,589}} \tag{3-97}$$

em que η_w é a viscosidade da água a determinada temperatura e, neste caso, considerou-se T = 298 K a que corresponde η_w = 0,8904 C_p, V'_B pode ser determinado pela expressão (3-42) e no caso do radão é igual a 22, 818 cm³/mol.

O valor obtido para D_w foi de 2,4 x 10⁻⁵ cm².s⁻¹ ou 2,4 x 10⁻⁹ m².s⁻¹. No caso do radão, e nestas condições, o coeficiente de difusão efectivo na fase aquosa é desprezável ($D_{e (fase aquosa)} = 10^{-11} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$), pelo que o coeficiente de difusão efectivo total ($D_{e (fase aquosa)} + D_{e (fase aquosa)}$) vai depender essencialmente do valor da difusão na fase gasosa.

Segundo Yu (2001), o coeficiente de difusão efectivo ou intersticial (D_e) relaciona-se com o coeficiente de difusão (D), definido pelo quociente entre o fluxo de difusão do radão através de uma área geométrica ou superficial e o gradiente da concentração da actividade de radão no espaço do poro, através da sua multiplicação pela porosidade total: $D = IJ_bI / I\nabla CI e D = \varepsilon .D_e$.

O fluxo J vai ser estimado em função do coeficiente de difusão obtido pelo método de Wilke & Lee que não é mais do que o coeficiente de difusão aparente, D_e, definido pela equação de Fick como o quociente entre a densidade do fluxo difusivo da actividade de radão através da área do poro (J_e) e o gradiente da actividade da concentração de radão no espaço intersticial do poro (∇ C): **D**_e = **IJ**_e**I / I\nablaCI**.

Na bibliografia (NUREG, 1984) é advertido o uso confuso destes dois coeficientes, muitas vezes estando trocadas as suas designações e consequentemente os seus valores. Para o efeito do cálculo do fluxo neste estudo, o coeficiente de difusão a usar é o que se refere à difusão na área total do poro ou intersticial, independentemente da nomenclatura que lhe atribuírem na bibliografia.

Como se desconhece quer a porosidade do material de cada zona (ϵ), quer o volume de água existente nos poros do material que constitui o resíduo (θ), é necessário assumir alguns valores no modelo para poder estimar estes dois parâmetros a partir da humidade determinada experimentalmente. Considera-se que os parâmetros relativos ao material de cobertura são nulos, isto é, não existe cobertura. As expressões necessárias para estimar os dados de entrada relativos ao local em estudo são descritas na Tabela 3-38 (Bowles, 2002).

Parâmetro	Descrição
G _s :	Gravidade específica dos grãos do solo, $G_s = (W_s/V_s)/\gamma_w$, (-)
γ _w :	Peso específico da água, (9,807 KN/m ³)
ρ _{dry} :	Unidade de massa seca, $\rho_{dry} = W_s / V_T$, (g.cm ⁻³)
W _T :	Peso da amostra, (g)
V _T :	Volume da amostra, (cm ³)
E _v :	Vazios no solo, $E_v = V_v/V_s$, (-)
W:	Humidade, % em peso da amostra húmida, W = W_w / W_s
ρ_{wet} :	Unidade de massa húmida, $\rho_{wet} = W_T / V_T$, (g.cm ⁻³)
γwet:	Unidade de peso (específico) húmido, γ_{wet} = 9,807. ρ_{wet} ; γ_{wet} = 9,807. P_{wet} / V_T , (kN.m ⁻³)
γ _{dry} :	Unidade de peso (específico) seco, $\gamma_{dry} = \gamma_{wet} / (1 + 0.01.W)$; $\gamma_{dry} = P_s / V_T$, (kN.m ⁻³)
W _s :	Unidade de massa de sólidos, $W_s = \rho_{wet} / (1 + 0.01.W)$, (g.cm ⁻³)
V _s :	Unidade de volume de sólidos, $V_s = W_s / (G_s \cdot \gamma_w)$; ($\gamma_w = 1 \text{ g.cm}^{-3}$)
V _v :	Unidade de volume de vazios, $V_v = 1 - V_s$; ($V_T = 1 \text{ cm}^3$)
W _w :	Unidade de massa de água W _w = ρ_{wet} – (ρ_{wet} / (1 + 0,01.W))
V _w :	Unidade de volume de água, $V_w = W_w/(G_w.\gamma_w)$; ($G_w = 1$; $\gamma_w = 1$ g.cm ⁻³)
G _w :	Gravidade específica da água, (-)
S:	Grau de saturação, S = 100. V_w / V_v , (%)
G _b	Gravidade específica do solo seco, $G_b = \gamma_{dry} / 9,807$, (-)
θ:	Conteúdo volumétrico em água, θ = 0,01.W.(ρ_{dry} / ρ_w), (cm ³ /cm ³)
ε:	Porosidade total $\varepsilon = V_v / V_T$, (-).

Tabela 3-38: Parâmetros necessários à caracterização do local.

Como se desconhece quer o volume da amostra húmida, quer a sua densidade, admitiu-se que a densidade húmida (ou densidade total, $\rho_{wet} = M_T / V_T$) pode variar entre 1,67 e 1,83 g/cm³. Calculou-se o volume total da amostra (húmida) para $\rho_{wet} = 1,67$; 1,7; 1,8 e 1,83. Os valores obtidos para os parâmetros enunciados anteriormente, em função destes valores de densidade (ρ_{wet}), encontram-se nas tabelas seguintes (Tabela 3-39, Tabela 3-40, Tabela 3-41 e Tabela 3-42, respectivamente).

W (%)	Gs	ρ_{dry}	WT	V _T	ρ_{wet}	Ywet	$\gamma_{ m dry}$	Ws	Vs	Vv	W _w	$V_w = \theta$	S	G _b	Ev	З	w	ε-θ
14,60	2,60	1,46	750	449,1	1,67	16,38	14,29	1,46	0,56	0,44	0,21	0,21	48,41	1,46	0,78	0,44	14,60	0,23
27,50	2,60	1,31	750	449,1	1,67	16,38	12,85	1,31	0,50	0,50	0,36	0,36	72,59	1,31	0,99	0,50	27,50	0,14
32,80	2,60	1,26	750	449,1	1,67	16,38	12,33	1,26	0,48	0,52	0,41	0,41	79,88	1,26	1,07	0,52	32,80	0,10
34,40	2,60	1,24	750	449,1	1,67	16,38	12,19	1,24	0,48	0,52	0,43	0,43	81,87	1,24	1,09	0,52	34,40	0,09
25,80	2,60	1,33	750	449,1	1,67	16,38	13,02	1,33	0,51	0,49	0,34	0,34	69,98	1,33	0,96	0,49	25,80	0,15
24,40	2,60	1,34	750	449,1	1,67	16,38	13,17	1,34	0,52	0,48	0,33	0,33	67,72	1,34	0,94	0,48	24,40	0,16
17,70	2,60	1,42	750	449,1	1,67	16,38	13,91	1,42	0,55	0,45	0,25	0,25	55,28	1,42	0,83	0,45	17,70	0,20

Tabela 3-39: Cálculo do conteúdo volumétrico em água com ρ_{wet} = 1,67.

Tabela 3-40: Cálculo do conteúdo volumétrico em água com ρ_{wet} = 1,7.

W (%)	Gs	ρ _{dry}	W _T	V _T	ρ_{wet}	Ywet	γ _{dry}	Ws	Vs	Vv	Ww	$V_w = \theta$	S	Gb	Ev	З	w	ε-θ
14,6	2,6	1,48	750	441,2	1,7	16,67	14,55	1,48	0,57	0,43	0,22	0,22	50,43	1,48	0,75	0,43	14,60	0,21
27,5	2,6	1,33	750	441,2	1,7	16,67	13,08	1,33	0,51	0,49	0,37	0,37	75,26	1,33	0,95	0,49	27,50	0,12
32,8	2,6	1,28	750	441,2	1,7	16,67	12,55	1,28	0,49	0,51	0,42	0,42	82,71	1,28	1,03	0,51	32,80	0,09
34,4	2,6	1,26	750	441,2	1,7	16,67	12,40	1,26	0,49	0,51	0,44	0,44	84,73	1,26	1,06	0,51	34,40	0,08
25,8	2,6	1,35	750	441,2	1,7	16,67	13,25	1,35	0,52	0,48	0,35	0,35	72,60	1,35	0,92	0,48	25,80	0,13
24,4	2,6	1,37	750	441,2	1,7	16,67	13,40	1,37	0,53	0,47	0,33	0,33	70,29	1,37	0,90	0,47	24,40	0,14
17,7	2,6	1,44	750	441,2	1,7	16,67	14,16	1,44	0,56	0,44	0,26	0,26	57,52	1,44	0,80	0,44	17,70	0,19

W (%)	Gs	ρ_{dry}	Wτ	V _T	ρ_{wet}	Ywet	$\gamma_{ m dry}$	Ws	Vs	Vv	W _w	$V_w = \theta$	S	Gb	Εv	3	w	ε-θ
14,60	2,60	1,57	750	416,67	1,80	17,65	15,40	1,57	0,60	0,40	0,23	0,23	57,92	1,57	0,66	0,40	14,60	0,17
27,50	2,60	1,41	750	416,67	1,80	17,65	13,85	1,41	0,54	0,46	0,39	0,39	84,95	1,41	0,84	0,46	27,50	0,07
32,80	2,60	1,36	750	416,67	1,80	17,65	13,29	1,36	0,52	0,48	0,44	0,44	92,88	1,36	0,92	0,48	32,80	0,03
34,40	2,60	1,34	750	416,67	1,80	17,65	13,13	1,34	0,52	0,48	0,46	0,46	95,01	1,34	0,94	0,48	34,40	0,02
25,80	2,60	1,43	750	416,67	1,80	17,65	14,03	1,43	0,55	0,45	0,37	0,37	82,09	1,43	0,82	0,45	25,80	0,08
24,40	2,60	1,45	750	416,67	1,80	17,65	14,19	1,45	0,56	0,44	0,35	0,35	79,61	1,45	0,80	0,44	24,40	0,09
17,70	2,60	1,53	750	416,67	1,80	17,65	15,00	1,53	0,59	0,41	0,27	0,27	65,73	1,53	0,70	0,41	17,70	0,14

Tabela 3-41: Cálculo do conteúdo volumétrico em água com ρ_{wet} = 1,80.

Tabela 3-42: Cálculo do conteúdo volumétrico em água com ρ_{wet} = 1,83.

W (%)	Gs	ρ _{dry}	WT	V _T	ρ_{wet}	γwet	γ̈́dry	Ws	Vs	Vv	W _w	$V_w = \theta$	S	Gb	Ev	3	w	ε-θ
14,6	2,6	1,6	750	409,8	1,83	17,95	15,66	1,60	0,61	0,39	0,23	0,23	60,43	1,60	0,63	0,39	14,60	0,15
27,5	2,6	1,4	750	409,8	1,83	17,95	14,08	1,44	0,55	0,45	0,39	0,39	88,11	1,44	0,81	0,45	27,50	0,05
32,8	2,6	1,4	750	409,8	1,83	17,95	13,51	1,38	0,53	0,47	0,45	0,45	96,17	1,38	0,89	0,47	32,80	0,02
34,4	2,6	1,4	750	409,8	1,83	17,95	13,35	1,36	0,52	0,48	0,47	0,47	98,34	1,36	0,91	0,48	34,40	0,01
25,8	2,6	1,5	750	409,8	1,83	17,95	14,27	1,45	0,56	0,44	0,38	0,38	85,20	1,45	0,79	0,44	25,80	0,07
24,4	2,6	1,5	750	409,8	1,83	17,95	14,43	1,47	0,57	0,43	0,36	0,36	82,67	1,47	0,77	0,43	24,40	0,08
17,7	2,6	1,6	750	409,8	1,83	17,95	15,25	1,55	0,60	0,40	0,28	0,28	68,46	1,55	0,67	0,40	17,70	0,13
Uma vez que os valores obtidos para a porosidade e para o conteúdo volumétrico em água estimados com $\rho_{wet} = 1,67$ e $\rho_{wet} = 1,7$ são muito semelhantes, a estimativa do coeficiente de difusão foi feita apenas para o primeiro valor, o mesmo se passa para $\rho_{wet} = 1,8$ e para $\rho_{wet} = 1,83$ e neste caso optou-se pelo último valor. Para estimar o coeficiente de difusão pelo método de Wilke & Lee são necessários os valores de ϵ e de θ correspondentes aos 2 casos extremos de ρ_{wet} (1,67 e 1,83).

Para estimar o coeficiente de difusão efectivo que, como vimos, depende essencialmente da difusão na fase gasosa, vamos usar a expressão (3-95) em que o parâmetro de entrada principal é o valor resultante da diferença ($\varepsilon - \theta$).

Local	3	θ	$D_{e} (m^{2}.s^{-1}) \rho_{wet} = 1,67$	3	θ	D _e (m.s ⁻¹) ρ _{wet} = 1,83
Α	0,44	0,21	5,31 x 10 ⁻⁷	0,39	0,23	1,63 x 10 ⁻⁷
B ₁	0,50	0,36	7,87 x 10 ⁻⁸	0,45	0,39	3,15 x 10 ⁻⁹
B ₂	0,52	0,41	2,37 x 10 ⁻⁸	0,47	0,45	1,36 x 10 ⁻¹⁰
B ₃	0,52	0,43	1,67 x 10 ⁻⁸	0,48	0,47	1,30 x 10 ⁻¹¹
B ₄	0,49	0,34	1,03 x 10 ⁻⁷	0,44	0,38	1,01 x 10 ⁻⁸
B ₅	0,48	0,33	1,33 x 10 ⁻⁷	0,43	0,36	1,65 x 10 ⁻⁸
B ₆	0,45	0,25	3,19 x 10 ⁻⁷	0,40	0,28	9,61 x 10 ⁻⁸

Tabela 3-43: Estimativa do coeficiente de difusão pelo método de Wilke & Lee (Lyman, 1990).

O fluxo é estimado com a expressão (3-11) considerando a inexistência de camada de cobertura. Nesta expressão, o coeficiente de difusão D (m².s⁻¹) refere-se ao espaço total do poro. Estimou-se o fluxo com os coeficientes de difusão obtidos na Tabela 3-43 considerando ρ_{dry} = 1,67 g.cm⁻³ na expressão de cálculo do fluxo.

Tabela 3-44: Fluxo de radão (Bq.m⁻².s⁻¹) para ρ_{wet} = 1,67 e ρ_{wet} = 1,83, mantendo ρ_{dry} = 1,67.

Área total	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	C ₀ (Bq.m ⁻³)	^{6*} C ₀ (Bq.m ⁻³)	
$\rho_{wet} = 1,67 \ e \ \rho_{dry} = 1,67$	3,06	67,29	605,2	
$\rho_{wet} = 1,83 \ e \ \rho_{dry} = 1,67$	1,57	34,48	312,58	

Repetiram-se estes dois cálculos do fluxo mas fazendo variar ρ_{dry} de acordo com os valores obtidos na Tabela 3-39 e na Tabela 3-42.

⁶ Concentração de radão na direcção dominante do vento (NE).

Tabela 3-45: Fluxo de radão (Bq.m⁻².s⁻¹) para $\rho_{wet} = 1,67$ e $\rho_{wet} = 1,83$, variando ρ_{dry} segundo os valores obtidos na Tabela 3-39 e na Tabela 3-42.

Área total	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	C ₀ (Bq.m ⁻³)	*C ₀ (Bq.m ⁻³)
ρ_{wet} = 1,67 e ρ_{dry} = variável	2,61	57,41	516,14
ρ_{wet} = 1,83 e ρ_{dry} = variável	1,48	32,47	291,96

Comparando os resultados da Tabela 3-44 com os resultados da Tabela 3-45 para $\rho_{dry} = 1,67$ e para $\rho_{dry} =$ variável, verifica-se que os resultados não são muito diferentes entre si. Podemos concluir que não há grande diferença na estimativa do fluxo mantendo ρ_{dry} constante e igual a 1,67 para todo o material. Por questões de simplificação da exploração o caso de $\rho_{wet} = 1,83$ vai ser desprezado uma vez os valores mais elevados, que representarão o pior cenário, foram obtidos para $\rho_{wet} =$ 1,67.

b) Coeficiente de difusão calculado pela expressão (1) de Rogers

Segundo Rogers et al. (NUREG, 1984), a relação entre a fracção de saturação, m, e a humidade (% de peso seco) é dada pela expressão (3-29) que vai ser usada no cálculo do coeficiente de difusão com a expressão (3-27) e que identificamos como sendo expressão (1) de Rogers. Nesta expressão, o grau de saturação é definido como a razão entre o volume de água (cm³) e o volume de vazios (cm³) com o qual se relaciona a humidade percentual do solo seco (kg de água / kg de solo seco).

Rogers (NUREG, 1984) recomenda ainda que o coeficiente de difusão seja calculado com a fracção de saturação (m) estimada com a humidade percentual em peso seco da amostra, tendo em conta a influência da porosidade (ϵ) a partir da expressão (3-27).

Assumiu-se neste caso que a porosidade é igual para todo o material e tem o valor de 0,37. Também a densidade ρ_{dry} vai ser constante e igual a 1,67 g.cm⁻³. A exploração foi feita com os valores da humidade em % de peso húmido ($P_{húmido}$) e em % de peso seco (P_{seco}).

w	ρ	g	m	D	W	m	D	3
(% P _{húmido})	(g.cm ⁻³)	(g.cm ^{⁻3})	(-)	(m ² .s ⁻¹)	(% P _{seco})	(-)	(m ² .s ⁻¹)	(-)
14,5	1,67	2	1,468	0	17,10	1,730	0	0,37
27,5	1,67	2	2,783	0	37,93	3,839	0	0,37
32,8	1,67	2	3,320	0	48,81	4,940	0	0,37
34,4	1,67	2	3,482	0	52,44	5,307	0	0,37
25,8	1,67	2	2,611	0	34,77	3,519	0	0,37
24,4	1,67	2	2,470	0	32,28	3,267	0	0,37
17,7	1,67	2	1,791	0	21,51	2,177	0	0,37

Tabela 3-46: Coeficiente de difusão estimado com a expressão (3-29) e a humidade, *m*, estimada com a expressão (3-27).

Os valores obtidos não são fiáveis porque, além de *m* ser superior a 1, o que não devia ser pela sua definição de fracção de saturação, o coeficiente de difusão é nulo para todos os valores de humidade. Após várias tentativas de obter valores de *m* inferiores a 1, concluímos que a expressão empírica para estimar *m* é muito sensível ao valores de ρ e de g, não podendo ser estimado com valores arbitrados com o risco de obter resultados fisicamente impossíveis.

Repetimos os cálculos da Tabela 3-39 partindo da % de humidade da amostra com base no peso seco. Seleccionamos os parâmetros que vão interessar ao cálculo do coeficiente de difusão com a expressão (1) de Rogers, para ambos os casos da humidade, com base no peso húmido (Tabela 3-47) e no peso seco (Tabela 3-48).

w	ρ_{dry}	S	3	ρ_{dry}	G	m	D
(% P _{húmido})	(g.cm ⁻³)	(%)	(-)	(g.cm ⁻³)	(g.cm ⁻³)	(-)	(m ² .s ⁻¹)
14,5	1,46	48,17	0,44	1,457	2,6	0,48	1,34 x 10 ⁻⁶
27,5	1,31	72,59	0,50	1,310	2,6	0,73	3,50 x 10 ⁻⁷
32,8	1,26	79,88	0,52	1,258	2,6	0,80	1,83 x 10 ⁻⁷
34,4	1,24	81,87	0,52	1,243	2,6	0,82	1,48 x 10 ⁻⁷
25,8	1,33	69,98	0,49	1,328	2,6	0,70	4,26 x 10 ⁻⁷
24,4	1,34	67,72	0,48	1,342	2,6	0,68	4,97 x 10 ⁻⁷
17,7	1,42	55,28	0,45	1,419	2,6	0,55	9,85 x 10 ⁻⁷

Tabela 3-47: Estimativa de *m* com base na % em peso húmido da amostra.

Curiosamente, verifica-se que o parâmetro *m* não é mais do que o grau de saturação, *S*, estimado na Tabela 3-39, expresso em percentagem, definido como o quociente entre o volume de água e o volume de vazios da amostra.

Na Figura 3-24 encontra-se representado a relação entre o coeficiente de difusão em função da fracção de saturação *m*. A expressão que traduz a relação obtida é igual a: $D = 5 \times 10^{-6}$.m² - 1,0 x 10⁻⁵.m + 5 x 10⁻⁶.



Figura 3-24: Coeficiente de difusão, D, vs fracção de saturação, m (Tabela 3-47).

A estimativa do coeficiente de difusão pela expressão (1) de Rogers com base no peso seco da amostra encontra-se representada a seguir.

W	ρ_{dry}	S	3	ρ _{dry}	G	m	D
(% P _{seco})	(g.cm ⁻³)	(%)	(-)	(g.cm ⁻³)	(g.cm ⁻³)	(-)	(m ² .s ⁻¹)
17,10	1,43	54,01	0,45	1,426	2,6	0,54	1,04 x 10 ⁻⁶
37,93	1,21	85,95	0,53	1,211	2,6	0,86	9,19 x 10 ⁻⁸
48,81	1,12	96,37	0,57	1,122	2,6	0,96	1,85 x 10 ⁻⁸
52,44	1,10	99,28	0,58	1,096	2,6	0,99	1,05 x 10 ⁻⁹
34,77	1,24	82,32	0,52	1,239	2,6	0,82	1,41 x 10 ⁻⁷
32,28	1,26	79,21	0,51	1,263	2,6	0,79	1,96 x 10 ⁻⁷
21,51	1,37	62,71	0,47	1,374	2,6	0,63	6,75 x 10 ⁻⁷

Tabela 3-48: Estimativa de *m* com base na % em peso seco da amostra.

Da mesma forma, e de acordo com a estimativa da humidade em % de peso seco da amostra, nos resultados obtidos também se verifica que o parâmetro m é o grau de saturação (S) expresso em percentagem.

Na Figura 3-25 encontra-se representada a relação entre o coeficiente de difusão e a fracção de saturação, *m*. A expressão obtida que descreve esta relação é igual à anterior.



Figura 3-25: Coeficiente de Difusão, D, vs fracção de saturação, m (Tabela 3-48).

Estimado o coeficiente de difusão podemos fazer a exploração do modelo para obter o fluxo resultante. Para poder aferir qual a influência da humidade percentual relativamente à massa seca ou à massa húmida da amostra, fez-se a estimativa para os dois casos: fluxo com base na humidade percentual da massa da amostra húmida e o fluxo com base na humidade percentual da massa da amostra seca.

Tabela 3-49: Fluxo com base na humidade percentual da massa da amostra húmida e seca.

Área total	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	C ₀ (Bq.m ⁻³)	*C ₀ (Bq.m ⁻³)
Humidade (% massa húmida)	5,24	115,19	1035
Humidade (% amostra seca)	3,99	87,69	787,89

c) Coeficiente de difusão calculado pela expressão (2) de Rogers

Em trabalhos anteriores, Reis et al. (2000) refere uma versão simplificada da expressão de Rogers (1980) para o cálculo coeficiente de difusão com a forma: $D = 1,06 \times 10^{-5} e^{-0,261 \cdot m}$ a que chamamos expressão (2) de Rogers. Foram efectuadas várias estimativas do coeficiente de difusão, com esta expressão para diferentes valores de *m*, na tentativa de obter valores coerentes com a fórmula anterior de Rogers. Considerou-se assim, neste caso, que W (humidade do solo, % em peso) representa o parâmetro *m*, nesta expressão, uma vez que em Reis e al. (2000) este parâmetro é assim definido. Na Tabela 3-50 encontra-se representada a estimativa do coeficiente de difusão obtido com a expressão (2) de Rogers. A Figura 3-26 e a Figura 3-27 representam a relação entre os valores obtidos para o coeficiente de difusão e para a humidade do solo.

W = m (% peso húmido)	D (m ² .s ⁻¹)	W = m (% peso seco)	D (m ² .s ⁻¹)
14,60	2,346 x 10 ⁻⁷	17,10	1,222 x 10 ⁻⁷
27,50	8,094 x 10 ⁻⁹	37,93	5,320 x 10 ⁻¹⁰
32,80	2,030 x 10 ⁻⁹	48,81	3,109 x 10 ⁻¹¹
34,40	1,337 x 10 ⁻⁹	52,44	1,206 x 10 ⁻¹¹
25,80	1,261 x 10 ⁻⁸	34,77	1,214 x 10 ⁻⁹
24,40	1,818 x 10 ⁻⁸	32,28	2,325 x 10 ⁻⁹
17,70	1,045 x 10 ⁻⁷	21,51	3,865 x 10 ⁻⁸

Tabela 3-50: Coeficiente de difusão, D, estimado com a expressão (2) de Rogers (1980).



Figura 3-26: Coeficiente de difusão em função da saturação, m (% peso húmido) (Tabela 3-50).



Figura 3-27: Coeficiente de difusão em função da saturação, *m* (% peso seco) (Tabela 3-50).

O fluxo médio referente à área total para os dois casos (W %, peso húmido; % peso seco) estimados com $\rho_{dry} = 1,67$ g/cm³, encontra-se no quadro seguinte com a respectiva concentração ao nível médio do solo à altura de 1 metro do solo (C₀) e na direcção dominante do vento (*C₀).

Área total	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	C₀ (Bq.m ⁻³)	*C ₀ (Bq.m ⁻³)
W % de peso húmido	1,77	39,58	350,38
W % de peso seco	1,17	25,87	231,74

Tabela 3-51: Fluxo médio de radão estimado a partir dos resultados obtidos na Tabela 3-50.

Como o coeficiente de difusão é estimado com a % de humidade do solo (% em peso), este parâmetro refere-se ao coeficiente de difusão no solo e não no espaço total do poro, devendo ser corrigido.

Segundo Rogers (1980), o coeficiente de difusão intersticial (ou no espaço total do poro) relaciona-se com o coeficiente de difusão no solo, dividindo este pela porosidade total do solo. Esta correcção foi feita para os coeficientes de difusão da Tabela 3-50 e com os valores obtidos estimou-se o fluxo resultante.

W = m	D	D/ɛ	W = m	D	D/ɛ
(% peso húmido)	(ITN)		(ITN)	(ITN)	
14,60	2,35 x 10 ⁻⁷	5,34 x 10 ⁻⁷	17,10	1,22 x 10 ⁻⁷	2,71 x 10 ⁻⁷
27,50	8,09 x 10 ⁻⁹	1,63 x 10 ⁻⁸	37,93	5,32 x 10 ⁻¹⁰	9,96 x 10 ⁻¹⁰
32,80	2,03 x 10 ⁻⁹	3,93 x 10 ⁻⁹	48,81	3,11 x 10 ⁻¹¹	5,47 x 10 ⁻¹¹
34,40	1,34 x 10 ⁻⁹	2,56 x 10 ⁻⁹	52,44	1,21 x 10 ⁻¹¹	2,08 x 10 ⁻¹¹
25,80	1,26 x 10 ⁻⁸	2,58 x 10 ⁻⁸	34,77	1,21 x 10 ⁻⁹	2,32 x 10 ⁻⁹
24,40	1,82 x 10 ⁻⁸	3,76 x 10 ⁻⁸	32,28	2,32 x 10 ⁻⁹	4,52 x 10 ⁻⁹
17,70	1,04 x 10 ⁻⁷	2,30 x 10 ⁻⁷	21,51	3,86 x 10 ⁻⁸	8,20 x 10 ⁻⁸
J	1,77	2,32	J	1,17	1,45
C ₀	39,58	30	Co	25,87	19
*C ₀	350,38	458,23	* C 0	231,74	289,34

Tabela 3-52: Coeficiente de difusão intersticial, $D_e = D/\epsilon$, ou no vazio do poro.

Podemos concluir que a expressão (1) de Rogers (1980) usada por Reis et al. (2000) refere-se ao coeficiente de difusão no solo e o parâmetro *m* não é o mesmo usado na expressão (2) de Rogers (1984) apesar de apresentar a mesma nomenclatura: em Rogers (1980) refere-se efectivamente à % de humidade do solo (em peso) como vamos ver a seguir, relativamente ao peso húmido da amostra.

Fez-se ainda uma estimativa do fluxo com o grau de saturação (m) estimado anteriormente pela expressão (3-29). Na Tabela 3-53 estão representados os resultados obtidos.

w	ρ	G	m	D (ITN)	W	ρ _b	m	D (ITN
(%P _{húmido})	(g.cm ⁻³)	(g.cm ⁻³)		(m ² .s ⁻¹)	(%P _{seco})	(g.cm ⁻³)		(m ² .s ⁻¹)
14,5	1,457	2,6	0,48	9,35 x 10 ⁻⁶	17,10	1,426	0,54	9,21 x 10 ⁻⁶
27,5	1,310	2,6	0,73	8,77 x 10 ⁻⁶	37,93	1,211	0,86	8,47 x 10 ⁻⁶
32,8	1,258	2,6	0,80	8,61 x 10 ⁻⁶	48,81	1,122	0,96	8,24 x 10 ⁻⁶
34,4	1,243	2,6	0,82	8,56 x 10 ⁻⁶	52,44	1,096	0,99	8,18 x 10 ⁻⁶
25,8	1,328	2,6	0,70	8,83 x 10 ⁻⁶	34,77	1,239	0,82	8,55 x 10 ⁻⁶
24,4	1,342	2,6	0,68	8,88 x 10 ⁻⁶	32,28	1,263	0,79	8,62 x 10 ⁻⁶
17,7	1,419	2,6	0,55	9,18 x 10 ⁻⁶	21,51	1,374	0,63	9,00 x 10 ⁻⁶

Tabela 3-53: Fluxo de radão estimado com os valores de *m* da Tabela 3-47 e da Tabela 3-48.

Em ambos os casos, os coeficientes de difusão são da mesma ordem de grandeza. O mesmo se verifica para os fluxos obtidos em que para o primeiro caso é igual a 16,68 Bq.m⁻².s⁻¹ e para o segundo caso é igual a 15,89 Bq.m⁻².s⁻¹, mas muito elevados relativamente aos valores apresentados na Tabela 3-49, obtidos com a % de humidade.

As figuras seguintes representam a relação obtida entre a estimativa do coeficiente de difusão e a humidade definida em % de peso húmido e em % de peso seco.



Figura 3-28: Coeficiente de difusão, D (ITN), vs a saturação, m (% peso húmido) (Tabela 3-53).





A relação obtida nas duas primeiras figuras é a mesma: $D = -2 \times 10^{-6}$.m +1 x 10^{-5} . Podemos concluir que não há diferença em estimar o coeficiente de difusão com a humidade definida em % de peso húmido ou em % de peso seco na expressão (2) de Rogers pois os resultados para estas duas estimativas são idênticos.

A expressão apresentada por Reis et al. (2000) refere-se ao coeficiente de difusão no solo, como já vimos anteriormente, apesar de não ser apresentada a sua dedução ou a expressão de cálculo.

Rogers (NUREG, 1984) define D como o coeficiente efectivo (poro) contrariamente a trabalhos anteriores em que o mesmo autor, Rogers (1980) designa o coeficiente efectivo (na área total do poro) por D_e . Assim, podemos considerar que os valores da Tabela 3-53 correspondem a D (difusão no solo) sendo necessário corrigir para D_e (difusão no espaço total do poro) para estimar o fluxo. Fazendo a correcção obtemos coeficientes de difusão na ordem de 10^{-5} o que originará fluxos muito elevados. Com estes resultados pode-se concluir mais uma vez que, na expressão de Rogers (1980) usada por Reis et al. (2000), o parâmetro *m* não é o mesmo usado na expressão de Rogers (NUREG, 1984), e o coeficiente de difusão resultante não tem o mesmo significado: no primeiro caso refere-se ao coeficiente de difusão no solo e no segundo caso ao coeficiente de difusão efectivo ou intersticial.

A Tabela 3-54 mostra os valores de fluxo resultantes da correcção de D para D_e ($D_e = D/\epsilon$) e a estimativa da concentração com base neste coeficiente de difusão. A título de curiosidade efectuaram-se também os cálculos para $D_e = D.\epsilon$.

D (ITN)	J	Co	$D_e = D^* \epsilon$	J	Co	$D_e = D/\epsilon$	J	Co
9,35 x 10 ⁻⁶			4,11 x 10 ⁻⁶			2,13 x 10 ⁻⁵		
8,77 x 10 ⁻⁶			4,35 x 10 ⁻⁶			1,77 x 10 ⁻⁵		
8,61 x 10 ⁻⁶			4,44 x 10 ⁻⁶			1,67 x 10 ⁻⁵		
8,56 x 10 ⁻⁶			4,47 x 10 ⁻⁶			1,64 x 10 ⁻⁵		
8,83 x 10 ⁻⁶			4,32 x 10 ⁻⁶			1,80 x 10 ⁻⁵		
8,88 x 10 ⁻⁶			4,30 x 10 ⁻⁶			1,84 x 10 ⁻⁵		
9,18 x 10 ⁻⁶			4,17 x 10 ⁻⁶			2,02 x 10 ⁻⁵		
	16,68	366,62		10,56	232,02		24,60	541,30
9,21 x 10 ⁻⁶			4,16 x 10 ⁻⁶			2,04 x 10 ⁻⁵		
8,47 x 10 ⁻⁶			4,53 x 10 ⁻⁶			1,59 x 10 ⁻⁵		
8,24 x 10 ⁻⁶			4,68 x 10 ⁻⁶			1,45 x 10 ⁻⁵		
8,18 x 10 ⁻⁶			4,73 x 10 ⁻⁶			1,41 x 10 ⁻⁵		
8,55 x 10 ⁻⁶			4,48 x 10 ⁻⁶			1,6 x 10 ⁻⁵		
8,62 x 10 ⁻⁶			4,43 x 10 ⁻⁶			1,68 x 10 ⁻⁵		
9,00 x 10 ⁻⁶			4,24 x 10 ⁻⁶			1,91 x 10 ⁻⁵		
	15,89	349,27		10,68	234,79		23,85	524,09

Tabela 3-54: Coeficientes de difusão efectivo estimados com a expressão usada pelo ITN.

A Figura 3-30 e a Figura 3-31 representam os resultados obtidos com a correcção do coeficiente de difusão.



Figura 3-30: Coeficiente de difusão, $D_e = D/\epsilon vs$ a saturação, *m* (% peso húmido) (Tabela 3-54).



Figura 3-31: Coeficiente de difusão, $D_e = D/\epsilon$, vs a saturação, m (% peso seco) (Tabela 3-54).

A relação obtida nas duas figuras é a mesma: $D = -1 \times 10^{-5}$.m + 3 x 10^{-5} o que vem confirmar o que foi dito anteriormente: não há diferença em estimar o coeficiente de difusão com a humidade definida em % de peso húmido ou em % de peso seco na expressão (2) de Rogers, uma vez que os resultados obtidos são idênticos.

d) Coeficiente de difusão calculado pela expressão (3) de Rogers

Ainda foi possível encontrar na bibliografia consultada outra expressão de cálculo do coeficiente de difusão, também da autoria de Rogers (1991), em que *m* é definido como a fracção de saturação (R_s) ou a fracção do espaço do poro preenchido com água. O coeficiente de difusão efectivo é dado pela expressão (3-98):

$$\mathsf{D}_{\mathsf{o}} = \mathsf{D}_{\mathsf{or}} \cdot \varepsilon \cdot \mathsf{e}^{(-6 \cdot \varepsilon \cdot \mathsf{R}_{\mathsf{s}} - 6 \cdot \mathsf{R}_{\mathsf{s}}^{-14 \cdot \varepsilon})}$$
(3-98)

em que D_{ar} é o coeficiente de difusão do radão em ar aberto e é igual a 1,1 x 10⁻⁵ m²/s (valor tabelado) e neste caso, $D_e = D.\epsilon$. Assumiu-se neste caso que a porosidade é igual para todo o material e tem o valor de 0,37. Também a densidade ρ_{dry} vai ser constante e igual a 1,67 g/cm³. Calculou-se o fluxo com o coeficiente de difusão estimado com a humidade em % de peso seco e em % de peso húmido.

Área total	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	C₀ (Bq.m ⁻³)
% de peso seco	10,88	239,14
% de peso húmido	11,04	242,62

Tabela 3-55: Fluxo estimado para ρ_{dry} = 1,67 g.cm⁻³ e ϵ = 0,37

Os valores obtidos são bastante elevados relativamente aos resultados anteriores. Refez-se o cálculo com os valores obtidos na Tabela 3-47 e na Tabela 3-48 para m, $\rho \in \varepsilon$ com $\rho_{dry} \in \varepsilon$ variável conforme a Tabela 3-39.

Tabela 3-56: Estimativa do coeficiente de difusão com a expressão (3) de Rogers e com os valores de m, ρ , ϵ , da Tabela 3-47 e da Tabela 3-48 ($D_{ar} = 0,132 \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$).

W	D	D	W	D	D
% P _{húmido}	m ² .s ⁻¹	m ² .s ⁻¹	% P _{seco}	m ² .s ⁻¹	m ² .s ⁻¹
14,5	1,3 x 10 ⁻⁶	1,5 x 10 ⁻⁶	17,096	1,0 x 10 ⁻⁶	1,2 x 10 ⁻⁶
27,5	3,3 x 10 ⁻⁷	3,9 x 10 ⁻⁷	37,931	5,4 x 10 ⁻⁸	6,5 x 10 ⁻⁸
32,8	1,5 x 10 ⁻⁷	1,8 x 10 ⁻⁷	48,810	2,7 x 10 ⁻⁹	3,2 x 10 ⁻⁹
34,4	1,1 x 10 ⁻⁷	1,3 x 10 ⁻⁷	52,439	7,1 x 10 ⁻¹⁰	8,5 x 10 ⁻¹⁰
25,8	4,1 x 10 ⁻⁷	4,9 x 10 ⁻⁷	34,771	1,0 x 10 ⁻⁷	1,2 x 10 ⁻⁷
24,4	4,9 x 10 ⁻⁷	5,8 x 10 ⁻⁷	32,275	1,6 x 10 ⁻⁷	1,9 x 10 ⁻⁷
17,7	9,6 x 10 ⁻⁷	1,2 x 10 ⁻⁶	21,507	6,7 x 10 ⁻⁷	8,0 x 10 ⁻⁷

Estimou-se o coeficiente de difusão pela expressão (3-98) com $D_{ar} = 1,1 \times 10^{-5}$ m².s⁻¹ e $D_{ar} = 1,32 \times 10^{-5}$ m².s⁻¹. O primeiro valor de D_{ar} é o que figura na bibliografia consultada (Yu, 1993) e o segundo resulta da estimativa deste parâmetro pelo método de Wilke & Lee (Lyman, 1990). Verificamos que os resultados dos coeficientes de difusão e consequentemente os fluxos resultantes são semelhantes. Os valores obtidos para o fluxo encontram-se representados na Tabela 3-57.

Tabela 3-57: Fluxo médio de radão (J) e concentração média ao nível médio do solo (C₀) resultante dos coeficientes de difusão da Tabela 3-56.

W (% P _{húmido})	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹) – D _{ar} = 0,110 cm ² .s ⁻¹	$J (Bq.m^{-2}.s^{-1}) - D_{ar} = 0,132 \text{ cm}^2.s^{-1}$
J	4,36	4,76
C ₀	85,77	104,55
*C ₀	862,69	939,93
W (<i>% P_{seco}</i>)		
J	3,38	3,7
C ₀	74,41	81,38
*C ₀	668,96	731,65

Se os cálculos do fluxo forem feitos com $\rho_{dry} = 1,67$ g/cm³, e porosidade variável, (Tabela 3-39) os resultados são mais aproximados dos valores medidos (Tabela 3-58).

З	J (% peso seco)	J (% peso húmido)
0,44	3,48	3,11
0,50	3,54	1,44
0,52	2,46	0,31
0,52	5,9	0,48
0,49	8,74	4,33
0,48	12,03	6,89
0,45	40,28	32,89
J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	5,6	4,4
C₀ (Bq.m ⁻³)	123,24	97,60
*C ₀ (Bq.m ⁻³)	1108	877,43

Tabela 3-58: Fluxo estimado com a humidade em % de peso seco e em % de peso húmido, porosidade variável e $\rho_{dry} = 1,67 \text{ g.cm}^{-3}$.

Nas figuras seguintes está representada a relação obtida para o coeficiente de difusão e a fracção de saturação R_s para cada caso de estimativa do coeficiente de difusão com *m* em % do peso húmido ou com *m* em % do peso seco.



Figura 3-32: Coeficiente de difusão vs fracção de saturação, m (% peso húmido) (Tabela 3-56).

Com a expressão (3) de Rogers a relação obtida entre D e m é diferente consoante se considere a % de peso húmido ou a % de peso seco, contrariamente ao que acontece com a expressão (2) de Rogers como vimos anteriormente.





3.5.5.4 Cálculo do fluxo de radão libertado

Estimou-se o fluxo de radão resultante da escombreira velha fixando o maior número de parâmetros numa primeira fase, isto é, admitindo todas as áreas apresentam as mesmas características, à excepção do teor em rádio e a sua área.

Numa segunda fase e de acordo com Pereira et al. (2004a) no que se refere ao plano de contenção e de estabilização da barragem velha da Urgeiriça, considerou-se o teor médio em rádio igual a 12 900 Bq/kg, uma área total de 133 000 m² e o coeficiente de difusão do radão D = 9,7 x 10^{-7} m².s⁻¹. Em Pereira et al. (2004a) figuram ainda alguns valores para os parâmetros necessários ao cálculo e que vamos usar neste caso de exploração. Os dados de entrada específicos do primeiro caso a considerar são os seguintes (Pereira et al., 2004a):

- a espessura do resíduo, x = 14 m
- a densidade do resíduo, ρ = 1670 kg.m⁻³
- o coeficiente de emanação do radão, E = 0,24 (-)
- o teor em rádio (R) para cada uma das zonas consideradas (A₁; B₁ B₆);
- o mesmo coeficiente de difusão para todas as áreas, D = 9,7 x 10⁻⁷ m².s⁻¹.

O fluxo resultante para cada zona individualizada está representado na Tabela 3-59.

Designação	(Bq.m ⁻² .s ⁻¹)
J _A	2,73
J _{B1}	5,44
J _{B2}	5,44
J _{B3}	15,75
J_{B4}	11,98
J _{B5}	15,15
J_{B6}	35,27

Tabela 3-59: Fluxo resultante para cada área de acordo com a actividade em rádio, para o mesmo coeficiente de difusão e para a área total de 133 000 m².

O fluxo médio resultante da área total de 133 000 m² com origem no seu ponto médio encontra-se representado na Tabela 3-60.

Tabela 3-60: Fluxo médio resultante da área total contaminada de 133 000 m².

Área total	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	C₀ (Bq.m ⁻³)	*C₀ (Bq.m ⁻³)
133 000 m ²	5,29	116,38	1046,2

Se considerarmos o mesmo teor de rádio (12 900 Bq.kg⁻¹) para uma área total de 120 000 m², uma vez que foi esta a área total atribuída pela EXMIN (2003) à barragem velha, a porosidade do material da escombreira igual a 0,37 e mantendo os mesmos valores para os restantes parâmetros, verificamos que há um ligeiro aumento do valor do fluxo médio de radão e da concentração ao nível médio do solo.

Tabela 3-61: Fluxo resultante para a área total de 120 000 m², para o mesmo coeficiente de difusão e para a mesma actividade em rádio em toda a área contaminada.

Área total	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	C ₀ (Bq.m ⁻³)	*C ₀ (Bq.m ⁻³)
122 000 m ²	7,22	152,00	1360

Fomos ainda verificar a eficiência do sistema de cobertura proposto em Pereira et al. (2004a) para a barragem velha da Urgeiriça. O sistema de cobertura a implementar sobre a escombreira apresenta como características base uma espessura de 3 metros, porosidade igual a 0,30 e um coeficiente de difusão igual a 5,0 x 10⁻⁷ m².s⁻¹ (Pereira et al., 2004a). O limite para o fluxo de radão libertado recomendado pela EPA (2000) é igual a 0,74 Bq.m⁻²s⁻¹. Um sistema de cobertura eficaz deverá, no mínimo, cumprir este requisito.

O fluxo estimado para a libertação de radão do resíduo sem cobertura é igual a $J_r = 7,21 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ o que origina uma concentração ao nível médio do solo igual a $C_0 = 88,55 \text{ Bq.m}^{-3}$ excedendo bastante o limite recomendado.

O sistema de cobertura proposto vai permitir teoricamente atenuar o fluxo até $J_c = 0,0119 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1} \text{ e} C_0 = 0,1461 \text{ Bq/m}^3$, eliminando quase na totalidade a libertação do radão. No entanto, um sistema de cobertura com as mesmas características, mas com apenas 1 metro de espessura permitiria uma atenuação até ao limite recomendado, pois o fluxo libertado é aproximadamente $J_c = 0,70 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ($C_0 = 8,67 \text{ Bq.m}^{-3}$), cumprindo o limite recomendado. Mais ainda, se a espessura for igual a 2 metros, $J_c = 0,0914 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ($C_0 = 1,12 \text{ Bq.m}^{-3}$), o que fica muito aquém do limite recomendado. Pode-se concluir que uma cobertura de 3 metros seria excessivo se o objectivo for apenas cumprir o limite de 0,74 Bq.m⁻².s⁻¹. No entanto, na nossa estimativa não é considerada qualquer taxa de erosão quer da cobertura, quer do próprio material da escombreira, pressupondo assim que a cobertura se manterá intacta a longo prazo o que não é verdade porque haverá sempre o risco de ocorrer fracturas e fissuras sendo a perda de eficiência da cobertura cerca de 12 vezes a área da superfície atingida pelas fissuras (NUREG, 1984).

Estes resultados encontram-se resumidos na Tabela 3-62 e a figuras seguintes (Figura 3-34 e Figura 3-35) ilustram os resultados obtidos (J, Bq.m⁻²s⁻¹ e C₀, Bq.m⁻³) considerando o sistema de cobertura.

	З	D	Espessura	J	C ₀	* C 0
		(m ² .s ⁻¹)	<i>(</i> m)	(Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	(Bq.m ⁻³)	(Bq.m ⁻³)
Resíduo	0,37	9,2 x 10 ⁻⁷	14	7,21	150,54	1353,23
Cobertura	0,30	5,0 x 10 ⁻⁷	3	0,012	0,250	2,23
Cobertura	0,30	5,0 x 10 ⁻⁷	2	0,091	1,91	132,43
Cobertura	0,30	5,0 x 10 ⁻⁷	1	0,716	14,74	171,06

Tabela 3-62: Fluxo resultante de um sistema de cobertura com diferentes espessuras.



Figura 3-34: Dispersão da concentração de radão (sistema de cobertura x = 3 m), (Bq.m⁻³).



Figura 3-35: Dispersão da concentração de radão (sistema de cobertura x = 3 m) na direcção dominante do vento (NE), (Bq.m⁻³).

3.5.5.5 Comparação dos valores obtidos no modelo com os valores obtidos experimentalmente

Os valores obtidos experimentalmente para a humidade e para o fluxo de radão (Vicente, 2005) encontram-se na Tabela 3-63. As coordenadas referem-se ao ponto médio de cada área definida.

Zona	Humidade	Fluxo	Coord. UTM	Coord. UTM	Coord. M	Coord. P
А	14,6	0,9	594072	4484998	20512	93321
B ₁	27,5	3,0	594197	4485300	20640	93621
B ₂	32,8	2,6	594175	4485244	20618	93566
B ₃	34,4	2,4	594128	4485018	20569	93340
B_4	25,8	2,9	594121	4484867	20560	93189
B ₅	24,4	2,5	594050	4484852	20489	93175
B ₆	17,7	4,7	594005	4484953	20445	93276

							2 1	
Tabala 3-63. Humidada I	(0/_)	o fluvo	do radão	nara cac	la ároa i	(Ram)	י" ה ^ב י	۱.
i abela 5-05. i lutiliuaue (/0)	e liuvo	uerauau	para cac	la alca	(DY.III	.5	٦.

O fluxo médio obtido na exploração do modelo é igual a J = 1,29 Bq.m⁻².s⁻¹ e a concentração média ao nível médio do solo é igual a $C_0 = 28,32$ Bq.m⁻³. A dispersão desta concentração encontra-se representada na Figura 3-36.



Figura 3-36: Dispersão da concentração de radão na área total.

Na direcção dominante do vento, a concentração máxima a partir da qual ocorre a dispersão ao nível médio do solo é igual a $C_0 = 254,58$ Bq.m⁻³. Na Figura 3-37 encontra-se representada a dispersão na direcção dominante a partir deste ponto.



Figura 3-37: Dispersão da concentração de radão resultante dos fluxos parcelares de cada área na direcção dominante do vento (NE).

Refez-se a exploração considerando apenas duas unidades: A e B com as respectivas áreas apresentadas na bibliografia (Vicente, 2005) o que difere da área estimada em cerca de 40 500 m².

Tabela 3-64: Valores médios do fluxo de radão obtidos experimentalmente (Vicente, 2005).

Unidade	Fluxo (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	Humidade (% peso)
A (70 770 m ²)	0,9	14,6
B (21 743 m ²)	3,4	24,6

O fluxo médio obtido para a área total (70 770 + 21 743 = 92 513 m²), é igual a 1,49 Bq.m⁻².s⁻¹ e a concentração ao nível médio do solo, $C_0 = 27,20$ Bq.m⁻³. Na direcção dominante do vento * $C_0 = 245,14$ Bq.m⁻³. Os valores obtidos são semelhantes aos resultados do caso anterior.

Na exploração do modelo, o fluxo médio de radão que se liberta a partir da área total de 133 000 m², estimado com os fluxos parciais medidos experimentalmente, é igual a 1,29 Bq.m⁻².s⁻¹ e a concentração ao nível médio do solo igual a C₀ = 28,32 Bq.m⁻³. Os valores obtidos são bastante aproximados.

Fez-se uma exploração inversa estimando os valores do coeficiente de difusão que deram origem aos fluxos medidos. Os resultados obtidos encontram-se representados na Tabela 3-65.

(ε - θ)	D (m ² .s ⁻¹)	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)
0,126	1,02 x 10 ⁻⁷	0,9
0,171	2,79 x 10 ⁻⁷	3,0
0,157	2,15 x 10 ⁻⁷	2,6
0,079	2,14 x 10 ⁻⁸	2,4
0,105	5,51 x 10 ⁻⁸	2,9
0,083	2,52 x 10 ⁻⁸	2,5
0,073	1,64 x 10 ⁻⁸	4,7

Tabela 3-65: Coeficientes de difusão estimados a partir do fluxo medido e porosidade = 0,37.

Se calcularmos a porosidade a partir dos valores da humidade (% peso húmido) representados na Tabela 3-36, os valores dos respectivos coeficientes de difusão vão ser semelhantes ao caso em que se considera a porosidade igual a 0,37 para todas as áreas, apesar dos valores da porosidade serem superiores, conforme consta da Tabela 3-39. Apenas os valores de ε - θ são diferentes do caso anterior.

(ε - θ)	D (m ² .s ⁻¹)	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)
0,14	1,016 x 10 ⁻⁷	0,9
0,205	2,8 x 10 ⁻⁷	3
0,193	2,12 x 10 ⁻⁷	2,6
0,097	2,14 x 10 ⁻⁸	2,4
0,124	5,47 x 10 ⁻⁸	2,91
0,097	2,52 x 10 ⁻⁸	2,5
0,082	1,64 x 10 ⁻⁸	4,7

Consideramos ainda a porosidade igual a 0,37 para todas as áreas e usou-se a humidade em % de peso húmido na expressão de cálculo do coeficiente de difusão.

Tabela 3-67: Estimativa do fluxo para porosidade igual a 0,37 (humidade, % do peso húmido).

D (m ² .s ⁻¹)	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)
1,65 x 10 ⁻⁷	1,16
1,36 x 10 ⁻⁶	6,62
2,45 x 10 ⁻⁸	8,87
2,87 x 10 ⁻⁶	27,82
1,10 x 10 ⁻⁶	13,10
9,14 x 10 ⁻⁷	15,10
3,14 x 10 ⁻⁷	20,60

O valor obtido para o fluxo médio é igual a 3,7 Bq.m⁻².s⁻¹; a concentração ao nível médio do solo: $C_0 = 81,96$ Bq.m⁻³ e na direcção dominante do vento: * $C_0 = 736,9$ Bq.m⁻³. O fluxo médio resultante para área total é cerca de duas vezes superior ao valor obtido anteriormente.

Se considerarmos, por último, a porosidade igual a 0,37 para todas as áreas e a humidade em % de peso seco, obtém-se os valores descritos Tabela 3-68.

D (m ² .s ⁻¹)	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)
2,8 x 10 ⁻⁷	3
3,97 x 10 ⁻⁶	11,3
9,20 x 10 ⁻⁶	17,20
1,17 x 10 ⁻⁵	42,68
2,97 x 10 ⁻⁶	21,53
2,32 x 10 ⁻⁶	24,07
6,0 x 10 ⁻⁷	28,5

Tabela 3-68: Estimativa do fluxo para porosidade igual a 0,37 (humidade, % do peso seco).

O fluxo médio, J, é igual a 6,76 Bq.m⁻².s⁻¹ e a concentração ao nível médio do solo, C₀, é igual a 148,61 Bq.m⁻³.

3.5.5.6 Resumo dos resultados obtidos nos vários casos

As tabelas seguintes sintetizam os resultados mais relevantes, pela positiva ou pela negativa, obtidos neste estudo.

a) Valores cedidos pela EXMIN nas duas campanhas (Inverno e Verão)

EXMIN	В	А	J (média anual) ⁷
Área (m²)	22 425	110 575	
Ra (Bq/kg)	47 000	8000	
Humidade (%)	22 a 24 %	10 a 15 %	
J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	3,2	0,8 a 0,9 = 0,85	1,025
C₀ (Bq.m ⁻³)			27,39
*C₀ (Bq.m ⁻³)			246,24

Tabela 3-69: Fluxo médio medido pela EXMIN (2003).

⁷ Média ponderada pela respectiva área.

b) Valores de Faísca referentes ao período chuvoso e seco

Faísca	В	Α	J (média anual)
Área (m²)	22 425	110 575	
Ra (Bq.kg ⁻¹)	47 000	8 000	
Humidade (%)	27 a 38%	1 a 33%	
J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	1,5 a 3,0 = 2,25	0,5 a 1,0 = 0,75	1,00
C₀ (Bq.m ⁻³)			22,10
*C₀ (Bq.m ⁻³)			198,17

Tabela 3-70: Fluxo médio obtido por Faísca (1999).

c) Valores de entrada no modelo para ε e (ε - θ) para obter os valores estimados com base nos resultados de Faísca (1999)

Tabela 3-71: Valores de fluxo médio e da concentração ao nível médio do solo.

Modelo	В	Α	A + B
3	0,37	0,37	
ε - θ	0,056	0,084	
J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹) (Faísca)	2,25	0,75	
C₀ (Bq.m ⁻³)	12	8,8	
J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹) médio			1,00
C ₀ (Bq.m ⁻³)			22,10
*C ₀ (Bq.m ⁻³)			198,17

d) Valores do modelo considerando 7 zonas segundo a EXMIN (2003)

Tabela 3-72: Resultados obtidos considerando 7 áreas com diferente concentração em rádio.

Áreas (7)	Α	B ₁	B ₂	B ₃	B ₄	B ₅	B ₆	A + B
²²⁶ Ra (Bq/kg)	4898	9764	9764	28275	21500	27200	63312	
J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	0,9	3,0	2,6	2,4	2,9	2,5	4,7	
J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹) médio								1,29
C₀ (Bq.m ⁻³)								28,34
*C ₀ (Bq.m ⁻³)								254,58

e) Valores do modelo considerando 4 zonas segundo a EXMIN (2003)

Áreas (4)	Α	B (periferia)	B (centro)	С	A + B
Área (m²)	110575	12275	7000	3150	
Ra (Bq/kg)	4898	21800	55492	9764	
J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹) modelo	0,9	2,2	2,95	2,8	
J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹) médio					1,17
C₀ (Bq.m ⁻³)					25,77
*C₀ (Bq.m ⁻³)					231,74

Tabela 3-73: Resultados obtidos considerando 4 áreas com diferente concentração em rádio.

f) Valores do modelo considerando 2 zonas segundo a EXMIN (2003)

Tabela 3-74: Resultados obtidos considerando 2 áreas com diferente concentração em rádio.

Áreas (2)	Fluxo (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	Humidade (% peso)	A + B
A (110 575 m ²)	0,9	14,6	
B (22 425 m ²)	3,4	24,6	
J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹) médio			1,32
C₀ (Bq.m ⁻³)			29,05
*C₀ (Bq.m⁻³)			261,12

g) Valores do modelo considerando 2 zonas segundo a EXMIN e menor área do que a total (EXMIN, 2003), (Vicente, 2005)

Tabela 3-75: Resultados obtidos considerando 2 áreas com diferente concentração em rádio e área inferior à área total.

Unidade	Fluxo (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	Humidade (% peso)	A + B
A (70 770 m ²)	0,9	14,6	
B (21 743 m ²)	3,4	24,6	
J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹) médio			1,49
C₀ (Bq.m ⁻³)			27,20
*C₀ (Bq.m⁻³)			245,14

h) Exploração anterior do modelo (2.º caso)

Áreas (4)	A ₁	A ₂	A ₃	A ₄	A + B
Área (m²)	28255	37622	26476	17969	
Ra (Bq/kg)	10376	10376	10376	2075	
J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	6,85	6,85	6,85	1,370	
J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹) médio					5,96
C₀ (Bq.m⁻³)					119,29
*C₀ (Bq.m ⁻³)					1072,41

Tabela 3-76: Resultados da exploração no 2.º caso de exploração (3.5.3).

i) Exploração anterior do modelo (3.º caso)

Tabela 3-77: Resultados da exploração no 3.º caso de exploração (3.5.4).

Áreas (4)	A ₁	A ₂	A ₃	A ₄	A + B
Área (m²)	28255	37622	26476	17969	
Ra (Bq/kg)	47000	8000	8000	2000	
J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	0,288	0,163	0,206	0,156	
J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹) médio					0,204
C₀ (Bq.m⁻³)					4,08
*C₀ (Bq.m ⁻³)					36,75

j) Método de Wilke & Lee – resultados

Tabela 3-78: Resultados obtidos pelo método de Wilke & Lee para diferentes combinações dos valores de ρ_{dry} e de ρ_{wet} (Tabela 3-44 e Tabela 3-45).

J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	C ₀ (Bq/m ³)	*C ₀ (Bq/m ³)		
a) 3,06	67,29	605,2		
b) 1,57	34,48	312,58		
c) 2,61	57,41	516,14		
d) 1,48	32,47	291,96		

k) Expressão (1) de Rogers – resultados

Tabela 3-79: Resultados obtidos pela expressão (1) de Rogers com diferentes valores de humidade (Tabela 3-49).

J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	C₀ (Bq/m³)	*C ₀ (Bq/m ³)	
a) 5,24	115,19	1035	
b) 3,99	87,69	787,79	

I) Expressão (2) de Rogers – resultados

Tabela 3-80: Resultados obtidos pela expressão (2) de Rogers com diferentes valores de humidade e valores de D_e corrigidos (Tabela 3-52).

J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	C ₀ (Bq/m ³)	*C ₀ (Bq/m ³)	
a) 1,77	39,58	350,38	
b) 1,17	25,87	231,74	
c) 2,32	51	458,23	
d) 1,45	32,30	289,34	

Tabela 3-81: Resultados obtidos pela expressão (2) de Rogers com *m* igual ao grau de saturação (1) e valores de D_e corrigidos (Tabela 3-54).

J (1)	C ₀ (1)	*C ₀	J (2)	C ₀ (2)	*C ₀	J (3)	C ₀ (3)	* C 0
e) 16,68	366,62	3296	g) 10,56	232,02	2234	i) 24,60	541,30	4869
f) 15,89	349,27	3259	h) 10,68	234,79	2258	j) 23,85	524,09	4712

m) Expressão (3) de Rogers – resultados

Tabela 3-82: Resultados obtidos pela expressão (3) de Rogers com diferentes valores de humidade mas porosidade e densidade constantes (Tabela 3-55).

J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	C ₀ (Bq/m ³)	*C ₀ (Bq/m ³)	
10,88	239,14	1264	
11,04	242,62	1283	

W (% P _{húmido})	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹) – D _{ar} = 0,110 cm ² /s	J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹) – D _{ar} = 0,132 cm ² /s		
J	4,36	4,76		
C ₀	85,77	104,55		
*C ₀	862,69	939,93		
W (% P _{seco})				
J	3,38	3,7		
Co	74,41	81,38		
*C ₀	668,96	731,65		

Tabela 3-83: Resultados obtidos com a expressão de Rogers (3) para densidade e porosidade variável (Tabela 3-57).

Tabela 3-84: Resultados obtidos com base nas características locais definidas pela EXMIN (2003) (Tabela 3-60).

J (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)	C ₀ (Bq/m ³)	* C ₀ (Bq/m ³)	
5,29	116,38	1046	

3.5.5.7 Discussão dos resultados obtidos

Da comparação dos valores medidos em ambos os estudos, ou seja, o estudo realizado pela EXMIN (2003) e o estudo realizado por Faísca (1999), podemos observar que Faísca obteve valores do fluxo variáveis entre 1,5 (período chuvoso) e 3,0 Bq.m⁻².s⁻¹ (período seco). Por outro lado, EXMIN (2003) obteve um valor médio anual de 3,2 Bq.m⁻².s⁻¹ em ambos os períodos, referindo-se à parte mais rica em rádio, ou seja as zonas designadas por B. Na parte mais pobre, ou zona A, Faísca (1999) refere valores entre 0,5 e 1,0 Bq.m⁻².s⁻¹ (com variação aleatória ao longo do ano), EXMIN obteve como valor médio 0,8 Bq.m⁻².s⁻¹ (Inverno) e 0,9 Bq.m⁻².s⁻¹ (Verão). Os valores são comparáveis, podendo-se atribuir as variações entre os dois estudos, no caso da zona B, aos diferentes teores de humidade verificados nos respectivos anos a que se referem as medições. A média anual ponderada para os dois estudos é praticamente igual (1,025 e 1,00 Bq.m⁻².s⁻¹) (Tabela 3-69 e Tabela 3-70).

Para obtermos no modelo valores da mesma ordem de grandeza dos medidos adoptou-se o valor de 0,37 para a porosidade (ϵ) em toda a área de modo que a diferença entre a porosidade e o teor volumétrico de água seja igual a ($\epsilon - \theta$) = 0,056 para a área menor e igual a 0,084 para a área maior (Tabela 3-71). Os restantes parâmetros de caracterização do local são iguais aos definidos nos dois estudos.

Na exploração do modelo para os diferentes casos em que EXMIN designa diferentes áreas (2, 4 ou 7) consoante o teor em rádio, os resultados para o fluxo de radão são bastante semelhantes entre si: 1,17 Bq.m⁻².s⁻¹ (4 áreas, Tabela 3-73); 1,29 Bq.m⁻².s⁻¹ (2 áreas, Tabela 3-74) e 1,29 Bq.m⁻².s⁻¹ (7 áreas, Tabela 3-72). O caso em que a área é inferior (92 513 m²) à considerada anteriormente (133 000 m²), o valor do fluxo obtido não difere muito nestes dois casos: J = 1,49 Bq.m⁻².s⁻¹ (resultados referentes à campanha de Inverno).

Relativamente às explorações feitas inicialmente, os valores agora obtidos, bem como os valores medidos, são inferiores aos apresentados no 2.º caso de exploração (3.5.3). No entanto, há que ter em atenção que nesta exploração, os resultados são referentes à média anual. Ainda se pode justificar esta diferença pelo facto dos valores dos parâmetros locais serem superiores aos usados neste estudo, como é o caso do teor volumétrico em água (% em volume) que vai influenciar decisivamente o coeficiente de difusão e consequentemente o fluxo libertado. Os valores do coeficiente de difusão obtidos anteriormente são da ordem de 1,0 x 10⁻⁶ m².s⁻¹ enquanto que no presente estudo são da ordem de 1,0 x 10⁻⁷ m².s⁻¹. Também as áreas consideradas bem como o teor em ²²⁶Ra são diferentes deste estudo, apesar de o local ser o mesmo. O fluxo decresce para 3,46 Bq.m⁻².s⁻¹ se considerarmos as áreas e os teores de ²²⁶Ra deste estudo, mantendo os valores da porosidade e do teor volumétrico em água da exploração do 2.º caso (3.5.3) o que é um valor mais aproximado dos resultados obtidos por medição (Tabela 3-76).

Ainda relativamente às explorações iniciais mas agora referente ao 3.º caso de exploração, os valores obtidos para o fluxo de radão foram bastante mais baixos do que os valores obtidos neste estudo ou medidos, isto pode ser justificado pelo facto de os coeficientes de difusão estimados com a expressão (2) de Rogers, com os quais foi estimado o fluxo resultante, serem da ordem 10⁻⁸ e 10⁻⁹, muito inferiores aos obtidos neste estudo, além de ter sido já referido o uso confuso e inadequado da humidade e do grau de saturação bem como o dos parâmetros D e D_e (Tabela 3-77).

Com o método de Wilke & Lee, os valores obtidos para os coeficientes de difusão originam valores de fluxo dentro dos valores medidos quer por Faísca quer por EXMIN. Os valores resultantes para o fluxo são: 1,48; 1,57; 2,61 e 3,06 Bq.m⁻².s⁻¹ (Tabela 3-78).

Os valores resultantes com a expressão (1) de Rogers ficam ligeiramente acima dos valores medidos: 5,24 e 3,99 Bq.m⁻².s⁻¹ mas são da mesma ordem de grandeza dos valores obtidos no 2.º caso de exploração (Tabela 3-79).

Com a expressão (2) de Rogers os valores obtidos para o fluxo estão dentro dos valores (médios) medidos, bem como os valores corrigidos: 1,77; 1,17; 2,32 e 1,45 Bq.m⁻².s⁻¹ (Tabela 3-80).

Relativamente aos resultados elevados obtidos na Tabela 3-53 e na Tabela 3-54) com a expressão (2) de Rogers, estes podem ser justificados pelo uso errado e confuso dos parâmetros D e D_e , bem como pelo uso confuso de *m* em que é definido como a % de humidade e como o grau de saturação. A justificação também se aplica aos resultados obtidos no 3.º caso de exploração (Tabela 3-81).

Os resultados com a expressão de (3) Rogers são elevados (Tabela 3-82) se forem calculados com os parâmetros genéricos locais mas se se especificar os valores da porosidade (ϵ) estimada de acordo com a humidade em cada área bem como a densidade seca do material (ρ_{dry}) relativamente a cada área, os valores obtidos para o fluxo variam de 3,38 a 4,76 Bq.m⁻².s⁻¹, consoante as diferentes condições consideradas: cálculo com w, % de peso húmido e % de peso seco ou com D_{ar} = 0,110 m².s⁻¹ ou 0,132 m².s⁻¹, (Tabela 3-57).

O valor de fluxo obtido na Tabela 3-60 foi estimado com as características locais descritas por Pereira et al. (2004a). O fluxo obtido é em média superior ao valor medido de 3,2 Bq.m⁻².s⁻¹. Isto resulta, essencialmente pelo facto de se considerar todas as zonas com as mesmas características e consequentemente, os mesmos parâmetros locais, o que na realidade não se verifica (Tabela 3-83).

Utilizando a modelagem inversa a partir dos fluxos medidos experimentalmente para obter os coeficientes de difusão, obtiveram-se valores da ordem de 10^{-7} m².s⁻¹ e 10^{-8} m².s⁻¹, sendo na maior parte dos casos 10^{-8} m².s⁻¹, o que é diferente de considerar para todas as áreas um coeficiente de difusão igual a 9,7 x 10^{-7} m².s⁻¹. No entanto, o valor obtido, J = 5,29 Bq.m⁻².s⁻¹, é muito semelhante ao 2.º caso de exploração.

Relativamente à concentração de radão ao nível médio do solo, consideramos esta distância igual a 1 metro, porque as medições efectuadas pela EXMIN com 110 detectores passivos do tipo LR115, referem-se a esta altura do solo. Foi efectuada uma campanha de medição da concentração em radão em Março (EXMIN, 2003) com clima intermédio e em épocas diferentes das medições efectuadas para o fluxo, o que

implica condições de humidade diferente em ambas as situações. Os valores do fluxo no Inverno originam menores concentrações de radão, como seria de esperar pois quanto maior a humidade ou a quantidade de água, menor a difusão do radão no solo e, consequentemente, menor é o fluxo à superfície.

Os valores medidos para a concentração de radão obtidos pela EXMIN (2003) referentes à barragem velha da Urgeiriça variam entre 195 e 1205 Bq.m⁻³ (mínimo e máximo). A maioria dos resultados situa-se acima dos 400 Bq.m⁻³. O fundo natural de concentração em radão na região é de 20 a 30 Bq.m⁻³. Na vizinhança da escombreira e até uma distância de cerca de 100 m, os valores medidos encontram-se compreendidos entre 200 e 400 Bq.m⁻³: ocasionalmente, foram verificados valores inferiores a 50 Bq.m⁻³ ou superiores a 930 Bq.m⁻³. O valor médio obtido na superfície da barragem velha foi de 557 Bq.m⁻³ (EXMIN, 2003) e na periferia desta, o valor médio obtido foi de 251 Bq.m⁻³. Os valores medidos referem-se a uma só campanha, por isso só faz sentido comparar a média anual dos valores medidos com a média anual dos valores obtidos pelo modelo.

Os valores obtidos para a concentração de radão ao nível médio do solo, na direcção dominante do vento, podem ser agrupados essencialmente em 3 classes de valores: entre 200 e 250, entre 300 e 600 e entre 700 e 1000 Bq.m⁻³.

Se a concentração de radão for estimada pela simulação do modelo com os fluxos medidos experimentalmente, considerando que cada ponto medido corresponde à área total de 133 000 m², então, a concentração média obtida à altura de 1 metro é igual a 53,27 Bq.m⁻³ e na direcção dominante do vento é igual a 417 Bq.m⁻³. A concentração média obtida para a fonte pontual é cerca de 8 vezes inferior à média dos valores obtidos experimentalmente (550 Bq.m⁻³). A concentração obtida para a direcção dominante do vento aproxima-se mais da concentração medida experimentalmente apesar de em alguns pontos ser superior ao valor máximo medido. A simulação na direcção dominante do vento (NE) aproxima-se da realidade dos valores obtidos experimentalmente para a concentração de radão (Bq.m⁻³).

Os valores obtidos na simulação do modelo, tendo como ponto de partida os fluxos medidos experimentalmente quer por Faísca (1999) quer por EXMIN (2003) e aos quais correspondem os fluxos 1,0 e 1,49 Bq.m⁻².s⁻¹, respectivamente, originam uma concentração ao nível do solo de 200 e 250 Bq.m⁻³ na direcção dominante do vento.

Pelo método de Wilke & Lee a concentração de radão, na direcção dominante do vento, varia entre 300 e 600 Bq.m⁻³ com os fluxos correspondentes a variarem entre 1,5 e 3,0 Bq.m⁻².s⁻¹.

A expressão (1) de Rogers a que corresponde fluxos entre 4 e 5 Bq.m⁻².s⁻¹ origina valores da concentração de radão, na direcção dominante do vento, entre 700 e 1000 Bq.m⁻³.

A expressão (2) de Rogers, a que corresponde fluxos entre 1 e 2 Bq.m⁻².s⁻¹ origina valores da concentração de radão que variam entre 200 e 400 Bq.m⁻³.

A expressão (3) de Rogers, a que corresponde fluxos entre 10 e 11 Bq.m⁻².s⁻¹ origina valores da concentração de radão que variam entre 200 e 250 Bq.m⁻³, mas na direcção dominante do vento os valores obtidos, 1264 e 1283 Bq.m⁻³ respectivamente, ultrapassam o valor máximo medido experimentalmente.

A expressão (3) de Rogers, que corresponde fluxos entre 3 e 4,5 Bq.m⁻².s⁻¹, origina valores da concentração de radão que variam entre 700 e 950 Bq.m⁻³.

Com base nas características locais descritas pela EXMIN (2003), a concentração de radão na direcção dominante do vento obtida pelo modelo é da mesma ordem de grandeza do valor máximo obtido experimentalmente, ou seja 1046 Bq.m⁻³.

A média dos valores obtidos experimentalmente, segundo os dados cedidos pela EXMIN (2003), para a concentração de radão sobre a superfície da barragem velha é igual a 453 Bq.m⁻³. Se considerar toda a área, isto é, todo todos os pontos medidos para a concentração de radão na área mineira da Urgeiriça: escombreira de minério, barragem velha de rejeitados, periferia da barragem velha de rejeitados, barragem nova e neutralização e periferia da barragem nova o valor médio é cerca de 296 Bq.m⁻³ (EXMIN, 2003).

A Tabela 3-85 sintetiza os resultados obtidos pelo modelo para a concentração de radão na direcção dominante do vento. Estão representados também os resultados para x = 0 m, a que corresponde a concentração máxima ao nível médio do solo e a partir da qual ocorre a dispersão.

	x (m)	C ₀ (Bq.m ⁻³)	x (m)	C ₀ (Bq.m ⁻³)	x(m)	C ₀ (Bq.m ⁻³)
1	0	246	250	140	700	50
2	0	198	250	120	670	20
3	0	198	250	120	670	20
4	0	255	250	140	670	50
5	0	232	250	140	670	20
6	0	255	250	150	670	50
7	0	245	150	140	600	50
8	0	1072	150	600	630	100
9	0	37	150	20	630	5
10						
a)	0	605	250	350	670	50
b)	0	313	250	175	670	50
c)	0	516	250	325	670	50
d)	0	292	250	175	670	50
11						
a)	0	1035	250	600	650	100
b)	0	788	250	450	650	100
12						
a)	0	350	250	225	650	50
b)	0	232	250	140	650	20
c)	0	458	250	275	650	50
d)	0	289	250	175	650	50
e)	0	3296	250	1750	650	500
f)	0	3259	250	1750	650	500
g)	0	2234	250	1200	650	200
h)	0	2258	250	1200	650	200
i)	0	4689	250	2750	650	500
j)	0	4712	250	2750	650	500
13						
a)	0	239	250	1200	650	200
b)	0	243	250	1300	650	200
14						
a)	0	863	250	500	650	100
b)	0	940	250	550	650	100
C)	0	669	250	400	650	100
d)	0	732	250	450	650	100

Tabela 3-85: Concentração de radão na direcção dominante do vento (modelo), casos 1 a 14.

Ao fim de 150 a 250 metros da fonte pontual, a concentração diminui consideravelmente para todos os casos e ao fim de 600 a 700 metros atinge a concentração mínima (\leq 20 Bq.m⁻³), que em alguns casos (5) corresponde ao fundo

radioactivo da região (20 a 30 Bq.m⁻³). Em muitos casos (11) a concentração mínima resultante é ligeiramente acima do fundo (50 Bq.m⁻³) enquanto que para outros casos (7), a concentração mínima obtida é superior a duas vezes a concentração do fundo (100 Bq.m⁻³). Por último, existem ainda casos em que a concentração mínima é exageradamente superior ao fundo radioactivo como por exemplo, igual a 200 Bq.m⁻³ (4 casos) e igual a 500 Bq.m⁻³ (4 casos).

O fluxo obtido com as características definidas pela EXMIN (2003), J = 5,29 Bq.m⁻².s⁻¹, para x = 0 m, origina uma concentração máxima e igual a 1046 Bq/m³, a cerca de 200 m da fonte, a concentração diminui para 600 Bq.m⁻³ e ao fim de 700 metros, a concentração é inferior a 100 Bq.m⁻³.

Com base nestes resultados obtidos podemos eliminar os casos que à partida e mediante os resultados demasiado elevados, quer do fluxo quer da concentração de radão na direcção dominante do vento, já estariam excluídos por não serem simulações fiáveis. Os casos a eliminar são os identificados pelas alíneas e, f, g, h, i, j do caso 12 e as alíneas a e b do caso 13. Os que revelam melhor ajuste entre os valores medidos e os valores do modelo são os casos identificados por: 1; 2; 3; 4; 5; 6; 7; 10 (b, d) e 12 (a, b, d) (Tabela 3-85).

3.6 Conclusões

Os modelos desenvolvidos pretendem descrever a dispersão de radão que se liberta das barragens de estéreis, resíduos e/ou rejeitados, e que resultaram do tratamento hidromineralúrgico do minério de urânio. O modelo considera a fonte de emissão inicialmente como um ponto, localizado no centro da área contaminada com o mesmo fluxo mássico que toda a zona afectada. Consideraram-se 4 fontes pontuais que foram agrupadas numa só. A dispersão do radão é descrita pelo modelo da pluma de Gauss. Dos resultados obtidos é possível extrair as seguintes conclusões:

1. A bibliografia consultada refere que uma cobertura eficaz para uma escombreira de resíduos radioactivos numa situação de reabilitação ambiental deverá apenas permitir a passagem de um fluxo médio de radão, inferior a 0,74 Bq.m⁻².s⁻¹ (EPA, 1995). No 1.º exemplo de exploração, a cobertura é constituída por solo limpo com uma espessura de 1,20 m. O fluxo de radão que se liberta para o exterior, neste caso teórico, é igual a 1,93 Bq.m⁻².s⁻¹. Se não existir cobertura, o fluxo libertado é igual a 5,96 Bq.m⁻².s⁻¹. Em ambos os casos

o fluxo obtido é superior ao valor recomendado, no entanto, a cobertura permitiu a atenuação do fluxo libertado para a atmosfera em cerca de 32 %. No 2.º caso de exploração o fluxo total obtido foi de 0,20 Bq.m⁻².s⁻¹.

- 2. A concentração na atmosfera respirável (Bq.m⁻³) é proporcional à potência da fonte (Bq.s⁻¹), que por sua vez é proporcional ao fluxo libertado. O seu valor depende da existência ou não da cobertura e, no caso de existir, da sua espessura. Quanto maior o fluxo, maior a potência da fonte e maior a concentração na atmosfera à altura de 1,7 m do solo.
- 3. A dispersão do radão na atmosfera, segundo cada direcção do vento (em cada sector), origina uma diluição da concentração de radão ao fim de alguns metros. No 1.º caso de exploração, a dispersão do radão em cada sector, desde a fonte de emissão até à distância de 2 km, varia entre 70,17 (concentração à altura média respirável) e 0,21 Bq.m⁻³.
- 4. Na direcção dominante do vento, NE, e em toda a extensão do lado do octógono que delimita exteriormente o sector nesta direcção, a concentração de radão varia entre 630,83 (concentração à altura média respirável) e 5,92 Bq.m⁻³, no caso de não ter a camada de cobertura. Na direcção dominante do vento, a concentração de partida para a dispersão é um valor superior ao caso em que se considera cada sector, isto porque, assume-se que todo o fluxo é dirigido para o sector referente à direcção dominante do vento.
- 5. Para o caso considerado com uma cobertura de 1,2 m de solo limpo, a dispersão do radão, considerando todos os sectores, varia de 22,27 a 0,067 Bq.m⁻³. Na direcção dominante do vento é variável de 204,30 a 1,92 Bq.m⁻³.

Relativamente ao modelo podemos dizer o seguinte:

- 6. O fluxo de radão calculado no modelo depende do coeficiente de difusão, cuja variação é muito sensível relativamente à percentagem de humidade do material do resíduo e à porosidade: os parâmetros físicos do local, nomeadamente, a porosidade e a humidade, são determinantes para o cálculo do coeficiente de difusão e do fluxo resultante. É possível estabelecer uma relação entre o tipo de dados disponíveis para a humidade no solo, e o coeficiente de difusão através de expressões empíricas.
- No 2.º caso de exploração, os valores da concentração de radão na atmosfera, desde a fonte de emissão até à distância de 2 km, considerando todos os

sectores, variam de 2,40 a 0,0071 Bq.m⁻³. Na direcção dominante do vento, NE, e em toda a extensão do lado do octógono que delimita exteriormente o sector nesta direcção, a concentração de radão varia de 21,62 e 0,20 Bq.m⁻³.

- 8. O modelo contempla o cálculo do fluxo com e sem camada de cobertura e também permite o dimensionamento de uma cobertura de forma a cumprir o critério do fluxo imposto. No caso de não existir a camada de cobertura, o fluxo apenas depende das características do material constituinte da resíduo: quanto mais poroso, maior o coeficiente de difusão, maior é o fluxo que se liberta para o ar exterior. Isto verifica-se no 1.º caso de exploração, em que os coeficientes de difusão são muito superiores aos do 2.º caso de exploração, originando fluxos e concentrações de radão mais elevados, mesmo partindo de actividades inferiores.
- 9. O modelo fornece uma estimativa da concentração de radão à altura média de 1,7 m do solo, bem como a sua dispersão no ar ao longo de uma distância x da fonte de emissão que se considerou ser igual a 2000 m. O modelo calcula a concentração de radão na fonte de emissão (x = 0 m), e para x = R, em que R representa o raio da circunferência circunscrita no octógono.
- 10. O modelo permite estimar a dispersão de radão a partir do limite de cada sector, definido pela extensão do lado do octógono (dispersão no lado octógono), assumindo que todo o fluxo é dirigido para a direcção dominante do vento. Para distâncias inferiores à apótema⁸ do polígono, isto é, dentro do sector definido pela direcção dominante do vento, a concentração é constante e igual à concentração à altura de 1,7 m do solo.

⁸ Altura de cada triângulo que compõe um polígono e o seu valor é dado por x = R $cos(\pi/8)$.

"Nada é mais maleável e frágil quanto a água. Contudo, ninguém, por mais poderoso que seja, resiste à sua acção de corrosão, desgaste ou choque de ondas, ou tão-pouco pode viver sem ela. Não é bastante claro que a flexibilidade é mais eficaz do que a rigidez? Poucos agem de acordo com essa convicção."

Lao Tse
Capítulo 4

Modelo de libertação e transporte na água

Resumo

Para o transporte hidrológico foi desenvolvido um modelo bidireccional para simular a libertação dos radionuclídeos e o seu transporte seguencial em duas direcções: verticalmente através do resíduo e do solo até à água subterrânea e horizontalmente ao longo do aguífero até ao ponto de exposição. O resultado final é a concentração dos radionuclídeos na água subterrânea, em função do tempo decorrido, a uma distância predefinida da fonte de contaminação. Esta distância corresponde à localização do meio receptor, representado por um poço, onde os radionuclídeos se encontram acessíveis para a exposição ambiental através do uso da água para ingestão ou para irrigação. O processo de libertação dos radionuclídeos da matriz do resíduo é baseado num modelo ideal de lixiviação que estima a concentração dos radionuclídeos na fase líquida segundo um processo de transferência. O transporte dos radionuclídeos na vertical pode ser simulado para condições hidrológicas total ou parcialmente saturadas, tendo em consideração o retardamento dos radionuclídeos nesta direcção. A análise do transporte dos radionuclídeos na trajectória horizontal é feita com base nos processos de transporte descritos pela equação de difusão/dispersão - advecção. O modelo tem por base a solução analítica da equação de transporte no estado estacionário e unidimensional de uma substância reactiva com decaimento radioactivo e retardação. O modelo considera ainda as escorrências superficiais como um mecanismo de libertação devido à força física provocada pela água superficial e também como um mecanismo de transporte mobilizando as substâncias libertadas para as águas superficiais. Por último, obtiveram-se dados das análises radiológicas para o urânio e para o rádio nas águas subterrâneas e superficiais, referentes à zona mineira da Urgeirica, com os quais testamos o modelo e comparamos os resultados obtidos com os valores medidos experimentalmente para a sua validação.

4.1 Introdução

Os efeitos ambientais resultantes da exploração e do tratamento de minérios radioactivos têm origem essencialmente em duas grandes fontes: i) nas actividades mineiras e ii) nos radionuclídeos existentes nos estéreis ou nos resíduos.

Os resíduos resultantes do processo de beneficiação do minério de urânio têm potencial para causar detrimento, essencialmente, pela fuga e transporte de vários contaminantes para a atmosfera, solo circundante, água superficial e água subterrânea. O armazenamento destes materiais não é estático estando sujeitos a uma dispersão ambiental pelos agentes naturais, podendo afectar áreas extensas. A dispersão pode ocorrer através de três mecanismos principais de transporte:

- 1. Libertação de poeiras do resíduo na atmosfera;
- Transporte dos radionuclídeos dissolvidos nas águas de escorrência ou de infiltração podendo atingir as águas subterrâneas (poços, fontes e nível freático);
- Transporte como sólidos em suspensão nas águas de escorrência para as águas superficiais (ribeiros).

Os elementos perniciosos são mobilizados desta forma pelos vectores de dispersão que os depositam nos meios receptores: solo, sedimentos, plantas, biótipo aquático e fauna. A exposição às substâncias radioactivas e tóxicas pode originar o desenvolvimento de doenças cancerígenas e outras, bem como alterações genéticas. O armazenamento dos estéreis vai constituir um risco para a saúde pública, essencialmente porque:

- O rádio presente nos estéreis vai sofrer decaimento radioactivo e originar o radão na forma gasosa, sendo facilmente transportado pelo ar e cujos produtos radioactivos podem ser inalados e alojarem-se nos pulmões;
- A radiação γ emitida pelos radionuclídeos existentes nos estéreis vai constituir uma exposição directa;
- As substâncias tóxicas e radioactivas dos estéreis, principalmente o rádio, podem ser lixiviadas e contaminar as águas superficiais e subterrâneas podendo ser ingeridas directamente na água ou indirectamente através dos alimentos contaminados.

4.2 Trajectórias gerais de exposição

As trajectórias através das quais os radionuclídeos são libertados da pilha de estéreis, vão originar uma exposição para os humanos resultante do transporte através da atmosfera e do solo ou, alternativamente, através dos sistemas aquáticos.

A exposição da população residente resulta quer da exposição interna (inalação e ingestão), quer da exposição externa (submersão no ar e exposição ao solo superficial).

A exposição interna pode ser directa através da inalação e ou da ingestão de água contaminada, ou indirecta através da ingestão de alimentos (carne, leite, vegetais) contaminados. Apesar de indirecta, esta trajectória pode ser bastante significativa devido à concentração biológica nos alimentos. A irradiação externa pode ocorrer na área de deposição e/ou resultar da libertação dos materiais depositados. As trajectórias de exposição podem ser agrupadas, de uma forma genérica em (IAEA, 1992):

• Trajectórias atmosféricas

- o Inalação do radão e dos seus descendentes;
- Inalação de partículas radioactivas;
- o Irradiação externa.

• Trajectórias atmosféricas e terrestres

- o Ingestão de alimentos contaminados;
- o Irradiação externa.

• Trajectórias aquáticas

- o Ingestão de água contaminada;
- Ingestão de alimentos irrigados com água contaminada, peixe e a biota aquática;
- o Irradiação externa.

Um caso particular da exposição para os humanos é representado pelo rádio para o qual a principal trajectória de exposição resulta da ingestão de produtos contaminados: água, peixe ou qualquer outro elemento da biota aquática contaminado, carne e leite provenientes de animais contaminados. As doses para o público podem ainda ter origem na ingestão de vegetais irrigados, durante o seu crescimento, com água contaminada. As trajectórias gerais de exposição encontram-se representadas na Figura 4-1.



Figura 4-1: Exemplos de trajectórias de exposição. Fonte: User's Guide for Presto-EPA-CPG Operation System, (Hung, 1996).

4.3 Os estéreis da beneficiação de urânio

Os estéreis da mineração do urânio são constituídos por resíduos sólidos e líquidos associados, resultantes do processamento do minério para recuperar o urânio. A principal característica que distingue estes estéreis dos resíduos resultantes do processamento de outros minérios metálicos, é a sua elevada concentração em actividade residual, ou seja o elevado conteúdo em radionuclídeos.

Os estéreis de urânio contêm cerca de 75 % da radioactividade e 99 % da massa original presente no minério. Os estéreis podem ainda conter outros compostos químicos utilizados no processo de extracção, poluentes tóxicos associados ao minério, precipitados da neutralização dos ácidos e precipitados do processo de tratamento de remoção do rádio.

Apesar da radioactividade de alguns constituintes dos resíduos radioactivos serem de origem natural, o processo de mineração removeu-os para a superfície e alterou o seu estado químico e físico. Estas alterações aumentaram a mobilidade dos poluentes e também a possibilidade da sua dispersão no ambiente. Adicionalmente, devido à presença de radioisótopos residuais (não lixiviados) de longo período de vida,

os estéreis vão permanecer radioactivos por longos períodos de tempo. Por outro lado, os contaminantes não radiológicos vão persistir no ambiente podendo constituir uma fonte de contaminação devido aos diversos metais pesados presentes (IAEA, 1992).

A composição dos resíduos da beneficiação do minério de urânio pode ser muito variável, dependendo essencialmente do teor do minério e do processo de beneficiação. Granulometricamente são constituídos essencialmente por duas fracções: areias e lamas, que podem ser depositadas em conjunto, ou sofrer uma hidrociclonagem em que as areias vão directamente para a barragem de estéreis e as lamas para um tanque de decantação. O rádio (²²⁶Ra) e o tório (²³⁰Th) vão ser os constituintes de maior preocupação ambiental, estando associados à fracção das lamas dos estéreis. As substâncias presentes incluem elementos químicos como o As, Mo, Se, U, e em menores quantidades, uma variedade de outras substâncias tóxicas. A concentração de fundo do solo, ou cerca de 50 a 86 % da radioactividade inicial, dependendo da proporção de radão (²²²Rn) libertado durante a operação de beneficiação. Para além destes, poderão existir outros constituintes, nomeadamente, metais, sulfatos, carbonatos, nitratos e solventes orgânicos, dependendo do tipo de minério e do processo de beneficiação usado.

4.4 Descrição do modelo de transporte hidrológico

O modelo do transporte hidrológico abrange alguns dos mecanismos de dispersão dos contaminantes já referidos. Estes têm em comum o meio de dispersão, a água, e podem ocorrer da seguinte forma:

- Transporte através das águas de escorrência ou de infiltração podendo atingir as águas subterrâneas (poços, fontes e nível freático);
- Transporte como sólidos suspensos nas águas de escorrência para as águas superficiais (linhas de água).

Os constituintes tóxicos são libertados ou induzidos a deixar a fonte de contaminação através de um mecanismo de libertação podendo ser encontrados no ambiente sob diversas formas. No meio hidrológico, encontram-se dissolvidos na água fluindo através do meio poroso, uma vez que a sua solubilização aumenta de um modo notável a mobilidade ambiental.

A água da precipitação é o principal vector do transporte hidrológico podendo ocorrer na forma de chuva, neve ou granizo, consoante as condições do clima. Numa descrição simplificada do ciclo hidrológico, podemos considerar que o vapor de água existente na atmosfera, em condições adequadas, condensa e precipita sobre os oceanos e os continentes. Quando chega à superfície da Terra, a precipitação é subsequentemente dispersa através de diferentes trajectórias. Podemos dizer que parte da água da precipitação é devolvida à atmosfera por evaporação (a água transforma-se parcialmente em vapor, à superfície do solo) e por transpiração (isto é, perda indirecta do vapor de água do solo para a atmosfera através do mecanismo respiratório das plantas). O efeito combinado da evaporação e da transpiração é designado por evapotranspiração. Outra parte da água da precipitação penetra no subsuperfície do solo (por percolação) sendo adicionada ao sistema de fluxo subterrâneo. Finalmente, a última parte da água da precipitação (a que não é devolvida à atmosfera nem se infiltra no solo) constitui as escorrências superficiais e vai ser adicionada aos ribeiros, aos rios e lagos das proximidades. Este conceito de ciclo hidrológico pode ser representado matematicamente por uma equação de balanço de água, com base na lei da conservação da massa, que na sua forma mais simples pode ser representada por (Yu et al., 2001):

$$q_{s} - q_{e} = \frac{ds}{dt}$$
(4-1)

em que q_s representa a água que entra no sistema, q_e representa a água que sai, e ds/dt representa a variação da água no sistema ao longo do tempo.

A variação do volume de água armazenada no solo por unidade de área superficial (Δ S) durante um determinado período de tempo (Δ T) deverá ser igual à diferença entre o fluxo de entrada, no espaço e no tempo, da precipitação (P_r) e da irrigação (IR_r) e o fluxo de saída por percolação (I_r), por escorrência (R_r) e a fracção que se perde por evapotranspiração (ET_r). A equação de balanço que traduz a lei de conservação da massa pode ser representada pela expressão (4-2).

$$\frac{\Delta S}{\Delta T} = (P_r + IR_r) - (I_r + R_r + ET_r)$$
(4-2)

em que todos os fluxos de entrada e de saída têm unidades LT⁻¹.

A precipitação que entra num sistema hidrológico vai sofrer amplas flutuações no domínio do tempo. Como todas as entradas e saídas da equação do balanço de água dependem da precipitação, também vão apresentar as mesmas flutuações ao longo do tempo. Como resultado, a variação de Δ S é altamente dependente do período de tempo considerado. Para pequenos períodos de tempo, a quantidade da água armazenada no solo (Δ S) pode apresentar variações muito acentuadas. Contudo, para períodos de tempo elevados, nomeadamente, para ciclos sazonais ou ciclos anuais, a variação da água armazenada no solo (Δ S), particularmente na parte superior do solo, é pequena relativamente ao balanço de água total do sistema. Assim, considerando fluxos médios de entrada e de saída neste sistema hidrológico, a equação de balanço de água pode ser traduzida em:

$$P_r + IR_r = I_r + R_r + ET_r$$
(4-3)

Todos os termos da expressão anterior, à excepção do débito de percolação, I_r, podem ser determinados por medições directas no campo ou através de coeficientes específicos do solo e de outras características ambientais. Como a medição directa do débito de percolação (I_r) *in-situ* não é possível, o seu cálculo pode ser deduzido através das outras componentes da equação do balanço de água:

$$I_{r} = (P_{r} + IR_{r}) - (R_{r} + ET_{r})$$
(4-4)

O fluxo de percolação (I_r) representa a quantidade de água que se infiltra através das camadas superiores do solo e eventualmente acaba por ser adicionada ao fluxo subterrâneo. No modelo de transporte hidrológico apresentado, este parâmetro é utilizado para simular a lixiviação dos radionuclídeos da zona contaminada e estimar a contaminação final na água subterrânea.

Este parâmetro pode ainda ser determinado em função do fluxo da precipitação (P_r), do fluxo da irrigação (IR_r) e dos coeficientes de escorrência (C_r) e de evapotranspiração (C_e) definidos da seguinte forma:

$$C_{r} = \frac{R_{r}}{P_{r}}$$
(4-5)

$$C_{e} = \frac{ET_{r}}{(1 - C_{r}) \cdot P_{r} + IR_{r}}$$
(4-6)

O coeficiente de escorrência (C_r) representa a fracção média anual da água da precipitação que não se infiltra no solo, nem é devolvida à atmosfera através da evapotranspiração, constituindo um fluxo superficial que acaba por ser adicionado às

águas superficiais (ribeiros, rios ou lagos). O coeficiente de escorrência pode variar entre 0 e 1.

O coeficiente de evapotranspiração (C_e) representa o quociente entre o volume total de água que resulta da evapotranspiração (ET_r) e o volume total de água disponível no solo ao nível da zona das raízes das plantas (($1 - C_r$). $P_r + IR_r$) durante um período de tempo específico. Em solos agrícolas irrigados a transpiração predomina sobre a evaporação, constituindo quase a totalidade da evapotranspiração. O caso em estudo não constitui um solo agrícola, nem é irrigado, pelo que a transpiração vai representar uma pequena (ou nenhuma) fracção da evaporação total.

Das equações anteriores podemos deduzir que o débito de infiltração (I_r) pode ser expresso por:

$$I_{r} = (1 - C_{e}) \cdot [(1 - C_{r}) \cdot P_{r} + IR_{r}]$$
(4-7)

A água que se infiltra no solo, bem como a que constitui as escorrências superficiais, vai remover os elementos perniciosos do resíduo através do mesmo mecanismo de libertação, a lixiviação, que constitui o processo através do qual, os contaminantes nos estéreis são mobilizados pela água da precipitação. A lixiviação pode ser reduzida, quer pela limitação da água de percolação, quer pela fixação química dos contaminantes. A água que se infiltra no solo pode atingir a zona não saturada e preencher os poros existentes. A água na zona insaturada pode migrar para a zona saturada ou pode ser retida na forma de humidade do solo para ser devolvida à atmosfera por evapotranspiração.

A lixiviação representa assim o processo que vai desencadear a migração dos RDN bem como dos outros constituintes dos estéreis. Os compostos solúveis, juntamente com a água da precipitação, ao infiltrarem-se no solo contêm poluentes originalmente presentes nos estéreis, nomeadamente o rádio, alguns compostos químicos introduzidos no processo de moagem e outros poluentes não radioactivos. Estes contaminantes podem migrar até ao subsolo (o grau de migração vai depender da constituição química dos estéreis e do débito da precipitação) e serem transportados pela água subterrânea e eventualmente descarregados à superfície, o que depende da natureza dos solos e da proximidade quer das águas subterrâneas. O fluxo de escoamento é determinado pelas propriedades hidrológicas do local e das características do solo, entre as quais a permeabilidade, a porosidade e a fracturação.

As águas infiltradas com os contaminantes dissolvidos podem chegar ao aquífero e contaminar poços e fontes, ficando incorporadas nas águas subterrâneas. Parte dos radionuclídeos existentes na água do aquífero, os radionuclídeos residuais, podem ser transportados até às águas superficiais, constituindo um meio de exposição adicional para os receptores humanos e ecológicos.

A escorrência pode actuar como um mecanismo de libertação, através da força física provocada pelo movimento da água superficial em direcção aos ribeiros, e também como um mecanismo de transporte deslocando as substâncias libertadas para outro meio ou local. A escorrência superficial do solo vai depender da morfologia do terreno, do declive, do tipo do material do solo e da utilização a que o solo está sujeito. As águas de escorrência transportam as partículas do resíduo e os elementos perniciosos dissolvidos, essencialmente para os ribeiros, passando a fazer parte das águas superficiais que também podem ser contaminadas pelas partículas resultantes da erosão do solo bem como da deposição atmosférica. As águas superficiais vão constituir um meio de exposição essencialmente para o biótipo aquático.

Os radionuclídeos podem permanecer dissolvidos na água ou acumularem-se nos sedimentos. Podem ainda ser acumulados na biota ou serem transferidos através da cadeia alimentar aquática. Como trajectória de transporte, poderão afectar os sedimentos (adsorção) e o solo, tendo como principais receptores as plantas e os animais aquáticos, além da população através da ingestão directa. O biótipo aquático pode ser afectado tanto pela entrada directa como pela absorção a partir da água superficial ou sedimentos.

Os radionuclídeos na água podem causar impacte no homem através da exposição interna directamente pela ingestão de água, ou indirectamente a partir da água de irrigação do solo que contamina alguns alimentos (leite, carne, vegetais) que podem ser ingeridos pelo homem e pelos animais. Estes, por sua vez, também podem originar uma exposição interna no homem através da ingestão.

Em resumo, os radionuclídeos são libertados da fonte através de um mecanismo de libertação (lixiviação), transportados (infiltração e escorrência) até ao meio de exposição (água subterrânea, água superficial, sedimentos, alimentos e biota aquática) ficando disponíveis para os organismos (receptores humanos e ecológicos) através das seguintes trajectórias de exposição:

Ingestão directa da população (água, gado, vegetais);

- Irrigação do solo (plantas, vegetais);
- Ingestão directa pelos animais;
- Biota aquática (peixes e plantas).

4.4.1 O modelo conceptual

A intensidade de acumulação de radionuclídeos num ecossistema é essencialmente função dos débitos entre os vários componentes. O fluxo de radionuclídeos através de um ecossistema pode ser descrito por equações que dependem de parâmetros variáveis e específicos do local.

Como se pretende estudar a dispersão dos contaminantes originada pela água e estimar quantitativamente as consequentes concentrações neste meio e nos receptores expostos (vegetais, animais e biótipo aquático), é necessário estimar a quantidade de radionuclídeos disponibilizada para transporte pelo mecanismo de libertação com origem na precipitação, simular o seu transporte desde o local da deposição dos resíduos até aos receptores ambientais e destes para o corpo humano através da cadeia alimentar e, finalmente, estimar os efeitos na saúde humana devido à exposição do corpo humano aos radionuclídeos.

O modelo desenvolvido tem em consideração as condições hidrológicas (litologias presentes, características do aquífero, a sua relação espacial com a fonte de contaminação e com os receptores, o caudal de águas subterrâneas, etc.,) e as condições climáticas (precipitação, evaporação, etc.,). Simula a lixiviação do resíduo e o transporte dos radionuclídeos em condições hidrológicas total ou parcialmente saturadas, tendo em consideração o retardamento dos nuclídeos devido à sorção parcial do radionuclídeo pelo meio sólido no aquífero: os radionuclídeos que chegam ao aquífero são retardados e portanto, transportados a uma velocidade menor relativamente à da água subterrânea o que aumenta o tempo transiente do transporte até ao receptor, resultando num decaimento radioactivo adicional. Assume-se desta forma, que o transporte dos radionuclídeos ocorre na vertical desde a infiltração até chegar ao aquífero e na horizontal ao longo deste.

A transferência dos radionuclídeos da fase líquida para a fase sólida e viceversa pode ser controlada por mecanismos como a adsorção e a precipitação, dependendo dos radionuclídeos envolvidos. As interacções físicas e químicas complexas entre os nuclídeos e o meio geológico são quantificadas por um só factor, K_d , que descreve o grau de retardamento dos radionuclídeos relativamente à água subterrânea (Yu et al., 1993). Este factor, K_d , denominado habitualmente por coeficiente de partilha solo-água, quantifica a capacidade de permuta de um meio geológico para um dado ião e representa o quociente entre a concentração na fase sólida, S, (unidade de massa por massa) e a concentração na fase líquida, C, (unidade de massa por volume), quando a reacção de adsorção está em equilíbrio. Nestas condições (em equilíbrio) assume-se que a concentração do soluto na fase sólida é proporcional à concentração na fase líquida. As dimensões do coeficiente de partilha são dadas em unidade de volume por massa (L³.M⁻¹).

$$S = K_{d} \cdot C \tag{4-8}$$

Quando S = 0, não há adsorção da fase sólida. Neste caso, o transporte do anião apenas se deve ao movimento da água e à difusão molecular através do solo. Quando S = ∞ , o composto é insolúvel na água estando totalmente sorvido no solo.

Na literatura especializada é possível encontrar vários valores de K_d, medidos em condições de adsorção. Sabe-se, no entanto, que estes valores experimentais de K_d são variáveis mediante o tipo de solo. Os valores de K_d são dependentes das propriedades físicas do solo e das suas características químicas que não se mantêm necessariamente constantes ao longo do tempo, uma vez que os solos constituem sistemas dinâmicos: são principalmente uma função do teor em matéria orgânica do solo, mas também dependem da granulometria do solo, além de factores físicos como a temperatura (Yu et al., 2001).

Quando os radionuclídeos transportados ao longo do aquífero atingem um poço, podem constituir uma trajectória de exposição para os seres-humanos através da: i) ingestão de água; ii) irrigação do solo e/ou da vegetação e iii) alimentação dos animais de pasto. Assume-se que os radionuclídeos residuais existentes no aquífero continuam a ser transportados podendo ser incorporados nas águas superficiais, para outra forma de transporte, e originar iguais impactos em receptores afastados do local contaminado.

A análise do transporte dos radionuclídeos na trajectória horizontal, ao longo do aquífero, é feita com base no modelo de transporte hidrológico desenvolvido por Hung (1980). Este modelo permite uma simulação do transporte dos radionuclídeos na água subterrânea e foi adoptado para o nosso modelo com a finalidade de permitir

uma estimativa da avaliação dos efeitos radiológicos resultantes da potencial exposição humana a este tipo de resíduos radioactivos de baixo nível.

A simulação do transporte subterrâneo é feita pela implementação da solução analítica aproximada da equação básica de transporte (Hung, 1980) em que os cálculos numéricos complicados, inevitáveis num modelo de transporte hidrológico devido aos efeitos da dispersão longitudinal e à adaptabilidade das condições fronteira irregulares, (que mais à frente são referidas) são superados pela introdução de um factor de correcção da dispersão longitudinal (η, factor de correcção Hung). O efeito de dispersão no transporte dos radionuclídeos, inicialmente desprezado no modelo, é compensado subsequentemente pelo factor de correcção dos efeitos radiológicos resultantes da exposição humana. Este factor baseia-se no número de Peclet, um parâmetro adimensional que expressa a importância relativa da difusão e do transporte convectivo, e no "número de transporte" determinado através dos parâmetros do sistema de transporte subterrâneo.

A adopção do modelo de Hung (2000) para a descrição do transporte subterrâneo dos radionuclídeos implica que também adoptemos os pressupostos em que se baseia o modelo:

- Para simplificação matemática assume-se, inicialmente, que o fluido que transporta os radionuclídeos é estacionário e uniforme: o transporte dos contaminantes ocorre apenas a uma dimensão, o que geralmente implica que a dispersão seja ignorada, e assume-se que a contaminação migra unicamente devido à advecção¹. Ao considerar apenas este movimento no transporte dos contaminantes, obtém-se uma aproximação bastante conservativa, uma vez que a dispersão tende a espalhar os contaminantes numa área mais extensa do que só pela consideração da advecção, o que implica uma previsão subestimada da extensão da contaminação.
- Assume-se ainda que os radionuclídeos dissolvidos estão em equilíbrio com aqueles adsorvidos pelo solo na formação do aquífero e que o decaimento ocorre simultaneamente para os radionuclídeos dissolvidos e absorvidos.
- A solução analítica de Hung, além do factor de correcção (η), depende de constantes determinadas pelas características do sistema subterrâneo.

¹ Processo através do qual os solutos são transportados pelo movimento da massa de água. A quantidade transportada é função da sua concentração na água subterrânea e do débito do fluxo desta.

- Para a avaliação dos efeitos radiológicos, a entrada necessária para o modelo de transporte é a quantidade de radionuclídeos que atinge o poço durante um determinado período de tempo.
- Introduz-se um factor de correcção para compensar o erro resultante de se desprezar inicialmente a dispersão no transporte subterrâneo dos radionuclídeos. Como o objectivo do modelo original é a avaliação dos efeitos radiológicos (cálculo de doses de entrada e avaliação de risco) resultante da exposição aos radionuclídeos por esta via, a correcção deste erro será expressa sob a forma dum factor de correcção destes efeitos a longo prazo (η) e é sempre um valor superior à unidade (Hung, 1980) (ver anexo B).

Como saídas do modelo obtém-se uma previsão dos valores da concentração dos radionuclídeos na água subterrânea e na água superficial (poços e ribeiros, respectivamente). A partir destes valores, estima-se a concentração dos radionuclídeos na água de ingestão e na água de rega, e subsequentemente nos alimentos o que vai permitir uma estimativa dos débitos de entrada no organismo e os valores das doses de radioactividade a que os receptores estão expostos.

4.4.2 O modelo matemático

O modelo de transporte hidrológico envolve um mecanismo de libertação dos contaminantes do resíduo, seguindo-se um mecanismo de transporte que pode ocorrer através da infiltração da água contaminada ou da escorrência superficial da mesma. O modelo pode ser dividido em dois módulos de acordo com a trajectória de transporte em que ocorre a dispersão dos contaminantes. Pretende-se no final obter como saída do modelo a concentração anual de cada radionuclídeo (RDN) na água subterrânea e na água superficial que constituem os dados de entrada necessários para calcular a transferência e a concentração dos RDN na cadeia alimentar.

4.4.2.1 Lixiviação e infiltração

A água da precipitação que entra na região contaminada pode evaporar-se para a atmosfera, infiltrar-se no solo ou escorrer para as linhas de água. Da totalidade líquida, uma fracção da precipitação vai infiltrar-se na barragem de estéreis, lixiviar os RDN da zona contaminada que serão transportados para o aquífero e, eventualmente, atingir um poço. Do balanço hidrológico já descrito anteriormente podemos enunciar:

$$P_r + IR_r = I_r + R_r + ET_r$$
(4-9)

$$I_r = (P_r + IR_r) - (R_r + ET_r)$$
 (4-10)

em que,

 P_r : precipitação anual, (L.m⁻².ano⁻¹)

IR_r: débito de irrigação anual, (L.m⁻².ano⁻¹)

I_r: débito de infiltração anual, (L.m⁻².ano⁻¹)

R_r: débito de escorrência anual, (L.m⁻².ano⁻¹)

ET_r: débito de evaporação anual, (L.m⁻².ano⁻¹).

O modelo tem em consideração a possibilidade da degradação da cobertura e consequentemente a infiltração do fluxo da água da precipitação através da camada de cobertura. Devido aos diferentes mecanismos de infiltração através da parte danificada e da parte intacta da cobertura, a infiltração anual através da mesma pode ser dividida em duas componentes:

$$W_{inf} = A \cdot [f_c \cdot W_s + (1 - f_c) \cdot W_a]$$
(4-11)

em que,

W_{inf}: quantidade de água que se infiltra na barragem de estéreis, (L.ano⁻¹)

A: área da barragem de estéreis, (m²)

f_c: fracção da cobertura que está danificada, (-)

W_{ss}: infiltração anual através da zona danificada da cobertura, (L.m⁻².ano⁻¹)

W_a: infiltração anual através da zona intacta da cobertura, (L.m⁻².ano⁻¹).

 $W_{ss} = (P_r + IR_r) \cdot f_d$ (4-12)

$$W_{a} = (P_{r} + IR_{r}) \cdot f_{i}$$
(4-13)

$$f_i = \frac{I_r}{P_r}$$
(4-14)

f_i: facção da água que se infiltra através da zona intacta da cobertura, (-)

f_d: fracção da água que se infiltra através da zona danificada da cobertura, (-).

Se a cobertura ou a superfície se mantiver intacta, a infiltração ocorre teoricamente de igual forma em toda a extensão da zona contaminada. Como não vai ocorrer irrigação na barragem de estéreis, o débito de irrigação pode ser desprezável. Neste caso, considera-se que uma fracção da água da precipitação perde-se nas

escorrências, parte infiltra-se no solo (por percolação), através da cobertura não danificada, e parte evapora-se (podendo considerar ou não o efeito da transpiração das plantas). Isto traduz-se na simplificação da expressão (4-11):

$$W_{inf} = f_i \cdot P_r \cdot A \tag{4-15}$$

A água que se infiltra vai ser contaminada depois de algum tempo de contacto com o resíduo. A concentração de RDN na água contaminada pode ser estimada por duas abordagens distintas baseadas na lixiviação química com ou sem limite de solubilidade, que descrevem a mobilização dos RDN contidos no resíduo. Estas duas opções constituem um modelo dinâmico que estima a concentração dos RDN na água, com origem num processo de troca química. O modelo geral baseia-se num conceito de lixiviação multifásica cujo transporte do contaminante pode ocorrer segundo três formas diferentes:

- i) como um soluto dissolvido na água;
- ii) como um gás na fase gasosa do solo;
- iii) como um composto adsorvido na fase sólida.

O equilíbrio entre as fases ocorre de acordo com os respectivos coeficientes de partilha, K_d. O transporte na vertical (na zona vadosa do solo) dá-se por advecção da fase líquida e por difusão da fase gasosa.

O transporte advectivo da fase líquida é calculado em função da quantidade de água que se infiltra e da quantidade de água existente no solo.



Figura 4-2: Trajectórias do contaminante na zona vadosa do solo.

A dispersão do transporte da fase líquida é desprezável, o que implica maiores concentrações dissolvidas e previsão de menores tempos de transporte do contaminante do que ocorreria na realidade. Neste transporte considera-se que a zona

vadosa encontra-se em estado estacionário relativamente ao movimento da água, o que significa que o teor em humidade é constante, e ainda que o contaminante não sofre decaimento nem degradação durante o transporte nesta zona.

A concentração do contaminante na fase gasosa (C_g), na fase líquida (C_l) e na fase sólida (C_s) vai variar espacial e temporalmente. A sua representação matemática pode assumir a seguinte forma com **z** a representar a variável no espaço e **t** a variável temporal:

$$\circ \quad C_g(z,t);$$

 $\circ \quad C_{s}\left(z,t\right).$

A massa inicial de contaminante que vai sofrer o transporte encontra-se na fase líquida resultante da lixiviação pela água de infiltração:

$$C_{l}(z,0) = M(z,0)\frac{\rho_{b}}{\theta}$$
 (4-16)

em que C_I(z,t) é a concentração inicial (t = 0) do contaminante na fase líquida (g/ml), M(z,0) é a massa inicial do contaminante por unidade de massa de solo no ponto z, (g/g de solo), θ é a fracção volumétrica de água no solo e ρ_b a densidade seca do solo (g/ml).

A concentração na fase líquida é obtida pela resolução da seguinte equação que contempla a advecção:

$$\frac{\partial C_{I}}{\partial t} = -\frac{q}{\theta} \frac{\partial C_{I}}{\partial z}$$
(4-17)

em que q é a velocidade de infiltração de Darcy.

A concentração do contaminante na fase gasosa é determinada pela seguinte equação de difusão:

$$\frac{\partial C_g}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C_g}{\partial z^2}$$
(4-18)

em que D é o coeficiente de difusão efectivo na fase gasosa. Esta equação pode ser resolvida com as condições fronteiras iniciais apropriadas.

Após a avaliação de $C_l(z,t)$ e $C_g(z,t)$, a concentração de equilíbrio do contaminante nas três fases pode ser determinada se for possível calcular primeiro a massa total de contaminante no solo, M_T :

$$\mathbf{M}_{\mathsf{T}}(\mathbf{z}, \mathbf{t}) = \left[\boldsymbol{\theta} \cdot \mathbf{C}_{\mathsf{I}} + \left(\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathsf{s}} - \boldsymbol{\theta} \right) \cdot \mathbf{C}_{\mathsf{g}} + \boldsymbol{\rho}_{\mathsf{b}} \cdot \mathbf{C}_{\mathsf{s}} \right]$$
(4-19)

em que ϵ_s é a porosidade do solo.

A concentração individual de cada uma das fases pode ser avaliada por cada uma das seguintes expressões:

$$C_{g}(z,t) = \frac{K_{H} \cdot M_{T}(z,t)}{\left[\theta + (\varepsilon_{s} - \theta) \cdot K_{H} + K_{d} \cdot \rho_{b}\right]}$$
(4-20)

$$C_{I}(z,t) = \frac{M_{T}(z,t)}{\left[\theta + (\varepsilon_{s} - \theta) \cdot K_{H} + K_{d} \cdot \rho_{b}\right]}$$
(4-21)

$$C_{s}(z,t) = \frac{K_{d} \cdot M_{T}(z,t)}{\left[\theta + (\varepsilon_{s} - \theta) \cdot K_{H} + K_{d} \cdot \rho_{b}\right]}$$
(4-22)

em que K_H é a constante de Henry na forma adimensional.

As equações diferenciais (4-17) e (4-18) podem ser resolvidas pelo método numérico de diferenças finitas com a sua complexidade inerente.

Em solos contaminados com radionuclídeos, estes podem formar diversos compostos ou podem ser associados a diferentes espécies geoquímicas, resultando assim em diferenças na lixiviabilidade e na solubilidade. Quando em contacto com as espécies químicas da solução, estas podem ser desadsorvidas na solução por dissolução ou complexação. No primeiro estágio do processo de lixiviação, as espécies geoquímicas com elevada solubilidade são primeiramente libertadas para a solução por dissolução. À medida que a lixiviação prossegue, as espécies geoquímicas com baixa solubilidade começam a dissolver-se. O conhecimento da distribuição dos RDN entre as diferentes espécies geoquímicas existentes no solo permite uma estimativa da quantidade de RDN que será libertada para a solução em condições de equilíbrio da dessorção. Contudo, a informação laboratorial acerca das possíveis fases sólidas e das espécies em solução dos RDN geralmente encontra-se indisponível. A pouca informação que existe é muito específica do caso a que se refere e da solução em causa o que torna a extrapolação dos dados extremamente difícil (Yu et al., 2001).

O rádio ocorre nos estéreis em diversas formas químicas, algumas muito móveis, outras estáveis. Poderá ser considerado o produto de decaimento mais perigoso da série do urânio, não só por ter um elevado índice de radiotoxicidade, mas também por originar o radão. A solubilidade dos compostos formados pelo rádio é semelhante à do bário. Os dados termodinâmicos para os componentes do rádio estão disponíveis apenas para RaNO₃, RaCl₂, RaSO₄. Todos os compostos, à excepção do sulfato de rádio, são muito solúveis. O produto de solubilidade (K_p) para este composto é 4,25 x 10⁻¹¹, a 25°C e 1 atm. Apesar de o sulfato de rádio ser um composto altamente insolúvel, apresenta uma solubilidade máxima na água de cerca de 0,02 ppm (Yu et al., 2001).

Devido à dificuldade em modelar segundo o conceito de lixiviação multifásica, adoptou-se um modelo simplificado e conservativo, assumindo um modelo ideal de lixiviação, estacionário e uniforme com base num processo de transferência, para estimar a concentração dos RDN na fase líquida. Apenas se considera o transporte da actividade total inicial dos RDN mobilizados para a fase líquida, que representa a principal trajectória da migração para água subterrânea. Um factor de correcção é introduzido para quantificar o efeito da lixiviação multifásica nas condições reais (Hung, 2000). A opção de lixiviação química sem limite de solubilidade é calculada por (Hung, 1996):

$$C_{inf} = \frac{I_t \cdot F_c}{A \cdot (D_t \cdot \varepsilon_t + x_t \cdot K_{d2} \cdot \rho_t)}$$
(4-23)

em que,

C_{inf}: concentração do RDN que se infiltra, (Bq.m⁻³)

- It: actividade na barragem na fracção líquida, (Bq)
- F_c: factor de correcção para se ter em conta a lixiviação multi-fásica nas condições do campo, (-)
- x_t: altura da barragem (ou da zona contaminada), (m)
- εt: porosidade (da zona contaminada), definida como a fracção do volume dos poros ocupados pela água (-)
- K_{d2}: coeficiente de distribuição para o RDN dentro do resíduo, (cm³.g⁻¹)
- ρ_t : densidade do material da zona contaminada, (g.cm⁻³).

A opção de lixiviação química com limite de solubilidade utiliza um factor de solubilidade para estimar a concentração máxima dos RDN no lixiviado. Esta opção

pode ser usada quando a solubilidade dos RDN é baixa ou quando não existem valores de K_d disponíveis. A concentração de RDN é calculada por (Hung, 1996):

$$C_{inf} = Min\left[\frac{S_{e} \cdot N_{c} \cdot N_{v}}{M}; \frac{I_{t} \cdot F_{c}}{A \cdot x_{t} \cdot (\varepsilon_{t} + K_{d2} \cdot \rho_{t})}\right]$$
(4-24)

Se: solubilidade do elemento, (g/ml)

M: massa molecular do RDN, (g/mol)

N_c: razão, (Bq/mol)

 N_v : conversão de unidades (ml / m³ = 1).

A quantidade de RDN que se liberta anualmente (Bq/ano) através da lixiviação e infiltração pode ser estimada por:

$$Q_0 = 0,001 \cdot W_{inf} C_{inf}$$
 (4-25)

Q₀: libertação anual de RDN através da lixiviação pela água da precipitação, (Bq/ano)

0,001: factor de conversão de unidades de L para m^3 (1 L = 0,001 m^3).

Poderá existir uma outra opção de lixiviação que permite como entrada no modelo a libertação média fraccionada anual dos RDN, mas também pode ser calculada pelo modelo, obtendo-se a libertação primária dos RDN do resíduo através de um débito de libertação constante. Para contemplar os efeitos hidrodinâmicos, os RDN libertados são posteriormente adsorvidos pelo resíduo, de acordo com a expressão (4-23). Nesta opção, a concentração de RDN na água de infiltração contaminada pela lixiviação do resíduo é estimada por:

$$C_{inf} = \frac{Q_{un} \cdot L_i + Q_{iv}}{W_v}$$
(4-26)

- Qun: actividade total não lixiviada, (Bq)
- L_i: fracção de lixiviação anual do RDN i, (ano⁻¹)
- Q_{Iv}: actividade lixiviada no ano anterior no resíduo já existente, (Bq/ano)
- W_v: volume total de água na zona contaminada no corrente ano, (m³).

O parâmetro L_i representa uma constante de lixiviação de 1.ª ordem específica para cada RDN e é definida como a fracção disponível de cada RDN lixiviado por unidade de tempo. O seu cálculo pode ser descrito segundo a expressão (4-27) multiplicando I_r expresso em L.m⁻².ano⁻¹ por 0,001 m³ para que L_i venha expresso em ano⁻¹ (Yu et al., 2001):

$$L_{i} = \frac{0.001 \cdot I_{r}}{\theta_{t} \cdot \mathbf{x}_{t} \cdot \mathbf{R}_{v}}$$
(4-27)

- I_r: velocidade de infiltração da água, (m/ano)
- θ_t : fracção volumétrica de água na zona contaminada, (-)
- R_V: factor de retardação na vertical para o nuclídeo i, (-).

Segundo o modelo conceptual, os RDN lixiviados são transportados na vertical para o aquífero e horizontalmente ao longo deste. A velocidade de transporte dos RDN é retardada quer na vertical (devido à sorção parcial dos RDN pelo solo) quer na horizontal (relativamente à velocidade da água do aquífero) sendo quantificada pelos factores de retardação vertical (R_V) e horizontal (R_H) (Hung, 1996). Assim, devido à diferente natureza do transporte na vertical e na horizontal, o modelo subdivide o transporte em duas trajectórias segundo a direcção associada.

4.4.2.2 Transporte dos radionuclídeos na vertical

O fluxo subterrâneo na vertical pode ser saturado ou parcialmente saturado e o grau de saturação (R_s) é usado para calcular quer a velocidade da água (ou lixiviado) na vertical (V_v) quer o factor de retardação vertical (R_v) (Hung, 1996). Para calcular o grau de saturação é necessário definir outros parâmetros que a seguir descrevemos.

A fracção volumétrica de água no solo pode ser representada pelo quociente adimensional de duas massas (w) ou de dois volumes (θ), ou ainda pelo quociente de massa por unidade de volume. O 1.º caso é definido pelo quociente entre a massa da fase líquida (água) (M_i) existente no solo e a massa de material sólido (M_s) e pode ser representado por:

$$w = \frac{M_1}{M_s}$$
(4-28)

O 2.º caso representa a fracção do volume total de solo ocupado pela água do solo. Se V_I for o volume da fase líquida e V_t o volume total do solo, a fracção volumétrica de água (θ) pode ser representada por:

$$\theta = \frac{V_{l}}{V_{t}} = \frac{V_{l}}{V_{s} + V_{p}}$$
(4-29)

em que V_s e V_p representam o volume da fase sólida e o volume dos poros, respectivamente.

Página 158

O parâmetro θ pode ainda ser representado em função da fracção mássica da porosidade do solo preenchida com água:

$$\theta = \frac{V_{I}}{V_{t}} = \frac{M_{I} / \rho_{w}}{M_{s} / \rho_{b}} = \frac{M_{I}}{M_{s}} = w \left(\frac{\rho_{b}}{\rho_{w}}\right)$$
(4-30)

em que ρ_{b} é a densidade (seca) do solo e ρ_{w} a densidade da água .

A fracção volumétrica de água pode ainda ser representada em função da porosidade total (ϵ) e da saturação em água (ou grau de saturação, R_s). Assim, podemos dizer que θ resulta do produto entre a fracção volumétrica de água em condições saturadas (θ_{sat}) e o grau de saturação (R_s). Quando o material constituinte do solo está saturado ($\theta_{sat} = \epsilon$) e nestas condições podemos escrever:

$$\theta_{sat} = \varepsilon$$
(4-31)

$$\theta = \varepsilon \cdot \mathsf{R}_{s} \tag{4-32}$$

O coeficiente de saturação é definido como o quociente entre θ e θ_{sat} , ou seja:

$$\mathsf{R}_{\mathsf{s}} = \frac{\theta}{\theta_{\mathsf{sat}}} = \frac{\theta}{\varepsilon}$$
(4-33)

O valor de θ pode variar de 0 (no caso de solos secos) até ao valor da porosidade total (para solos completamente saturados). Quando o meio se encontra saturado, $R_s = 1$. Em condições de infiltração não saturadas, o coeficiente de saturação é uma função do débito de infiltração, da condutividade hidráulica e da textura do solo. O coeficiente de saturação pode ser estimado através da expressão (4-34) (Clapp et al., 1978):

$$R_{s} = \left(\frac{I_{r}}{K_{sat}}\right)^{\frac{1}{2b+3}}$$
(4-34)

em que,

R_s: coeficiente de saturação, (-)

K_{sat}: condutividade hidráulica em condições saturadas, (m/ano)

b: parâmetro exponencial específico do solo, (-).

Se I_r for expresso em L.m⁻².ano⁻¹ é necessário multiplicar I_r por 0,001 m³/L para converter as unidades a m/ano.

O parâmetro exponencial específico do solo (b) usado no cálculo do grau de saturação do solo (R_s) deriva de uma função característica do solo, denominada função de condutividade, que representa a relação entre a condutividade hidráulica insaturada (K) e o grau de saturação (R_s). A função condutividade pode ser representada por uma função potência (Clapp et al., 1978):

$$k = R_s^{(2:b+3)}$$
 (4-35)

em que k é a condutividade relativa ou permeabilidade relativa (adimensional) e b o parâmetro de ajuste ou o parâmetro exponencial específico do solo, que deverá ser determinado experimentalmente. A permeabilidade relativa (k) da zona insaturada, é definida como o quociente entre a condutividade hidráulica insaturada (K) e a condutividade hidráulica saturada (K_{sat}):

$$k = \frac{K}{K_{sat}}$$
(4-36)

Substituindo esta igualdade na expressão (4-35), resulta:

$$R_{s}^{(2:b+3)} = \frac{K}{K_{sat}}$$
 (4-37)

Na infiltração de água na camada superior de solo, o débito de infiltração (I_r) pode ser aproximado à condutividade hidráulica insaturada (K) e substituindo I_r por K na expressão anterior, obtemos a expressão (4-34):

$$R_{s} = \left(\frac{I_{r}}{K_{sat}}\right)^{\frac{1}{2b+3}}$$
(4-38)

Quando o meio está completamente saturado $I_r = K_{sat} e R_s = 1$.

Os valores representativos de K_{sat} e b encontram-se documentados na bibliografia para várias texturas do solo (Yu et al., 2001). Deve-se, no entanto, usar valores específicos do local em estudo, sempre que possível.

O factor de retardação na vertical para o nuclídeo i (R_v) é o quociente entre a velocidade média da água nos poros e a velocidade de transporte do RDN. Com base no pressuposto de que o processo adsorção – desadsorção pode ser representado por uma isotérmica linear (isotérmica linear de Freudlich), o factor de retardação na vertical (R_v) pode ser calculado pela seguinte expressão (4-39) (Yu et al., 2001):

$$R_{v} = 1 + \frac{\rho_{s} \cdot K_{d}}{\theta} = 1 + \frac{\rho_{f} \cdot K_{d3}}{\varepsilon_{f} \cdot R_{s}}$$
(4-39)

R_s: coeficiente de saturação, (-)

 $\rho_{\rm f}$: densidade (seca) da formação encaixante (ou zona insaturada), (g/cm³)

K_{d3}: coeficiente de partilha para o nuclídeo i na formação encaixante, (cm³/g)

 ϵ_{f} : porosidade da formação encaixante, (-).

O coeficiente de partilha (K_d) é o quociente entre a concentração no equilíbrio do radionuclídeo adsorvido (no solo ou no material constituinte da formação encaixante) e a concentração do radionuclídeo desadsorvido (na água).

A velocidade de exfiltração² é, normalmente, a média ponderada entre as velocidades de infiltração entre a zona intacta da barragem e as zonas onde houve desabamentos, e portanto, a água que se infiltrou sem filtração ou com filtração parcial. Dado o sistema de fixação de solo da barragem vulgarmente utilizado em Portugal, recorrer a vegetação colocada na sua área exterior, admitimos que não existem derrocadas e que a velocidade de exfiltração coincide com a velocidade de infiltração (V_{exf} = V_{inf}). Deste modo, a velocidade na vertical (V_v, m/ano) pode ser calculada por:

$$V_{v} = \frac{V_{exf}}{R_{s} \cdot \varepsilon_{f}}$$
(4-40)

em que V_{exf} é dado por:

$$V_{exf} = 0.001 \cdot P_r \cdot f_i$$
(4-41)

A libertação dos RDN da fonte de contaminação (Bq/ano) através da lixiviação e que vão ser adicionados ao fluxo de água subterrânea pode ser calculada pela expressão:

$$\mathbf{R}_{i} = \mathbf{L}_{i} \cdot \boldsymbol{\rho}_{t} \cdot \mathbf{A} \cdot \mathbf{x}_{t} \cdot \mathbf{S}_{i}$$
(4-42)

R_i: débito de libertação do radionuclídeo i, (Bq/ano)

L_i: débito de lixiviação do radionuclídeo i, (ano⁻¹)

ρ_t: densidade (seca) do material da zona contaminada, (kg/m³ ou g/cm³)

A: área da zona contaminada, (m^2)

² Neologismo, que tomamos a liberdade de traduzir do termo inglês *exfiltration*.

- x_t: espessura da zona contaminada, (m)
- S_i: concentração média do radionuclídeo principal i na zona contaminada disponível para lixiviação no tempo t, (Bq/kg).

4.4.2.3 Transporte dos radionuclídeos na horizontal

A difusão de substâncias nos aquíferos pode ocorrer segundo dois tipos fundamentais de solutos: conservativos e reactivos. Os solutos conservativos por oposição aos reactivos não reagem com o meio envolvente nem sofrem alterações ao longo do tempo.

A expressão da conservação da massa aplicável a solutos reactivos pode ser enunciada da seguinte forma:

Quantidade massa entra – quantidade massa sai \pm quantidade massa produzida = variação massa armazenada com o tempo

O termo \pm (r/ θ) refere-se a uma fonte ou a um sumidouro, respectivamente, e toma formas diferentes para reacções diferentes. Representando este termo de forma simbólica e para o caso do transporte unidimensional, a equação da conservação escreve-se como:

$$\mathsf{D}\frac{\partial^2 \mathsf{C}}{\partial \mathsf{x}^2} - \mathsf{V}\frac{\partial \mathsf{C}}{\partial \mathsf{x}} \pm \frac{\mathsf{r}}{\theta} = \frac{\partial \mathsf{C}}{\partial \mathsf{t}}$$
(4-43)

θ: porosidade do meio preenchida com água (neste caso, completamente saturado)

C: concentração do soluto, massa por unidade de volume, (M.L⁻³)

D: coeficiente de difusão molecular, área por unidade de tempo, (L².T⁻¹).

em que $\partial C/\partial x$ é o gradiente de concentração expresso em M.L⁻⁴ e *r* representa a massa produzida ou consumida por unidade de volume e por unidade de tempo. Esta equação aplica-se a um único constituinte. No caso de estarem envolvidas várias espécies dissolvidas no transporte é necessário utilizar um sistema de equações.

A componente dispersiva e difusional é representada pelo termo $\partial^2 C/\partial x^2$ e a advecção é representada pelo termo V. $\partial C/\partial x$.

Como as substâncias radioactivas apresentam uma cinética de decaimento de 1.ª ordem, a expressão (4-44) descreve o decaimento radioactivo da substância presente:

$$r = \frac{d(\theta.C)}{dt} = -\lambda.\theta.C$$
(4-44)

 λ : constante de decaimento, (s⁻¹).

A equação de transporte unidimensional para uma reacção de cinética de 1^a ordem e que traduz o transporte advectivo e dispersivo com decaimento é a seguinte:

$$D\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - V\frac{\partial C}{\partial x} - \lambda C = \frac{\partial C}{\partial t}$$
(4-45)

Considere-se apenas o transporte advectivo e dispersivo com retardação. O principal fenómeno de retardação que ocorre no subsolo é a sorção, ou seja, é a aderência dos compostos orgânicos à superfície das partículas constituintes do solo. A cinética das reacções de sorção é extremamente rápida e variável de caso para caso.

A reacção inversa da sorção é denominada por dessorção e pode ocorrer devido a uma diminuição da concentração do soluto ou porque a concentração sorvida é demasiado elevada.

Considere-se um equilíbrio heterogéneo. Neste caso, $r = \partial C^*/\partial t$, sendo C^* a concentração do soluto na fase sólida. A equação de transporte unidimensional que integra esta reacção é:

$$D\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - V\frac{\partial C}{\partial x} - \frac{1}{\theta}\frac{\partial C^*}{\partial t} = \frac{\partial C}{\partial t}$$
(4-46)

Para o caso das reacções de sorção de não - equilíbrio verifica-se que $\partial C^*/\partial t = f(C,C^*)$, ou seja, são reacções nas quais a taxa de sorção é uma função da concentração da massa na solução e da massa sorvida na fase sólida.

Para o caso das reacções de sorção em equilíbrio C^{*} = f(C), isto é, nestas reacções, a concentração da massa sorvida é uma função da massa na solução e o termo $\partial C^*/\partial t$ pode ser substituído por $\partial C/\partial t$.

Esta substituição origina uma equação diferencial contendo uma variável dependente que pode ser resolvida por métodos analíticos.

A equação de transporte para o caso da sorção linear pode ser obtida considerando que a massa sorvida por unidade de volume de meio poroso pode ser expressa por:

$$\frac{\partial C^{*}}{\partial t} = \rho_{s}^{*} \cdot \frac{\partial S_{s}}{\partial t}$$
(4-47)

 $\rho_{s}^{*} = \rho_{s} \cdot (1 - \theta) \tag{4-48}$

S_s: concentração mássica do contaminante na fase sólida, (-)

 ρ_{s}^{*} : densidade dos minerais constituintes das rochas do solo, (kg.m⁻³)

 ρ_s : densidade do solo, (kg.m⁻³).

Considerando, mais uma vez, que a descrição dos processos de sorção linear pode ser representada pela isotérmica linear de Freundlich e diferenciando-a em ordem ao tempo obtém-se:

$$\frac{\partial S_{s}}{\partial t} = K_{d} \cdot \frac{\partial C}{\partial t}$$
(4-49)

Sendo S_s a concentração na fase sólida (massa sorvida por massa de sorvente), C a concentração na fase líquida (concentração na água subterrânea no equilíbrio) e K_d o coeficiente de distribuição. Da combinação das três últimas equações resulta:

$$\frac{\partial \mathbf{C}^{*}}{\partial t} = (1 - \theta) \cdot \rho_{s} \cdot \mathbf{K}_{d} \cdot \frac{\partial \mathbf{C}}{\partial t}$$
(4-50)

Substituindo a expressão (4-50) na equação geral de transporte e rearranjando os termos, obtém-se:

$$D\frac{\partial^{2}C}{\partial x^{2}} - V\frac{\partial C}{\partial x} = \frac{\partial C}{\partial t} \left[1 + \frac{(1-\theta)}{\theta} \cdot \rho_{s} \cdot K_{d} \right]$$
(4-51)

O factor de retardação (R) é o termo entre parêntesis, ou seja,

$$\mathbf{R} = \left[\mathbf{1} + \frac{(\mathbf{1} - \theta)}{\theta} \cdot \boldsymbol{\rho}_{s} \cdot \mathbf{K}_{d} \right]$$
(4-52)

Substituindo R na expressão (4-51) obtém-se:

$$D\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - V\frac{\partial C}{\partial x} = \frac{\partial C}{\partial t}R \text{ ou } \frac{D}{R}\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \frac{V}{R}\frac{\partial C}{\partial x} = \frac{\partial C}{\partial t}$$
(4-53)

Da análise desta última expressão é possível concluir que o factor de retardação apenas faz diminuir a magnitude dos parâmetros de transporte D e V.

Adicionando o termo da reacção de decaimento radioactivo, a expressão geral do transporte subterrâneo toma a forma do transporte advectivo e dispersivo com decaimento e retardação:

$$\frac{D}{R}\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \frac{V}{R}\frac{\partial C}{\partial x} = \frac{\partial C}{\partial t} + \lambda \cdot C \text{ ou } D\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - V\frac{\partial C}{\partial x} = R\frac{\partial C}{\partial t} + \lambda \cdot R \cdot C$$
(4-54)

4.4.2.4 Dedução das equações do modelo de transporte na água subterrânea

Na bibliografia consultada verifica-se que existem mais de uma centena de modelos que descrevem o transporte de contaminantes na água subterrânea. Contudo, muitos dos modelos falham ou perdem a sua aplicação ao considerarem o processo de decaimento radioactivo e/ou a sorção tornando-se desadequados para a avaliação de risco resultante da exposição aos resíduos radioactivos (Hung, 1980).

Os modelos que poderiam ser adequados para a avaliação dos efeitos radiológicos na saúde humana podem ser subdivididos em dois grupos: analíticos e numéricos. Em geral, a aplicação do modelo analítico é limitada pelas condições fronteira específicas. Quando as condições fronteira reais não coincidem com as estipuladas para a solução analítica, é necessário fazer aproximações às condições actuais para que a solução analítica possa ser aplicada. Como resultado, estes modelos podem gerar erros consideráveis devido à aproximação das condições fronteira. Por outro lado, a aplicação do modelo numérico implica muitos cálculos computacionais. A precisão da simulação depende grandemente do ajuste do tempo e dos incrementos espaciais que podem resultar em graves erros se forem ajustados indevidamente. Mesmo nos casos de ajuste bem sucedido, o processo pode ser demasiado demorado, especialmente em simulações temporalmente extensas. Estas considerações comprometem o desenvolvimento de um modelo de transporte subterrâneo analítico e numérico por ser demasiado dispendioso em termos computacionais ou introduzir demasiados erros quando aplicados à avaliação dos efeitos radiológicos. Isto porque o objectivo final do cálculo das concentrações de RDN, através das várias trajectórias de exposição, é a estimativa das doses resultantes para cada receptor.

Desta forma, foi necessário efectuar algumas simplificações na dedução das equações gerais que descrevem o modelo de transporte hidrológico originalmente

descrito por Hung (2000). As simplificações adoptadas podem traduzir-se nos seguintes pressupostos:

- O fluido que transporta os RDN é estacionário, uniforme e unidimensional;
- Os RDN dissolvidos estão em equilíbrio com aqueles adsorvidos pelos sólidos na formação do aquífero;
- O decaimento ocorre simultaneamente para os RDN adsorvidos e dissolvidos.

A equação básica para o modelo de transporte dispersivo e advectivo unidimensional pode ser descrita pela expressão:

$$D\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - V\frac{\partial C}{\partial x} = R\frac{\partial C}{\partial t} + \lambda RC$$
(4-55)

Estabelecendo as seguintes condições fronteira para a sua solução:

- $C(0,t) = C_0$
- C(x,0) = 0
- $C(\infty,t) = finito$

A primeira condição diz-nos que para x = 0 e para qualquer t, a concentração é C_0 , isto é, estamos na presença de uma fonte de contaminação contínua que no instante zero passa a ser alimentado por uma concentração, C_0 , de poluente. A segunda condição refere que para qualquer ponto x no instante t = 0, a concentração é nula, isto é, antes da libertação do contaminante (no início), a concentração na água é nula. A terceira condição refere para um comprimento infinito e para qualquer t, a concentração é finita.

Para adaptar a equação anterior à análise do presente caso, transformou-se a variável dependente da concentração do RDN, C, no débito mássico de transporte de RDN multiplicando as equações anteriores pelo débito de fluxo subterrâneo. A equação geral do transporte subterrâneo e as equações que descrevem as condições fronteira transformam-se em:

$$D\frac{\partial^2 Q}{\partial x^2} - V\frac{\partial Q}{\partial x} = R\frac{\partial Q}{\partial t} + \lambda \cdot R \cdot Q$$
(4-56)

- Q(0, t) = Q₀ para x = 0 quando t > 0
- Q(x, 0) = 0 para todo o x quando t = 0
- $Q(\infty, t) = finito para x = \infty quando t > 0$

Uma vez que a primeira condição fronteira representa uma condição indefinida, a solução analítica para a equação anterior não pode ser obtida. Contudo, a solução pode ser expressa numa forma de convolução representada por:

$$Q(t) = \int_{0}^{t} Q_0(t-\tau)u(\tau)d\tau$$
(4-57)

em que u representa o débito de libertação do radionuclídeo no final do ponto de descarga x, (x = L, comprimento do fluxo), que responde à libertação unitária do RDN para x = 0 e τ = 0. Ou seja, esta função representa a resposta ao impulso unitário de Dirac (perturbação do sistema) que se denomina por resposta impulsional.

A função resposta unitária, estudada por Burkholder (Lester et al., 1975) é dada pela seguinte expressão:

$$u(\tau) = \frac{V}{2 \cdot L} \sqrt{\frac{R \cdot P_{e}}{\pi \cdot \theta_{d}^{3}}} e^{\left[-N_{d} \cdot \theta_{d} - \frac{P_{e} \cdot \theta_{d}}{4 \cdot R} \left(\frac{R}{\theta_{d}} - 1\right)^{2}\right]}$$
(4-58)

em que,

- P_e: número de Peclet (V.L/d), (-)
- θ_d : tempo adimensional (τ .V/L), (-)
- N_d : número de decaimento (λ_d .L/V), (-)
- V: velocidade da água, vertical (V_V) ou horizontal (V_H), (m.ano⁻¹)
- λ_d : constante de decaimento radiológico, (ano⁻¹)
- d: coeficiente de dispersão, (m².ano⁻¹)
- L: distância a percorrer, vertical (D_V) ou horizontal (D_H) , (m).

Ao substituir a expressão anterior na expressão (4-57), obtém-se:

$$Q(t) = \int_{0}^{t} \left(Q_{0}(t-\tau) \frac{V}{2 \cdot L} \sqrt{\frac{R \cdot P_{e}}{\pi \cdot \theta_{d}^{3}}} e^{\left[-N_{d} \cdot \theta_{d} - \frac{P_{e} \cdot \theta_{d}}{4 \cdot R} \left(\frac{R}{\theta_{d}} - 1 \right)^{2} \right]} \right) d\tau$$
(4-59)

Esta equação não pode ser integrada uma vez Q_0 (t - τ) é indefinido. Contudo, se o termo da dispersão ($\partial^2 Q / \partial x^2$) na equação básica do transporte for desprezado, a resposta à função unitária passa a ter a forma:

$$u'(\tau) = e^{\left[-\frac{R \cdot L \cdot \lambda_d}{V}\right]} \delta\left(\tau - \frac{R \cdot L}{V}\right)$$
(4-60)

Desta forma a expressão (4-55) já pode ser integrada o que resulta:

$$Q'(t) = Q_0 \left(t - \frac{R \cdot L}{V} \right) e^{\left[-\frac{\lambda_d \cdot R \cdot L}{V} \right]}$$
(4-61)

em que δ representa a função impulso de Dirac, u e Q são as variáveis da resposta ao sistema no qual o termo da dispersão é desprezado.

Apesar de se ter obtido uma equação mais fácil de resolver, os resultados obtidos a partir da expressão (4-61) apresentam um erro inerente resultante do facto de se desprezar o termo da dispersão na equação básica do transporte: em presença da dispersão, a contaminação vai cobrir uma região muito mais vasta do que no caso de pura advecção. Este erro deverá ser compensado pela introdução de um factor de correcção. O factor de correcção definido por Hung (2000):

$$\xi\left(\mathsf{P},\frac{\lambda_{d}\cdot\mathsf{R}\cdot\mathsf{L}}{\mathsf{V}},\mathsf{T}\right) = \frac{\mathsf{Q}(\mathsf{t})}{\mathsf{Q}'(\mathsf{t})}$$
(4-62)

Substituindo Q'(t) na expressão (4-61), o débito do transporte de radionuclídeos pode ser dado por:

$$\mathbf{Q}(t) = \boldsymbol{\xi} \cdot \mathbf{Q}_{0} \left(t - \frac{\mathbf{R} \cdot \mathbf{L}}{\mathbf{V}} \right) \mathbf{e}^{\left[-\frac{\lambda_{d} \cdot \mathbf{R} \cdot \mathbf{L}}{\mathbf{V}} \right]}$$
(4-63)

O factor de correcção ξ é uma função de t, P e λ_d .R.L/V que se revela demasiado complexo para permitir a sua aplicação. Este factor é assim transformado num outro factor, temporalmente independente que permite a sua aplicação face ao objectivo de avaliação de risco³. A transformação encontra-se deduzida no anexo B (Hung, 2000).

³ Transcrevemos aqui a abordagem descrita em "User's Guide for Presto-EPA-CGP-POP Operation System – Version 4.2".

O factor de correcção dos efeitos da exposição radiológica a longo prazo pode ser definido como sendo a razão entre os efeitos radiológicos verificados considerando a dispersão e os efeitos verificados desprezando a dispersão (Hung, 2000):

$$\eta = \frac{H_t}{H'_t}$$
(4-64)

em que,

H_t: exposição considerando a dispersão no transporte subterrâneo (-)

H'_t: exposição sem considerar a dispersão no transporte subterrâneo (-).

Partindo do pressuposto que existe uma relação linear entre a quantidade cumulativa de RDN que atinge o poço e os efeitos radiológicos totais esperados, podemos agrupar todos os termos que afectam os factores de conversão dos efeitos na radiológicos num só, F_h, e a equação anterior pode ser escrita da seguinte forma:

$$\eta = \frac{F_{h} \int_{0}^{\infty} Q(t) dt}{F_{h} \int_{0}^{\infty} Q'(t) dt}$$
(4-65)

em que (F_h) é definido pelo factor de conversão dos efeitos radiológicos na saúde humana resultante da libertação cumulativa de RDN.

Substituindo a expressão (4-57) na expressão (4-65) vem,

$$\eta = \frac{\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{t} Q_0(t-\tau)u(\tau)d\tau dt}{\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{t} Q_0(t-\tau)u'(\tau)d\tau dt}$$
(4-66)

A ordem de integração do integral duplo pode ser invertida no numerador e no denominador:

$$\eta = \frac{\int_{0}^{\infty} \int_{\tau}^{t} Q_{0}(t-\tau)u(\tau)dt d\tau}{\int_{0}^{\infty} \int_{\tau}^{t} Q_{0}(t-\tau)u'(\tau)dt d\tau}$$
(4-67)

Fazendo uma substituição da variável independente, t, tal que σ = t - τ , a equação anterior pode ser escrita da seguinte forma:

$$\eta = \frac{\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{\infty} Q_0(\sigma)u(\tau)d\sigma d\tau}{\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{\infty} Q_0(\sigma)u'(\tau)d\sigma d\tau}$$
(4-68)

Uma vez que Q_0 é independente de $\underline{\tau}$ e que <u>u</u> e <u>u'</u> são independentes de σ , o integral duplo, (tanto no numerador como no denominador), pode ser separado no produto de dois integrais simples, o que resulta em:

$$\eta = \frac{\int_{0}^{\infty} Q_{0}(\sigma) d\sigma \int_{0}^{\infty} u(\tau) d\tau}{\int_{0}^{\infty} Q_{0}(\sigma) d\sigma \int_{0}^{\infty} u'(\tau) d\tau}$$
(4-69)

que pode ser simplificado em,

$$\eta = \frac{\int_{0}^{\infty} u(\tau) d\tau}{\int_{0}^{\infty} u'(\tau) d\tau}$$
(4-70)

O factor de correcção para os efeitos radiológicos (η) é independente de variável (t).

A quantidade de RDN transportados no fluxo subterrâneo pode ser expresso por Q_p (Q = Q_p):

$$Q_{p}(t) = \eta \cdot Q_{0}\left(t - \frac{R \cdot L}{V}\right) e^{\left[-\frac{\lambda_{d} \cdot R \cdot L}{V}\right]}$$
(4-71)

Esta equação vai ser a base para a simulação da migração dos RDN na horizontal (ao longo do aquífero) desde o ponto de infiltração até ao poço.

O factor de correcção dos efeitos radiológicos pode ser quantificado com algumas simplificações: se substituir as expressões (4-58) e (4-60) na expressão (4-70) e completar a integração do denominador, obtemos a expressão (4-72).

$$\eta = \frac{\int_{0}^{\infty} \frac{1}{2} \sqrt{\frac{R \cdot P_{e}}{\pi \cdot \theta_{d}^{-3}}} e^{\left[-N_{d} \cdot \theta_{d} - \frac{P_{e} \cdot \theta_{d}}{4 \cdot R} \left(\frac{R}{\theta_{d}} - 1\right)^{2}\right]} d\theta_{d}}{e^{\left[-\frac{\lambda_{d} \cdot R \cdot L}{V}\right]}}$$
(4-72)

Integrando o numerador da expressão (4-72), resulta em,

$$\eta = \frac{e^{\left[\frac{P_{e}}{2} - \frac{P_{e}}{2}\sqrt{1 + \frac{4 \cdot \lambda_{d}R_{H} \cdot L}{P_{e} \cdot V}}\right]}}{e^{\left[-\frac{\lambda_{d} \cdot R_{H} \cdot L}{V}\right]}}$$
(4-73)

$$\mathsf{P}_{\mathsf{e}} = \frac{\mathsf{V} \cdot \mathsf{L}}{\mathsf{d}} \tag{4-74}$$

em que,

Q_p: débito de RDN transportados até ao poço, (Bq/ano)

- Q_o: actividade libertada no fundo, (Bq/ano)
- η: factor de correcção de Hung, (-)
- t: tempo da simulação, (anos)
- V: velocidade da água, vertical (V_V) ou horizontal ou (V_H) , (m. ano⁻¹)
- P_e: número de Peclet, (-)
- λ_d : constante de decaimento radiológico, (ano⁻¹)

- R_H: factor de retardação na horizontal, (-)
- L: distância a percorrer, vertical (D_V) ou horizontal (D_H), (m)
- θ_d : tempo (τ .V/L) (-).

A equação indica que o factor de correcção para os efeitos radiológicos é uma função do número de Peclet (P_e), que representa a relação da intensidade entre as forças advectivas e as forças dispersivas, e do parâmetro λ_d .R.L/V. Este parâmetro representa o quociente entre λ_d e a constante de transporte definida por V/R.L e foi designado como o "número de transporte" neste modelo. O coeficiente de dispersão é calculado pela seguinte expressão:

$$\mathbf{d} = \boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{V} + \mathbf{D}' \tag{4-75}$$

em que,

$$D' = D_{w} \frac{\theta^{(10/3)}}{\epsilon_{a}^{2}}$$
(4-76)

D: coeficiente de dispersão, (m².ano⁻¹)

 α_L : dispersão longitudinal, (m)

D_w: coeficiente de difusão na água (coeficiente de difusão molecular), (m².ano⁻¹)

 θ : fracção volumétrica em água, (-).

 ϵ_a : porosidade do aquífero, (-).

O factor de retardação horizontal R_H é calculado por (Hung, 1996):

$$R_{\rm H} = 1 + \frac{\rho_{\rm f} \cdot k_{\rm a}}{\varepsilon_{\rm a}}$$
(4-77)

Ka: coeficiente de distribuição do aquífero, (ml/g)

O tempo necessário para os RDN serem transportados no aquífero desde o local da infiltração até ao poço, é representado pela soma dos tempos transientes horizontal e vertical. Assume-se que a dispersão do RDN no transporte é desprezável.

Os tempos transientes horizontal e vertical, t_h e t_v , são calculados de acordo com (Hung, 1996):

$$t_{v} = \frac{D_{v} \cdot R_{v}}{V_{v}}$$
(4-78)

$$t_{h} = \frac{L \cdot R_{H}}{V}$$
(4-79)

$$\mathbf{t}_{\mathrm{t}} = \mathbf{t}_{\mathrm{h}} + \mathbf{t}_{\mathrm{v}} \tag{4-80}$$

t_t: tempo de transporte dos RDN até ao poço, (ano)

t_v: tempo transiente na vertical, (ano)

t_h: tempo transiente na horizontal, (ano)

D_v: profundidade a que se encontra o aquífero da zona contaminada, (m).

No modelo conceptual considerou-se a existência de um poço instalado na base do aquífero com uma distribuição uniforme dos RDN ao longo do aquífero. Esta consideração tende a sobrestimar a concentração do RDN presente na água do poço pelo que se considera ser uma abordagem conservativa (Hung, 1996).

Para calcular a concentração de RDN na água do poço (C_{wp} , Bq.m⁻³) é necessário calcular o fluxo de água subterrânea que aflui ao poço. Considerando a dispersão lateral do fluxo, o débito de água contaminada que aflui ao poço e que se encontra disponível para diluição é dado por (Hung, 1996):

$$W_{A} = V \cdot \varepsilon_{a} D_{A} \cdot \left[A^{1/2} + 2 \cdot tg(\alpha_{a}/2) \cdot L \right]$$
(4-81)

W_A: débito total de água que aflui ao poço, (m³/ano)

D_A: espessura do aquífero, (m)

 α_a : ângulo de dispersão da pluma de contaminante na água do aquífero, (rad).

O ângulo de dispersão α_a pode determinado empiricamente, através de medições da condutividade ou de traçadores de radioactividade na água a partir de uma série de furos ao longo da pluma na direcção das águas superficiais, ou pode ser estimado (Hung, 2000).

Por último, a concentração na água que aflui ao poço (C_{wp} , Bq.m⁻³) é calculada pela expressão (4-82):

$$C_{wp} = \frac{Q_p}{W_A}$$
(4-82)

A quantidade de RDN removida anualmente da área contaminada para as profundas camadas do solo (R_i) por infiltração é calculada pelo produto entre o débito de infiltração anual (W_{inf}) e a concentração de RDN na água de infiltração (C_{inf}) (Hung, 1996):

$$\mathbf{R}_{i} = 0,001 \cdot \mathbf{W}_{inf} \cdot \mathbf{C}_{inf} \tag{4-83}$$

R_i: remoção anual de RDN por infiltração, equivalente à expressão (4-25), (Bq/ano).

4.4.2.5 Lixiviação e escorrência

O solo superficial pode apresentar uma componente adsorvida pelo solo com concentração C_{sss} (Bq/kg) e uma componente de água contaminada no solo superficial com uma concentração C_{swi} (Bq/m³). O material adsorvido pelo solo permanecerá no solo constituindo uma fonte para a ressuspensão e para o transporte atmosférico.

Os RDN dissolvidos na água do solo podem ser transportados por escorrência superficial ou por percolação indo neste caso afectar as camadas profundas do solo. A quantidade de RDN adicionada às águas superficiais é calculada pelo produto de C_{swi}, concentração na água do solo, pelo volume total de escorrência anual. A concentração na água intersticial do solo (C_{swi}) pode ser estimada pela expressão (4-84) (Hung, 1996):

$$C_{swi} = \frac{C_{sss} \cdot 1000}{K_{d1}}$$
(4-84)

C_{swi}: concentração dos RDN na água intersticial do solo, (Bq/m³)

C_{sss}: concentração dos RDN no solo superficial, (Bq/kg)

K_{d1}: coeficiente de distribuição no solo superficial, (ml/g).

1000: factor de conversão para K_{d1} (1 ml/g = 1 m³/1000 kg).

Da totalidade de água da precipitação e da irrigação que chega à região contaminada, uma fracção vai ser anualmente adicionada aos ribeiros por escorrência superficial. A quantidade de água que entra nos ribeiros por escorrência da zona contaminada é calculada por (Hung, 1996):

$$W_{rf} = C_r \cdot P_r \cdot A \tag{4-85}$$

W_{rf}: débito água em escorrência anual, (L.ano⁻¹)

C_r: fracção da precipitação em escorrência superficial, (-)

P_r: precipitação anual, (L.m⁻² ano⁻¹).

A remoção anual de RDN por escorrência da superfície para o ribeiro é calculada pelo produto entre $W_{rf} e C_{swi}$, multiplicado por 0,001 m³/L para converter as unidades L a m³.

$$R_{sf} = 0,001 \cdot W_{rf} \cdot C_{swi}$$
(4-86)

R_{sf}: remoção anual de RDN por escorrência superficial, (Bq/ano)

W_{rf}: débito água em escorrência anual, (m³.ano⁻¹).

A concentração de RDN na água de transporte do ribeiro (C_{as} , Bq/m³) obtém-se pelo quociente entre a remoção anual de RDN por escorrência superficial, (R_s , Bq/ano) e o caudal anual dos cursos de água (Q_s , m³.ano⁻¹)

$$C_{as} = \frac{R_{sf}}{Q_s}$$
(4-87)

A descrição do modelo matemático apresentada nesta secção implica uma caracterização do local de estudo em particular e uma definição do cenário para o qual se pretende fazer uma estimativa dos efeitos radiológicos resultantes da exposição.
Na secção seguinte é feita a exploração do modelo com várias simulações para diferentes casos.

No anexo C apresenta-se ainda uma nova abordagem do modelo de libertação e transporte na água para uma libertação contínua e variável no tempo.

4.5 Exploração do modelo de libertação e transporte na água

O modelo de transporte hidrológico é constituído por várias sub-rotinas interligadas para simular a libertação e a dispersão dos contaminantes no meio hídrico dentro de uma área em estudo tendo como saída do modelo a concentração nos pontos finais de exposição. Os vários modelos ou submodelos parcelares incluem primeiro uma definição do cenário de exposição e depois a simulação da infiltração da água da precipitação no solo, a lixiviação dos RDN existentes nos estéreis pela acção da precipitação, o transporte na vertical até chegar ao aquífero e o transporte ao longo deste até atingir os locais de exposição, neste caso representado por um poço. Por último, os submodelos quantificam ainda as escorrências superficiais e o transporte dos RDN através desta trajectória até outro ponto de exposição, os cursos de água, representado neste caso específico por um ribeiro. Esta descrição pode ser agrupada nas seguintes etapas:

- 1. Cálculo do débito de água que se infiltra na zona contaminada, através da cobertura;
- A lixiviação do resíduo pela água da chuva e a concentração de cada RDN no lixiviado;
- Quantidade de RDN que se liberta anualmente para as camadas profundas do solo pelo processo de lixiviação;
- 4. Cálculo do débito de RDN transportados até ao poço;
- 5. Concentração de RDN na água do poço;
- 6. A remoção dos RDN pelas escorrências superficiais;
- 7. A concentração de RDN nos cursos de água (ribeiro) com origem nas escorrências superficiais.

4.5.1 Condições do modelo

A fonte de contaminação é constituída por uma barragem de estéreis resultantes da beneficiação do minério de urânio. A fonte é considerada pontual sem ter em conta a distribuição espacial das actividades na sua área de ocorrência.

Basicamente o modelo pode ser dividido em dois subtransportes: (1) infiltração da precipitação através da cobertura e a lixiviação do estéril, (2) as escorrências superficiais e o transporte dos RDN para os cursos de água.

Consideramos quatro zonas importantes para a simulação do transporte hidrológico: (1) a cobertura; (2) a zona contaminada (barragem de estéreis); (3) a formação encaixante ou zona insaturada (material entre a zona contaminada e o aquífero) e (4) o aquífero.

A exploração do modelo baseia-se nos seguintes pressupostos:

- O material da zona contaminada poderá ser constituído por resíduos com origem no tratamento do minério de urânio com teores diferentes: (1) a partir de um minério com teor de 1 kg/ton lixiviado a 90 % ou (2) a partir de um minério com teor de 0,2 kg/ton lixiviado totalmente, o que vai gerar diferentes concentrações na barragem de estéreis, consoante o caso considerado. Destes dois casos teóricos, a estimativa da actividade de cada RDN no resíduo vai ser um dos parâmetros de entrada para a exploração do modelo.
- O RDN de particular interesse para o transporte hidrológico é o rádio já que quase toda a totalidade do rádio inicial encontra-se nos estéreis. Na exploração do modelo consideramos também o polónio (Po) e o chumbo (Pb) pelo facto de também poderem estar presentes nesta trajectória de exposição com os consequentes elevados riscos radiológicos para os humanos, mesmo a baixas concentrações. O decaimento radioactivo do ²¹⁰Po ocorre com a emissão de partículas α, que quando ingeridas, afectam as células interiores mais intensamente do que muitas outras radiações.
- Um modelo dinâmico simula a transferência da água da precipitação através de um balanço de água, com base na lei da conservação da massa, quantificando a infiltração de água através da cobertura ou do material contaminado.

- A camada de cobertura, nomeadamente o tipo de material e a espessura, é definida previamente no capítulo 3 e as suas características físicas vão fazer parte de alguns dados de entrada no modelo hidrológico.
- Numa primeira abordagem pressupõe-se que a cobertura não está danificada ou que é inexistente. No entanto, é possível contemplar eventuais danos na cobertura pela estimativa da quantidade de água que se infiltra através das potenciais fissuras da cobertura.
- Assume-se que o transporte dos RDN ocorre na vertical até ao aquífero e na horizontal ao longo deste, até atingir um poço, onde os RDN existentes na água subterrânea, poderão ser bombeados para a biosfera, para consumo directo dos humanos, ou descarregados nos ribeiros superficiais, para outra forma de transporte.
- O transporte dos RDN no aquífero é feito com base no modelo de transporte subterrâneo de Hung já descrito, no qual o factor de correcção de Hung é usado para compensar os efeitos da dispersão longitudinal: o factor de correcção dos efeitos radiológicos a longo prazo (η) é introduzido para considerar os efeitos fatais (risco de mortalidade) na saúde e é sempre um valor superior à unidade.
- As escorrências superficiais também vão constituir um processo de transporte dos RDN para as águas superficiais (cursos de água).
- Os RDN que atingem o aquífero vão ser transportados a velocidades menores ou iguais à da velocidade do fluxo da água: esta retardação é devida à interacção dos RDN com o meio sólido do aquífero (efeito de sorção).
- As complexas interacções físicas e químicas entre os RDN e o meio geológico sólido foram agrupadas num só factor, o coeficiente de distribuição, K_d.

4.5.2 Dados de entrada

Para a exploração do modelo de libertação e de transporte na água, à semelhança do que foi feito no modelo de libertação e de dispersão no ar (capítulo 3), tentou-se aproximar sempre que possível, os dados de entrada com o caso particular em estudo: a barragem de estéreis da Mina da Urgeiriça.

O tratamento do minério de urânio na zona da Urgeiriça levou à acumulação de cerca de 4 milhões de toneladas de resíduos sólidos, em escombreiras e bacias de decantação, as quais ocupam uma área de aproximadamente 11 hectares. Os efluentes líquidos do tratamento químico foram durante muitos anos descarregados, após precipitação do rádio e neutralização da acidez com óxido de cálcio, na ribeira da Pantanha, um curto afluente, com 7 km de comprimento, que desagua no rio Mondego (Carvalho et al., 2001).

Em 2001 a mina da Urgeiriça já se encontrava esgotada mas as suas instalações continuavam em laboração para o tratamento de minério proveniente de outras minas da região. A zona mineira da Urgeiriça é circundada por pequenas quintas encontrando-se o aglomerado populacional mais próximo, Canas de Senhorim, a menos de 2 km de distância.

Para a exploração de cada um dos submodelos, adoptaram-se para os parâmetros necessários alguns valores da bibliografia consultada. Adoptaram-se os dados meteorológicos locais (velocidade do vento, precipitação e evaporação) bem como alguns dados radiológicos que caracterizam a fonte, e que se referem à barragem de estéreis da mina da Urgeiriça, após conveniente filtração, ou deduziram-se os seus valores prováveis com base em pressupostos aceitáveis e tendo em conta as características físicas do local.

Posteriormente, com a informação que nos foi disponibilizada em 2005 pela Exmin (2003) particularmente referente à barragem velha da Urgeiriça, foi possível fazer a exploração do modelo com os dados referentes à zona mineira da Urgeiriça.

Os parâmetros necessários à exploração do modelo de libertação e de transporte na água para o caso teórico da concentração de rádio no resíduo resultante do tratamento do minério com teor de 1 kg/ton e 0,2 kg/ton, encontram-se definidos na Tabela 4-1 (Yu et al., 2001), (Exmin, 2003).

Parâmetro	Símbolo	Unidades	Valores
Precipitação	Pr	L.m ⁻² .ano ⁻¹	8,563 x 10 ²
Escorrência	R _r	L.m ⁻² .ano ⁻¹	3,154 x 10 ⁻³
Evapotranspiração	ETr	L.m ⁻² .ano ⁻¹	8.299 x 10 ²
Débito de irrigação	IR,	L.m ⁻² .ano ⁻¹	0
Coeficiente de escorrência	C,	(-)	3.860×10^{-6}
Coeficiente de evapotranspiração	C _o	(-)	0.969
Densidade (seca)			
Cobertura	0.	a.cm ⁻³	1.5
Zona contaminada		g.cm ⁻³	1.5
Zona insaturada	Pt Or	g.cm ⁻³	1,5
Zona saturada (aquífero)		$q \text{ cm}^{-3}$	1,0
Porosidade total	Pa	g.cm	1,0
Cobertura	C	(-)	0.300
Zona contaminada	ε _c	(-)	0,300
Zona insaturada	ε _t	(-)	0,430
Zona nisdurada Zona paturada (aguífara)	E _f	(-)	0,435
Zona saturada (aquilero)	ε _a	(-)	0,390
Fracção volumetrica de água	0		0.405
Zona contaminada (valor calculado)	θ _t	(-)	0,165
Parametro D, específico do solo			1.0
Zona insaturada	D	(-)	4,9
Coeficiente de distribuição		1	
Solo superficial	K _{d1}	ml.g	70 10 100
Residuo (zona contaminada)	K _{d2}	ml.g	70 10 100
Formação encaixante (zona insaturada)	K _{d3}	ml.g	70 10 100
Zona saturada (aquífero)	Ka	ml.g ⁻ '	70 10 100
Extensão da zona contaminada (√A)	L	m	3,317 x 10 ²
Area da zona contaminada	A	m²	1,100 x 10°
Fracção da cobertura danificada	f _c	(-)	0
Espessura da zona contaminada	Xt	m	15
Factor de correcção da lixiviação multifásica	F _c		9,264 x 10 ⁻³
Concentração do RDN i na água de infiltração	C _{inf}	Bq.m⁻³	1,660 x 10 ⁴
Actividade total na barragem: teor 1 e 0,2 kg/ton,	1	Ba	3,123 x 10 ¹⁴
respectivamente	"t	БЧ	8,217 x 10 ¹³
Condutividade hidráulica saturada	K _{sat}	m.ano ⁻	1,090 x 10 [°]
Fracção volumétrica de água em condições saturadas	θ_{sat}	(-)	0,435
Coeficiente de dispersão	d	m ² .ano ⁻¹	270
Distância entre a zona contaminada e o aquífero	D _v	m	6
Velocidade da água subterrânea	V	m.ano ⁻¹	300
Espessura do aquífero	D _A	m	10
Ângulo de dispersão do aquífero	α	rad	0,3
Caudal anual dos cursos de água	Q	m ³ .ano ⁻¹	3,570 x 10 ⁵
Concentração no solo superficial: teor 1 e 0,2		De lue ⁻¹	$1,775 \times 10^3$
kg/ton, respectivamente	U _{SSS}	вд.кд	12,618
Permeabilidade da cobertura	k _c	cm.s ⁻¹	1,000 x 10 ⁻⁸
Fracção de água que se infiltra na zona danificada.	f _d	(-)	0

Tabela 4-1: Dados gerais necessários para a modelagem do transporte hidrológico.

4.5.3 Fases da exploração do modelo de libertação e transporte na água

A exploração do modelo hidrológico foi feita parcelarmente, segundo as subrotinas associadas. A partir dos valores da concentração de RDN estimada para os meios de exposição (água subterrânea e superficial) é possível quantificar a transferência dos RDN dos meios contaminados para os receptores através da ingestão e da irrigação.

4.5.3.1 Infiltração da água da precipitação e lixiviação do estéril

Na estimativa do balanço de água, para calcular a quantidade de água que se infiltra na zona contaminada (W_{inf}) consideramos três casos com diferentes proporções das componentes do ciclo hidrológico e diferentes permeabilidades para a cobertura condicionando assim a quantidade de água que se infiltra. O 3.º caso corresponde às condições meteorológicas da região de Nelas. Em todos os casos considerou-se nula a irrigação do local.

Parâmetros	1.º caso	2.º caso	3.º caso	
k _c (cm/s)	2 x 10 ⁻⁶	1 x 10 ⁻⁴	1 x 10 ⁻⁸	
P _r (L.m ⁻² .ano ⁻¹)	1000	1000	856,3	
ET _r (L.m ⁻² .ano ⁻¹)	59,1 % (P _r) = 591	69,8 % (P _r) = 698	829,9	
$R_r(L.m^{-2}.ano^{-1})$	39,6 % (P _r) = 396	5,0 % (P _r) = 50	3,154 x 10 ⁻³	
IR _r (L.m ⁻² .ano ⁻¹)	0	0	0	
A (m ²)		110 000		
f _c (-)	0			
f _d (-)		0		

Tabela 4-2: Parâmetros necessários ao cálculo de Winf.

A simulação da primeira sub-rotina, lixiviação e infiltração, gera os seguintes resultados: a quantidade de água que se infiltra (W_{inf}); a concentração de RDN na água de infiltração (C_{inf}); a actividade libertada anualmente do fundo da barragem (Q_0) e a velocidade de infiltração (V_{inf}). Na primeira fase da simulação obtém-se como saída o valor de W_{inf} representado na Tabela 4-3.

Resultados	1.º caso	2.º caso	3.º caso
I _r (L.m ⁻² .ano ⁻¹)	13	252	26,40
f _i (-)	0,013	0,252	0,031
C _r (-)	C _r (-) 0,396 0,050		3,860 x 10 ⁻⁶
C _e (-)	0,978	0,735	0,969
W _{ss} (L.m ⁻² .ano ⁻¹)	0	0	0
W_a (L.m ⁻² .ano ⁻¹)	13	252	26,40
W _{inf} (L.m ⁻² .ano ⁻¹)	1,430 x 10 ⁶	2,772 x 10 ⁷	2,904 x 10 ⁶

Tabela 4-3: Resultados do cálculo de W_{inf}.

No processo de extracção e de tratamento de minérios, apenas é recuperado o urânio, ficando a maior parte dos RDN nos estéreis, principalmente o rádio devido à sua elevada insolubilidade, e quando transportado pela água pode originar um elevado risco para os potenciais receptores. No entanto, outros RDN, tais como o polónio (Po) e o chumbo (Pb) também podem ser transportados pela água e constituir uma possível trajectória de exposição através da sua ingestão, razão por que serão objecto particular da simulação no modelo hidrológico.

A estimativa da concentração dos RDN na água que lixivia a zona contaminada depende do RDN a considerar através do parâmetro de entrada K_d (específico para cada RDN).

Parâmetros	F
$\rho_t (g.cm^{-3})$	1,5
F _c (-)	9,264 x 10 ⁻³
x _t (m)	15
ε _t (-)	0,438
K _{d2} ²²⁶ Ra (ml.g ⁻¹)	70
K _{d2} Po (218; 214; 210) (ml.g ⁻¹)	10
K _{d2} ²¹⁰ Pb (ml/g)	100
I _t Total (Bq)	3,123 x 10 ¹⁴

Tabela 4-4: Parâmetros necessários ao cálculo de Cinf.

A actividade total na barragem (I_t) foi calculada através do modelo descrito no capítulo 2 em que se obtém como saída do modelo a actividade na barragem por kg de solo contaminado e sua distribuição por radioisótopo (Bq/kg). A quantidade total de resíduos sólidos depositados na barragem (Q_{st}) poderá ser deduzida pelo produto entre a área da barragem (110 000 m²), a altura da barragem (15 m) e a densidade do

material estéril depositado (1500 kg/m³), o que origina cerca de 2,640 x 10⁹ kg de material contaminado depositado. Multiplicando a quantidade total de resíduos sólidos existentes na barragem ($Q_{st} = 2,640 \times 10^9$ kg), pela actividade na barragem A_{ct} (Bg/kg) obtemos a actividade existente em 2,640 x 10⁹ kg de resíduos sólidos (quantidade total depositada na barragem de estéreis) distribuída por cada radioisótopo e a soma da actividade de todos os radioisótopos vai constituir o valor de I_t (3,123 x 10¹⁴) conforme representado na Tabela 4-5.

\mathbf{Q}_{st}		2,640 x 10 [°] (kg)
Nuclídeo	A _{ct} (Bq/kg)	A _{ct} total (Bq)
²³⁸ U	1,038 x 10 ³	2,739 x 10 ¹²
²³⁴ Th	1,038 x 10 ³	2,739 x 10 ¹²
²³⁴ Pa	1,038 x 10 ³	2,739 x 10 ¹²
²³⁴ U	1,038 x 10 ³	2,739 x 10 ¹²
²³⁰ Th	1,038 x 10 ⁴	2,739 x 10 ¹³
²²⁶ Ra	1,038 x 10 ⁴	2,739 x 10 ¹³
²²² Rn	1,038 x 10 ⁴	2,739 x 10 ¹³
²¹⁸ Po	1,038 x 10 ⁴	2,739 x 10 ¹³
²¹⁴ Pb	1,038 x 10 ⁴	2,739 x 10 ¹³
²¹⁴ Bi	1,038 x 10 ⁴	2,739 x 10 ¹³
²¹⁰ TI	1,038 x 10 ⁴	2,739 x 10 ¹³
²¹⁴ Po	1,038 x 10 ⁴	2,739 x 10 ¹³
²¹⁰ Pb	1,038 x 10 ⁴	2,739 x 10 ¹³
²¹⁰ Bi	1,038 x 10 ⁴	2,739 x 10 ¹³
²¹⁰ Po	1,038 x 10 ⁴	2,739 x 10 ¹³
²⁰⁶ Pb	-	-
Total	1,183 x 10⁵	3,123 x 10 ¹⁴

Tabela 4-5: Actividade em 2,640 x 10⁹ kg de estéreis depositados na barragem resultantes do tratamento do minério de urânio com teor de 1 kg/ton.

Para o rádio, o único caso em que temos valores para a actividade na barragem na fracção líquida (C_{inf}) fez-se uma modelagem inversa para determinar o valor de I_t (actividade total em 2,640 x 10⁹ kg de estéreis). Desta forma, o valor de I_t (Bq), foi determinado a partir de um valor conhecido de C_{inf} para o rádio, com a adaptação da equação (4-23) expressa em função do cálculo de I_t . O valor utilizado para C_{inf} provém de uma série de análises de amostras líquidas efectuadas na zona da barragem de estéreis da Urgeiriça, e que foram cedidas pela Empresa Nacional de Urânio, ENU.

Para deduzir a ordem de grandeza do parâmetro F_c , calculou-se o valor de I_t a partir de C_{inf} , parâmetro que representa a concentração de rádio na fracção líquida da barragem de estéreis e cujo valor de 16 627,8 Bq/m³ consta nas análises cedidas pela ENU. Verifica-se que para os dois valores serem coincidentes ou pelo menos aproximados, isto é, o I_t calculado pelo modelo do capítulo 2 e o I_t calculado pela modelagem inversa, o parâmetro F_c assume um valor de 0,009 (0,9264 %) o que representa a fracção de rádio lixiviado do resíduo pela água da precipitação. O valor obtido para I_t foi de 3,123 x 10¹⁴ Bq.

A magnitude do valor de F_c está de acordo com o pressuposto de que a actividade presente nos estéreis é uma consequência da impossibilidade da lixiviação completa dos RDN no processo hidromineralúrgico, sob condições ideais e tecnicamente optimizadas, sendo pouco provável que ocorra uma lixiviação muito intensa por processos naturais.

Geralmente, cerca de 0,25 a 0,7 % do rádio e cerca de 50 % do tório (²³⁰Th) são dissolvidos no circuito de lixiviação ácida. O ²³⁰Th é praticamente insolúvel no circuito alcalino, mas o rádio pode ser dissolvido entre 1,5 a 3 %. A separação entre os isótopos de urânio, rádio e tório, ocorre posteriormente durante o tratamento das soluções ácidas por permuta iónica e extracção por solventes, obtendo-se menos de 0,1 % da quantidade de rádio inicial e menos de 5 % do tório no concentrado final (IAEA, 1992). Quase toda a totalidade destes RDN permanece nos resíduos sólidos.

Esta aproximação do parâmetro F_c apenas foi feita em função do rádio porque os valores da concentração na fracção líquida necessários para a modelagem inversa só contemplam este RDN. Para os restantes RDN a considerar no meio hidrológico, adoptamos o mesmo F_c deduzido para o rádio, pressupondo a mesma percentagem de lixiviação. Na Tabela 4-6 estão representados os resultados obtidos.

Resultados - (²²⁶ Ra)	1.º caso	2.º caso	3.º caso
C _{inf} (Bq.m ⁻³)	1,663 x 10 ⁴	1,663 x 10 ⁴	1,663 x 10 ⁴
V _{inf} (m.ano ⁻¹)	0,013	0,252	0,026
Q _o (Bq.ano ⁻¹)	2,378 x10 ⁷	4,609 x 10 ⁸	4,828 x 10 ⁷

Tabela 4-6: Resultados do cálculo da sub-rotina de lixiviação.

A actividade libertada no fundo da barragem (Q₀) é constante: não depende do tempo de simulação e equivale a 2,378 x 10^7 (Bq.ano⁻¹) para o 1.º caso; 4,609 x 10^8 (Bq.ano⁻¹) para o 2.º caso e 4,828 x 10^7 (Bq.ano⁻¹) para o 3.º caso. Este parâmetro

também pode ser calculado directamente pela expressão (4-25) sendo os valores obtidos equivalentes.

Uma vez libertados do resíduo os RDN estão disponíveis para o transporte na direcção vertical, assumindo que o fluxo nesta direcção é parcialmente saturado, e quando chegam ao aquífero estão disponíveis para o transporte na direcção horizontal, num meio saturado, com decaimento radioactivo e retardação, até atingir o ponto de exposição, que neste caso específico consideramos ser um poço. Nesta fase do modelo, em que a zona a estudar é a zona insaturada ou a formação encaixante (material existente entre a zona contaminada e o aquífero) podemos fazer variar além das proporções das componentes do ciclo hidrológico, alguns dos parâmetros locais e característicos desta zona, nomeadamente a condutividade hidráulica saturada (K_{sat}) o parâmetro exponencial específico do solo (b) e a fracção volumétrica de água em condições saturadas (θ_{sat}) conforme descrito na Tabela 4-7.

Tabela 4-7: Parâmetros necessários ao cálculo do grau de saturação.

Parâmetros	a)	b)
K _{sat} (m.ano ⁻¹)	1090	219
b (-)	4,90	5,39
θ_{sat} (-)	0,435	0,451

Os resultados da simulação do transporte subterrâneo para o rádio são descritos nos cálculos seguintes. Os resultados agrupados segundo a) ou b) referemse aos mesmos valores de K_{sat}, b e θ_{sat} e os resultados agrupados com 1.º caso, 2.º caso ou 3.º caso, referem-se aos mesmos valores das componentes do ciclo hidrológico, de acordo com a representação na Tabela 4-8. O grau de saturação (R_s) vai permitir estimar a velocidade vertical (V_v) e o factor de retardação na vertical (R_v).

	1.º c	aso	2.º c	aso	3.º c	aso
	a)	b)	a)	b)	a)	b)
R _s (-)	0,4124	0,4935	0,5199	0,6120	0,4359	0,5195
θ (-)	0,1794	0,2226	0,2262	0,2760	0,1896	0,2343
ε (-)	0,4350	0,4510	0,4350	0,4510	0,4350	0,4510
R _v (-)	5,863 x 10 ²	4,728 x 10 ²	4,653 x 10 ²	3,814 x 10 ²	5,547 x 10 ²	4,491 x 10 ²
V _v (m/ano)	0,0725	0,0584	1,1142	0,9131	0,1392	0,1127

Os valores obtidos para estes parâmetros evidenciam uma retardação no transporte dos RDN na vertical com origem na saturação parcial do meio (R_s). Verificase que quanto maior o grau de saturação, menor a retardação e menor a velocidade de transporte dos RDN na vertical.

O valor da velocidade do fluxo na vertical (V_v) é relativamente pequeno o que origina um factor de retardação bastante elevado, para os 1.º e 3.º casos, com o consequente retardamento no transporte dos RDN na vertical (devido aos processos de sorção parcial dos RDN pelo solo), já que este parâmetro varia inversamente com a velocidade de transporte do RDN.

No 2.º caso de simulação, obtiveram-se valores bastante mais elevados para (V_v) do que para os restantes casos, o que pode ser explicado pela elevada quantidade de água que se infiltra (252 L.m⁻².ano⁻¹), relativamente aos outros casos considerados, originando maior grau de saturação e menor retardação no transporte dos RDN.

A variação da condutividade hidráulica saturada (K_{sat}) vai influenciar o grau de saturação, a velocidade vertical e o retardamento na vertical. Estas alterações vão-se traduzir na variação do tempo transiente na vertical (t_v) aumentado ou diminuindo, consoante o caso, o tempo de transporte dos RDN até ao aquífero.

Para a simulação do transporte na horizontal entre o ponto onde se dá a infiltração e o ponto de exposição são necessários os dados de entrada representados na Tabela 4-9.

Tabela 4-9: Dados de entrada necessários ao cálculo de t_v e η_v .

Parâmetros	
ε _a (-)	0,39
L (m)	331,7
d (m²/ano)	270
D _v (m)	6
V (m/ano)	300

O valor da extensão do local contaminado paralelo ao aquífero, L, foi estipulado como sendo a raiz quadrada da área contaminada. Posteriormente, verificou-se com os dados da Exmin (2003) que este valor é aproximadamente igual a 400 m.

Resultados	1.º c	aso	2.º caso		3.º caso	
	a)	b)	a)	b)	a)	b)
t _v (anos)	4,854 x 10 ⁴	4,856 x 10 ⁴	2,505 x 10 ⁴	2,506 x 10 ⁴	2,391 x 10 ⁴	2,392 x 10 ⁴
η, (-)	2,872	2,874	1,003	1,003	1,309	1,309
R _v (-)	586,258	472,765	465,263	381,449	554,750	449,128

Tabela 4-10: Resultados da estimativa de t_v e η_v .

Da comparação entre as situações a) e b) de cada caso, verifica-se que o aumento do grau de saturação implica um ligeiro aumento do tempo transiente na vertical (t_v) o mesmo acontecendo para o parâmetro η_v . A variação para estes dois parâmetros não é significativa, e ainda o é menos no transporte horizontal, já que as variações são referentes ao transporte na vertical. Por este motivo abandonaremos nas simulações seguintes, a variação do grau de saturação para cada caso considerado.

Chamamos a atenção para os elevados valores obtidos para o tempo transiente na vertical, na ordem de 10⁴ em todos os casos, ao que pode ser explicado pela reduzida velocidade dos RDN na vertical, que depende por sua vez, dos parâmetros característicos do meio (velocidade de infiltração, grau de saturação e porosidade) através do qual os RDN são transportados.

Resultados	1.º caso	2.º caso	3.º caso
t _h (anos)	298,750	298,750	298,750
η (-)	1,0	1,0	1,0
R _H (-)	270,230	270,230	270,230
t _t (anos)	4,880 x 10 ⁴	2,800 x 10 ⁴	2,420 x 10 ⁴
Q _p (Bq/ano)			
$t = 0 (t_h + 0)$	0	0	0
$t = 1 (t_h + 1)$	2,092 x 10 ⁷	4,056 x 10 ⁸	4,249 x 10 ⁷
$t = 10 (t_h + 10)$	2,092 x 10 ⁸	4,056 x 10 ⁹	4,249 x 10 ⁸
$t = 100 (t_h + 100)$	2,092 x 10 ⁹	4,056 x 10 ¹⁰	4,249 x 10 ⁹

Tabela 4-11: Resultados da simulação do transporte dos RDN.

Alguns parâmetros mantêm-se constantes nos três casos simulados, nomeadamente o factor de retardação na horizontal, R_H (270,23), o tempo transiente na horizontal, t_h (298,75 anos) e o factor de correcção, η (1,0), isto porque estes parâmetros descrevem o transporte da água subterrânea ao longo do aquífero que

depende de parâmetros locais comuns aos três casos, independentemente do balanço hidrológico inicial.

As variações mais acentuadas ocorreram ao nível do parâmetro t_t , pelo contributo do tempo transiente na vertical (t_v) variável com $V_v \in R_v$ que por sua vez variam com a quantidade de água que se infiltra através do grau de saturação.

O factor de retardação na horizontal (R_H) é menor do que o factor de retardação na vertical (R_v), como seria de esperar, uma vez que este parâmetro varia inversamente com o grau de saturação, e como o aquífero representa um meio completamente saturado, o grau de saturação é igual a 1. A origem e as causas do mecanismo de retardação devem-se às reacções entre os RDN e o meio sólido (sorção parcial) bem como ao decaimento radioactivo que ocorre durante o transporte, já descrito no modelo conceptual.

Pode-se observar da Tabela 4-8 que a velocidade subterrânea (V = 300 m/ano) é muito superior à velocidade na vertical (V_{v-1.°} = 0,0725; V_{v-2.°} = 1,1142 e V_{v-3.°} = 0,1392). Os tempos transientes na vertical (t_v) e na horizontal (t_h) seguem a mesma grandeza destes resultados, pois o primeiro é bastante elevado relativamente ao segundo (cerca de 166 vezes maior!). Este último parâmetro representa o tempo a partir do qual se inicia o transporte dos RDN pela água subterrânea até ao poço (Q_p) e corresponde ao valor de 298,75 anos na simulação deste caso. No período anterior a este valor, para t (tempo da simulação) \leq t_h (tempo transiente horizontal), o débito de RDN transportados ao poço é nulo. De facto, a pequena concentração na água de infiltração e a retardação no transporte dos RDN pela água subterrânea origina, por um lado, uma concentração reduzida na água de transporte e por outro, o aumento do tempo transiente dos RDN até aos receptores, originando um decaimento radioactivo adicional durante o transporte.

A simulação do transporte dos RDN até ao poço depende do tempo de simulação considerado (t) razão pela qual apresentamos os resultados da simulação (Q_p) com quatro valores distintos para este parâmetro: t = 298,75; 299,75; 308,75 e 398,75 anos. O valor resultante para o primeiro tempo considerado (t = 298,75 anos) é interpretado como nulo, isto é, não há RDN presentes na água do poço e corresponde ao ano zero, ao fim de 1 ano (t = 299,75) já foram transportados cerca de 4,249 x 10⁷ Bq até ao poço, ao fim de 10 anos (t = 308,75), este valor aumenta 10 vezes e ao fim de 100 anos (t = 398,75) o aumento é de 100 vezes, o que significa que há uma proporcionalidade relativamente ao tempo.

O parâmetro Q_p é a saída principal do submodelo de lixiviação e infiltração e a partir do seu valor é possível calcular a concentração de RDN na água do poço e estimar a quantidade de RDN disponível para exposição, quer pela utilização da água do poço para ingestão quer como água de rega. Para esta simulação adoptou-se o valor de Q_p para t_h = 299,75 anos (o que equivale a t = 1 ano), D_a = 10 m e α = 0,3 rad. Os resultados obtidos encontram-se na Tabela 4-12.

Tabela 4-12: Resultados da simulação da concentração de RDN na água do poço.

Resultados	1.º caso	2.ª caso	3.º caso
W _A (m ³ /ano)	5,053 x 10⁵	5,053 x 10⁵	5,053 x 10⁵
C _{wp} (Bq/m ³)	41,408	802,686	84,081

4.5.3.2 Escorrência superficial e o transporte para os cursos de água

A última fase do modelo hidrológico simula a escorrência superficial da água da chuva transportando os RDN para as águas superficiais, contaminando os cursos de água, neste caso representado por um ribeiro. Os parâmetros de entrada necessários a esta simulação são: $C_{sss} = 1774,55$ Bq/kg e $Q_s = 3,57 \times 10^5$ m³/ano e os resultados vão variar consoante a proporção de água que escorre superficialmente definida inicialmente pelo balanço hidrológico.

Tabela 4-13: Resultados da simulação do modelo de lixiviação com escorrência superficial.

Resultados	1.º caso	2.º caso	3.º caso
C _{swi} (Bq/m ³)	2,534 x 10 ⁴	2,534 x 10 ⁴	2,534 x 10 ⁴
W _{rf} (m ³ /ano)	4,356 x 10 ⁷	5,50 x 10 ⁶	3,497 x 10 ²
R _{sf} (Bq/ano)	1,104 x 10 ⁹	1,394 x 10 ⁸	8,783 x 10 ³
C _{as} (Bq/m ³)	3,092 x 10 ³	3,905 x 10 ²	2,000 x 10 ⁻²

A concentração de RDN na água de transporte é um valor pequeno para 3.º caso, como seria de esperar, devendo-se por um lado, à lixiviação reduzida que se verifica, por outro à adição de uma pequena quantidade de contaminante lixiviado que escorre superficialmente para um grande volume de água (caudal anual dos cursos de água: $Q_s = 3,57 \times 10^5 \text{ m}^3$ /ano) originando uma diluição elevada. Também é o caso que mais se aproxima da realidade. Para os outros casos, verificou-se que os valores elevados obtidos são proporcionais à quantidade de água nas escorrências superficiais definida no balanço hidrológico, nomeadamente cerca de 396 L.m⁻².ano⁻¹ no 1.º caso e cerca de 50 L.m⁻².ano⁻¹ no 2.º caso.

Existem dados da monitorização periódica efectuada nos cursos de água circundantes da barragem de estéreis, cujos valores foram fornecidos pela ENU. Focaremos o caso particular da ribeira da Pantanha, pelo facto de ser a linha de água directamente afectada pela área industrial. As análises efectuadas referem-se a 4 pontos de amostragem na ribeira da Pantanha, designados por C₁, C₂, C₃ e C₄, e o seu valor médio em rádio é aproximadamente igual a 110 Bq/m³, variando entre 40 e 350 Bq/m³. Tentamos aproximar o valor de C_{as} obtido no modelo, de forma a enquadrar-se neste intervalo, através da variação da quantidade de água que se perde nas escorrências superficiais. No entanto, desconhecemos por completo os restantes parâmetros de entrada para este cálculo. Substituindo R_r = 3,154 x 10⁻³ por 5,3154 L.m⁻².ano⁻¹ obtemos como concentração de rádio na água superficial, C_{as} = 40,25 Bq/m³, valor aproximado do valor mínimo obtido nas análises fornecidas pela ENU.

4.5.4 Exploração do modelo para o Pb e para o Po

A simulação anterior foi direccionada especificamente para o rádio presente num resíduo com origem num minério com teor de 1 kg/ton, iremos agora proceder de igual modo para os restantes RDN a considerar no transporte hidrológico, o polónio (Po) e o chumbo (Pb). Escolhemos os parâmetros de exploração do balanço hidrológico do 1º caso e do 3.º caso porque apresentam os menores valores de infiltração de água através da cobertura, e este último corresponde ao caso particular a que se pretende aplicar este modelo.

4.5.4.1 Exploração do modelo para o resíduo resultante do teor 1 kg/ton

Admitindo que todos os RDN têm o mesmo $F_c = 9,264 \times 10^{-3}$, os resultados da exploração do modelo para o 1.º caso encontram-se na Tabela 4-14 e na Tabela 4-15 segundo os respectivos RDN.

Resultados	Po; Pb
V _{inf} (m/ano)	0,013
R _s (-)	0,4124
θ (-)	0,1794
ε (-)	0,4350
W _{rf} (m ³ /ano)	4,356 x 10 ⁷
V _v (m/ano)	0,075

Tabela 4-14: Resultados independentes do RDN para o 1.º caso (teor 1 kg/ton).

Tabela 4-15: Resultados da exploração com os parâmetros do 1.º caso do balanço hidrológico e para os RDN: ²¹⁸Po, ²¹⁴Po, ²¹⁰Po e ²¹⁰Pb (teor 1 kg/ton).

Resultados	²¹⁸ Po	²¹⁴ Po	²¹⁰ Po	²¹⁰ Pb
C _{inf} (Bq/m ³)	1,136 x 10⁵	1,136 x 10⁵	1,136 x 10⁵	1,165 x 10⁴
V _{inf} (m/ano)	0,0130	0,0130	0,0130	0,0130
Q _o (Bq/ano)	1,624 x 10 ⁸	1,624 x 10 ⁸	1,624 x 10 ⁸	1,666 x 10 ⁷
R _v (-)	84,61	84,61	84,61	837,08
t _v (anos)	7005,88	7005,88	7005,88	6,931x10 ⁴
η, (-)	5,349	1,003	1,0	1
t _h (anos)	43,62	43,62	43,62	426,31
η (-)	1	1	1	1
R _H (-)	39,46	39,46	39,46	385,61
t _t (anos)	7049,507	7049,507	7049,507	69739,890
Q _p (Bq/ano)				
$t = 0 (t_h + 0)$	0	0	0	0
$t = 1 (t_h + 1)$	0	0	8,8713 x 10 ⁻²⁷	24,461
$t = 10 (t_h + 10)$	0	0	8,8713 x 10 ⁻²⁶	244,61
$t = 100 (t_h + 100)$	0	0	8,8713 x 10 ⁻²⁵	2446,1
C _{wp} (Bq/m ³)	0	0	1,7555 x 10 ⁻³²	4,8405 x 10 ⁻⁵
C _{swi} (Bq/m ³)	1,7741 x 10 ⁵	1,7741 x 10 ⁵	1,7741 x 10 ⁵	1,7741 x 10 ⁴
R _{sf} (Bq/ano)	7,728 x 10 ⁹	7,728 x 10 ⁹	7,728 x 10 ⁹	7,728 x 10 ⁸
C _{as} (Bq/m ³)	21647,61	21647,61	21647,61	2164,76

Para o 3.º caso de exploração do balanço hidrológico os resultados da simulação encontram-se na Tabela 4-16 e na Tabela 4-17.

Resultados	Po; Pb
V _{inf} (m/ano)	0,0264
R _s (-)	0,4359
θ (-)	0,1896
ε (-)	0,4350
W _{rf} (m ³ /ano)	3,4692 x 10 ²
V _v (m/ano)	0,1392

Tabela 4-16: Resultados independentes do RDN para o 3.º caso (teor 1 kg/ton).

Tabela 4-17: Resultados da exploração com os parâmetros do 3.º caso do balanço hidrológico e para os RDN: ²¹⁸Po, ²¹⁴Po, ²¹⁰Po e ²¹⁰Pb.

Resultados	²¹⁸ Po	²¹⁴ Po	²¹⁰ Po	²¹⁰ Pb
C _{inf} (Bq/m ³)	1,136 x 10 ⁵	1,136 x 10 ⁵	1,136 x 10 ⁵	1,165 x 10 ⁴
Q _o (Bq/ano)	3,298 x 10 ⁸	3,298 x 10 ⁸	3,298 x 10 ⁸	3,384 x 10 ⁷
t _v (anos)	3452,60	3452,60	3452,60	34138,08
η, (-)	1,5431	1,0007	1,0	1,0
R _v (-)	80,11	80,11	80,11	792,07
t _h (anos)	43,62	43,62	43,62	426,31
η (-)	1,00007	1,0007	1,0000	1,0000
R _H (-)	39,46	39,46	39,46	385,61
t _t (anos)	3496,22	3496,22	3496,22	34564,40
Q _p (Bq/ano)				
$t = 0 (t_h + 0)$	0	0	0	0
$t = 1 (t_h + 1)$	0	0	0	49,669
$t = 10 (t_h + 10)$	0	0	0	496,69
$t = 100 (t_h + 100)$	0	0	0	4966,9
C _{wp} (Bq/m ³)	0	0	3,565 x 10 ⁻³²	9,828 x 10 ⁻⁵
C _{swi} (Bq/m ³)	1,7741 x 10 ⁵	1,7741 x 10 ⁵	1,7741 x 10 ⁵	1,7741 x 10 ⁴
R _{sf} (Bq/ano)	6,1552 x 10 ⁴	6,1552 x 10 ⁴	6,1552 x 10 ⁴	6,1522 x 10 ³
C _{as} (Bq/m ³)	0,17	0,17	0,17	0,02

4.5.4.2 Exploração do modelo para o resíduo resultante do teor 0,2 kg/ton

Para o caso do minério pobre com teor de 0,2 kg/ton seguiu-se as mesmas etapas de exploração do modelo para o caso anterior. Do mesmo modo que para os estéreis com origem num minério de 1 kg/ton, calculamos a actividade resultante da quantidade total de estéreis depositados na barragem bem como a sua distribuição por radioisótopo.

Q _{st}		2,640 x 10 ⁹ (kg)
Nuclídeo	A _{ct} (Bq/kg)	A _{ct} total (Bq)
²³⁸ U	0	0
²³⁴ Th	0	0
²³⁴ Pa	0	0
²³⁴ U	0	0
²³⁰ Th	2,075 x 10 ³	5,478 x 10 ¹²
²²⁶ Ra	2,075 x 10 ³	5,478 x 10 ¹²
²²² Rn	2,075 x 10 ³	5,478 x 10 ¹²
²¹⁸ Po	2,075 x 10 ³	5,478 x 10 ¹²
²¹⁴ Pb	2,075 x 10 ³	5,478 x 10 ¹²
²¹⁴ Bi	2,075 x 10 ³	5,478 x 10 ¹²
²¹⁰ TI	2,075 x 10 ³	5,478 x 10 ¹²
²¹⁴ Po	2,075 x 10 ³	5,478 x 10 ¹²
²¹⁰ Pb	2,075 x 10 ³	5,478 x 10 ¹²
²¹⁰ Bi	2,075 x 10 ³	5,478 x 10 ¹²
²¹⁰ Po	2,075 x 10 ³	5,478 x 10 ¹²
²⁰⁶ Pb	-	-
Total	2,283 x 10 ⁴	6,026 x 10 ¹³

Tabela 4-18: Actividade, por radioisótopo, em 2,640 x 10^9 kg de estéreis depositados na barragem, que resultaram do tratamento de um minério de urânio com teor de 0,2 kg/ton.

Parte-se do pressuposto que a fracção da lixiviação provocada pela água da precipitação é a mesma considerada anteriormente e igual para todos os RDN, isto é $F_c = 0,009264$. A concentração de RDN na água de infiltração vai ser um valor muito pequeno devido ao baixo teor do minério.

A concentração dos RDN no solo superficial, C_{sss} , passa a ser calculada em função da lixiviação do minério com teor de 0,2 kg/ton e admitindo, à semelhança do que foi feito anteriormente, que a actividade no solo superficial é de 15 ppm, o que origina um valor de 12,618 Bq/kg.

Os resultados da exploração do modelo para o 1.º caso segundo os RDN considerados encontram-se na Tabela 4-19 e na Tabela 4-20.

Resultados	Ra; Po; Pb
V _{inf} (m/ano)	0,0130
R _s (-)	0,4124
θ (-)	0,1794
ε (-)	0,4350
W _{rf} (-)	4,356 x 10 ⁷
V _v (m/ano)	0,0725

Tabela 4-19: Resultados independentes do RDN para o 1.º caso (teor 0,2 kg/ton).

Tabela 4-20: Resultados da exploração com os parâmetros do 1.º caso do balanço hidrológico e para os RDN: ²¹⁸Po, ²¹⁴Po, ²¹⁰Po e ²¹⁰Pb (teor 0,2 kg/ton).

Resultados	²²⁶ Ra	²¹⁸ Po	²¹⁴ Po	²¹⁰ Po	²¹⁰ Pb
C _{inf} (Bq/m ³)	3,209 x 10 ³	2,192 x 10 ⁴	2,192 x 10 ⁴	2,192 x 10 ⁴	2,249 x 10 ³
Q _o (Bq/ano)	4,589 x 10 ⁶	3,135 x 10 ⁷	3,135 x 10 ⁷	3,135 x 10 ⁷	3,216 x 10 ⁶
t _v (anos)	48544,34	7005,88	7005,88	7005,88	69313,57
η _ν (-)	2,8719	5,3492	1,0028	1,00	1,00
R _v (-)	586,26	84,61	84,61	84,61	837,08
t _h (anos)	298,75	43,62	43,62	43,62	426,31
η (-)	1	1,00	1,00	1,00	1,00
R _H (-)	270,230	39,46	39,46	39,46	385,61
t _t (anos)	48843,09	7049,507	7049,507	7049,507	69739,89
Q _p (Bq/ano)					
$t = 0 (t_h + 0)$	0	0	0	0	0
$t = 1 (t_h + 1)$	4,0383 x 10 ⁶	0	0	1,7120 x 10 ⁻²⁷	4,7206
$t = 10 (t_h + 10)$	4,0383 x 10 ⁷	0	0	1,7120 x 10 ⁻²⁶	47,206
$t = 100 (t_h + 100)$	4,0383 x 10 ⁸	0	0	1,7120 x 10 ⁻²⁵	472,06
C _{wp} (Bq/m ³)	7,9912	0	0	3,39 x 10 ⁻³³	9,3415 x 10 ⁻⁶
C _{swi} (Bq/m ³)	1,8026 x 10 ²	1,2618 x 10 ³	1,2618 x 10 ³	1,2618 x 10 ³	1,2618 x 10 ²
R _{sf} (Bq/ano)	7,8523 x 10 ⁶	5,4966 x 10 ⁷	5,4966 x 10 ⁷	5,4966 x 10 ⁷	5,4966 x 10 ⁶
C _{as} (Bq/ano)	22,00	153,97	153,97	153,97	15,40

Por último, os resultados para o 3.º caso do balanço hidrológico encontram-se representados na Tabela 4-21 e na Tabela 4-22.

Resultados	Ra; Po; Pb
V _{inf} (m/ano)	0,0264
R _s (-)	0,4359
θ (-)	0,1896
ε (-)	0,4350
W _{rf} (-)	3,469 x 10 ²
V _v (m/ano)	0,1392

Tabela 4-21: Resultados independentes do RDN para o 3.º caso (teor 0,2 kg/ton).

Tabela 4-22: Resultados da exploração com os parâmetros do 3.º caso do balanço hidrológico e para os RDN: ²¹⁸Po, ²¹⁴Po, ²¹⁰Po e ²¹⁰Pb (teor 0,2 kg/ton).

Resultados	²²⁶ Ra	²¹⁸ Po	²¹⁴ Po	²¹⁰ Po	²¹⁰ Pb
C _{inf} (Bq/m ³)	3,2089 x 10 ³	2,1920 x 10 ⁴	2,1920 x 10 ⁴	2,1920 x 10 ⁴	2,249 x 10 ³
Q _o (Bq/ano)	9,318 x 10 ⁶	6,365 x 10 ⁷	6,365 x 10 ⁷	6,365 x 10 ⁷	6,530 x 10 ⁶
t _v (anos)	23909,5873	3452,5978	3452,5978	3452,5978	34138,0820
η _ν (-)	1,3090	1,5431	1,0007	1,00	1,00
R _v (-)	554,75	80,11	80,11	80,11	792,07
t _h (anos)	298,75	43,62	43,62	43,62	426,31
η (-)	1	1,00	1,00	1,00	1,00
R _H (-)	270,230	39,46	39,46	39,46	385,61
t _t (anos)	24208,34	3496,22	3496,22	3496,22	34564,40
Q _p (Bq/ano)					
$t = 0 (t_h + 0)$	0	0	0	0	0
$t = 1 (t_h + 1)$	8,1999 x 10 ⁶	0	0	3,4763 x 10 ⁻²⁷	9,5854
$t = 10 (t_h + 10)$	8,1999 x 10 ⁷	0	0	3,4763 x 10 ⁻²⁶	95,854
$t = 100 (t_h + 100)$	8,1999 x 10 ⁸	0	0	3,4763 x 10 ⁻²⁵	958,54
C _{wp} (Bq/m ³)	16,226	0	0	6,8792 x 10 ⁻³³	1,8968 x 10 ⁻⁵
C _{swi} (Bq/m ³)	1,8026 x 10 ²	1,2618 x 10 ³	1,2618 x 10 ³	1,2618 x 10 ³	1,2618 x 10 ²
R _{sf} (Bq/ano)	62,540	4,3778 x 10 ²	4,3778 x 10 ²	4,3778 x 10 ²	4,3778 x 10 ¹
C _{as} (Bq/ano)	0	0	0	0	0

Os resultados anteriores encontram-se sintetizados nas figuras seguintes segundo o RDN considerado.







Figura 4-4: Actividade em ²¹⁸Po na água do poço, Bq/ano.



Figura 4-5: Actividade em ²¹⁴Po na água do poço, Bq/ano.



Figura 4-6: Actividade em ²¹⁰Po na água do poço, Bq/ano.



Figura 4-7: Actividade em ²¹⁰Pb na água do poço, Bq/ano.

4.5.5 Discussão

Os modelos desenvolvidos pretendem descrever a exposição de potenciais receptores a uma barragem de estéreis resultantes do tratamento hidromineralúrgico do minério de urânio. O receptor (humano e/ou animais) poderá sofrer exposição directa desencadeada pelo transporte dos RDN no modelo hidrológico através da ingestão de água contaminada vinda do poço e/ou uma exposição indirecta através da ingestão de alimentos irrigados com água proveniente do poço ou de produtos de animais que tenham ingerido água do poço. Pode ainda sofrer exposição através das águas superficiais contaminadas, através dos animais aquáticos ou de animais que tenham ingerido água contaminada.

O modelo contempla dois casos de minérios com teores diferentes, 1 kg/ton e 0,2 kg/ton, e as respectivas actividades geradas nos estéreis.

O modelo considera quatro zonas a estudar no percurso dos RDN: a cobertura, a zona contaminada, a zona insaturada e a zona saturada. Os RDN são mobilizados sequencialmente em duas direcções: na vertical até ao aquífero (cobertura, zona contaminada e zona insaturada) e depois na horizontal ao longo do aquífero (zona saturada) até ao ponto de exposição (poço). Considera ainda que os RDN podem ser incorporados nas escorrências superficiais contaminando as águas superficiais que constituem mais um ponto de exposição.

As saídas do modelo de interesse para as trajectórias de entrada na cadeia alimentar são a concentração de RDN na água do poço (C_{wp}) e a concentração de RDN na água superficial (C_{as}), cujos valores resumidos apresentamos na Tabela 4-23, com origem nos resíduos no minério de teor 1 kg/ton e 0,2 kg/ton, respectivamente.

Teor 1 kg/ton	²²⁶ Ra	²¹⁸ Po	²¹⁴ Po	²¹⁰ Po	²¹⁰ Pb
1.º Caso					
C _{wp} (Bq/m ³)	41,408	0	0	0	4,84 x 10 ⁻⁵
C _{as} (Bq/m ³)	3,09 x 10 ³	2,17 x 10 ⁴	2,17 x 10 ⁴	2,17 x 10 ⁴	2,16 x 10 ³
3.º Caso					
C _{wp} (Bq/m ³)	84,08	0	0	0	9,83 x 10⁻⁵
C _{as} (Bq/m ³)	0,02	0,17	0,17	0,17	0,02
Teor 0,2 kg/ton	²²⁶ Ra	²¹⁸ Po	²¹⁴ Po	²¹⁰ Po	²¹⁰ Pb
1.º Caso					
C _{wp} (Bq/m ³)	7,99	0	0	0	9,34 x 10 ⁻⁶
C _{as} (Bq/m ³)	22,00	153,97	153,97	153,97	15,40
3.º Caso					
C _{wp} (Bq/m ³)	16,23	0	0	0	1,89 x 10 ⁻⁵
	-				

Tabela 4-23: Concentração de RDN na água do poço (C_{wp}) e na água superficial (C_{as}).

Da análise destes valores pode-se enunciar o seguinte:

 Na bibliografia consultada são referidos alguns limites para a concentração de rádio na água subterrânea: 185 Bq/m³ no caso de ²²⁶Ra combinado com ²²⁸Ra e 555 Bq/m³ no caso dos emissores de partículas α (inclui o ²²⁶Ra mas exclui o urânio e o radão) (EPA, 2000b). Para a simulação partindo de um minério com teor de 1 kg/ton, em qualquer dos casos, a concentração de ²²⁶Ra na água do poço encontra-se muito abaixo deste limite. O mesmo acontece com a simulação partindo do minério pobre com teor de 0,2 kg/ton.

- 2. Os elevados valores obtidos para a concentração de RDN na água superficial, para todos os casos do minério com teor de 1 kg/ton podem ser explicados pelo elevado fluxo considerado para a água de escorrência. A quantidade de água que se infiltra e que escorre é determinante para calcular a concentração de RDN na água do poço e na água superficial. Neste último caso é directamente proporcional às escorrências superficiais. Os baixos valores obtidos para os restantes casos são aceitáveis devendo-se, em parte, à grande diluição da baixa concentração dos RDN para um volume elevado de água. Para o minério com teor de 0,2 kg/ton os valores estão abaixo do limite referido no ponto 1, devendo-se principalmente ao baixo teor do minério.
- 3. A concentração ²¹⁸Po e do ²¹⁴Po na água do poço é nula para os dois minérios, em ambos os casos. No transporte hidrológico deve-se considerar os RDN emissores de partículas α (como é o caso do polónio) com período de semivida suficientemente grande para serem mobilizados pelo sistema de transporte. Os RDN com período de semi-vida inferior a 1 hora ou menos, provavelmente sofrem um decaimento antes de chegarem ao ponto de exposição não constituindo, desta forma, perigo para a saúde pública (EPA, 2000b). O período de semi-vida para o ²¹⁸Po é de 3 minutos e para o ²¹⁴Po é de 1,6 x 10⁻⁴ segundos. No caso da concentração do polónio na água superficial (C_{as}), os valores obtidos são exageradamente elevados para o 1.º caso de simulação, pelo motivo enunciado no ponto anterior. O mesmo se passa para os restantes radioisótopos, ²¹⁰Po e ²¹⁰Pb.
- 4. No caso do ²¹⁰Po, a sua presença na água subterrânea pode ter contornos diferentes, isto porque o período de semi-vida deste RDN é de 138 dias e, mesmo a baixas concentrações, o ²¹⁰Po pode causar impactes negativos muito graves no organismo. Pequenas quantidades de ²¹⁰Po podem ser realmente perigosas (apenas 0,03 µCi de ²¹⁰Po pode ser cancerígeno) originando cerca de 5000 vezes mais radiação α do que a mesma quantidade de ²²⁶Ra. No entanto, apesar do ²¹⁰Po ser uma partícula reactiva, não se espera encontrar elevadas concentrações na água subterrânea, uma vez que a sua ocorrência, em elevadas concentrações, está associada a ambientes geoquímicos

invulgares e bastante raros caracterizados por águas ácidas e concentrações elevadas em radão (EPA, 2000b).

5. Para as concentrações de ²¹⁰Pb nas águas superficiais esperam-se valores muito pequenos devido à sorção preferencial deste RDN com os sedimentos do aquífero. A sorção para este elemento (Pb) tende a ser mais elevada do que para outros elementos traço. O ²¹⁰Pb é também um produto importante do decaimento radioactivo não só pela sua radiotoxicidade mas também pela mobilidade do ²¹⁰Po, o seu filho subsequente. Em algumas trajectórias, o ²¹⁰Pb e o ²¹⁰Po podem contribuir para uma dose similar ou até uma dose superior à do ²²⁶Ra (EPA, 2000b). Foi estipulado o limite de 4,07 Bg/m³ (0,11 pCi/L) para este elemento (²¹⁰Pb) tanto para águas subterrâneas como águas superficiais (EPA, 2000b). Apenas no 1.º caso e no minério com teor de 1 kg/ton, o valor obtido é exageradamente elevado, o que pode ser justificado de acordo com o referido no ponto 2. Algumas análises da água de poços da envolvente da barragem de estéreis da Urgeiriça apresentam valores de 0,072 Bq/L (72,25 Bq/m³) e na ribeira da Pantanha valores de 0,110 Bq/L (110 Bq/m³). Os resultados obtidos para este parâmetro, na simulação apresentada situam-se abaixo destes valores.

Em resumo, podemos dizer que os valores da concentração na água que aflui ao poço e nas águas superficiais são dependentes das proporções do balanço hidrológico para as componentes da infiltração e das escorrências, pois estes são os mecanismos que movem os RDN dos estéreis e nos quais se vão diluir, em alguns casos. No caso do poço, a concentração é temporalmente dependente e a concentração na água do poço é proporcional ao tempo decorrido após o transporte de RDN no aquífero.

Focando a atenção em particular no 3.º caso, que é o que mais se aproxima da realidade do caso que se pretende estudar (Urgeiriça), o rádio é o RDN que apresenta maiores valores para estes parâmetros entre os RDN estudados, o que confirma a preocupação radiológica com a presença deste RDN na água.

Verificou-se pelos valores obtidos nas simulações do transporte na vertical que o ²²⁶Ra e o ²¹⁰Pb têm comportamento semelhante e que a sua mobilidade na vertical é muito lenta (da ordem de 10⁴ anos).

4.6 Aplicação do modelo à zona mineira da Urgeiriça

Numa fase posterior às simulações efectuadas foram-nos disponibilizados os dados analíticos das águas subterrâneas e superficiais referentes à zona mineira da Urgeiriça. Testaram-se as sub-rotinas para simular casos muito simples, comparando os valores calculados com os valores medidos de alguns dos parâmetros, para proceder à validação do modelo. Usaram-se nesta exploração os valores de parâmetros locais referentes à barragem velha de rejeitados da mina da Urgeiriça (BV), cedidos pela EXMIN (2003).

Procedeu-se à exploração do modelo com os dados medidos localmente e que inclui as seguintes fases:

- (i). A libertação dos RDN através da lixiviação dos RDN do material contaminado;
- (ii). O transporte na vertical através da zona insaturada até atingir o aquífero e na horizontal ao longo do aquífero até ao poço;
- (iii). A estimativa da concentração de RDN na água subterrânea no ponto de exposição (poço) ao fim de um determinado período de tempo.
- (iv). A estimativa da concentração de RDN na água superficial no ponto de exposição (ribeira da Pantanha) ao fim de um determinado período de tempo.

Para a exploração de cada um dos submodelos adoptaram-se, além de grande parte dos dados cedidos pela EXMIN referente quer ao material constituinte da barragem de estéreis, quer às características hidrogeológicas locais, também alguns dados publicados por outros autores e referentes ao mesmo local (Bettencourt et al., 1990), (Reis et al. , 2000). Adoptaram-se ainda alguns valores da bibliografia genérica para os parâmetros que não foram medidos localmente. Desta forma, tentou-se fazer a exploração com o maior número possível de parâmetros referentes a este local em particular.

4.6.1 Dados de entrada referentes à zona mineira da Urgeiriça

Os dados de entrada necessários à exploração do modelo encontram-se representados na Tabela 4-24.

Parâmetros de entrada						
Precipitação			Pr	L.m ⁻² .ano ⁻¹		1157,2
Escorrência			R _r	L.m ⁻²	.ano ⁻¹	0
Evapotranspitação	ET,	L.m ⁻²	.ano ⁻¹	715		
Débito de irrigação			IR _r	L.m ⁻²	.ano ⁻¹	0
Coeficiente de escorrência			Cr	(-)	0,21
Coeficiente de evapotranspiração	C _e	(-)		0,62		
Parâmetro b (zona insaturada)	b	(-)	4,05		
Extensão da zona contaminada ⁴			L	m		400
Área da zona contaminada	A	m²		133 000		
Espessura da zona contaminada	x _t	m		14		
Condutividade hidráulica saturada			K _{sat}	m.ano ⁻¹		250
Coeficiente de dispersão			d	m ² .ano ⁻¹		534
Distância entre a zona contaminada e o aquífero ⁵			D _v	m		3
Velocidade da água subterrânea	V	m.ano ⁻¹		60		
Espessura do aquífero	D _A	m		8		
Ângulo de dispersão do aquífero	α	rad		0,3		
Densidade (seca)						
Zona contaminada (ou resíduo)			ρ_t	g.cm ⁻³		1,67
Zona insaturada (ou substrato)			ρ _f	g.cm ⁻³		1,9
Zona saturada (ou aquífero)			ρ _a	g.cm ⁻³		2,10
Porosidade total						
Zona contaminada (ou resíduo)			ε _t	(-)		0,37
Zona insaturada (ou substrato)			ε _f	(-)		0,35
Zona saturada (ou aquífero)			ε _a	(-)		0,21
Coeficiente de distribuição			U _{total}	²²⁶ Ra	²¹⁰ Pb	²³⁰ Th
Solo superficial	K _{d1}	ml/g	50	70	100	60000
Zona contaminada (ou resíduo)	K _{d2}	ml/g	50	70	100	60000
Zona insaturada (ou substrato)	K_{d3}	ml/g	50	70	100	60000
Zona saturada (ou aquífero)	Ka	ml/g	50	70	100	60000
Actividade na barragem A _i Bq/kg		2300	12900	16200	9800	

Tabela 4-24: Dados de entrada referentes à BV da Urgeiriça para a exploração do modelo.

Os dados meteorológicos (precipitação, evaporação e evapotranspiração) referem-se à estação meteorológica de Caldas de Felgueira. Dada a proximidade da

 ⁴ Paralela ao fluxo do aquífero.
⁵ Espessura da zona insaturada.

sub-bacia da ribeira da Pantanha a esta estação, parece legítimo adoptar estes valores (Exmin, 2003).

Considerou-se que não existe irrigação do local e que não existe sistema de cobertura eficaz sobre a BV. A água proveniente dos poços pode ser usada como água de rega ou de ingestão para os animais, sendo estas as principais vias de transferência dos RDN para os receptores. Da mesma forma que anteriormente, considerou-se que um dos pontos de exposição é representado por um poço, no caso das águas subterrâneas, e que o outro ponto de exposição é representado pela ribeira da Pantanha, no caso das águas superficiais

Considerou-se que para t = 0, a água do poço não se encontra contaminada e a simulação foi feita desde o instante t = 0 até t = 300 anos, após se verificar a contaminação da água subterrânea, o que só vai acontecer quando o tempo de simulação exceder o tempo de transporte dos RDN. Como resultado vamos obter a concentração de RDN na água do poço, bem como o fluxo cumulante de RDN transportados até ao poço, após o tempo de exploração considerado, no caso da água subterrânea. No caso da água superficial vamos obter a concentração média de RDN na ribeira da Pantanha cuja simulação será abordada posteriormente no capítulo 5.

4.6.2 A amostragem do local

Foram realizadas pela EXMIN duas campanhas de amostragem dos pontos de água na zona em estudo. A campanha de Junho deveria corresponder a clima típico de Verão e a de Novembro a clima típico de Inverno, no entanto, as condições meteorológicas verificadas corresponderam a um período chuvoso intenso que se prolongou até à Primavera (Exmin, 2003). A opção pelas duas campanhas teve por objectivo detectar eventuais variações sazonais da composição química na área da mina e na sua envolvente.

As amostras foram recolhidas em linhas de água, com especial incidência na ribeira da Pantanha e linhas de água a ela afluentes; no rio Mondego, no local onde desagua a ribeira e em poços e furos localizados no interior da área mineira, a montante e a jusante da mesma. As amostras foram objecto de análise química e radiológica.

No "Estudo Director de Áreas de Minérios Radioactivos" (Exmin, 2003) efectuado pela EXMIN, é referido que ocorrem na região várias acumulações

anómalas de urânio não exploradas por não terem potencial económico mas que podem também contribuir para transferir as mesmas espécies químicas que resultam da lixiviação dos resíduos das actividades mineiras. Nesta perspectiva e segundo esta referência bibliográfica, a avaliação dos impactes no meio hídrico resultantes da actividade mineira, não deverá basear-se exclusivamente na concentração absoluta dos elementos químicos presentes na água. Por este motivo, as amostras foram organizadas em dois grupos principais, um correspondente a amostras que representam o fundo natural (inclui as anomalias naturais), designado por grupo I e outro que engloba as amostras potencialmente contaminadas pelas actividades mineiras, designado por grupo II. A metodologia usada teve por base a técnica da análise discriminante e os critérios usados para a separação das amostras em cada grupo tiveram por base os seguintes factos (Exmin, 2003):

- (i). A sua localização, isto é, as amostras colhidas a montante e situadas a maiores distâncias da área mineira terão menor probabilidade de terem sido contaminadas comparativamente às amostras que estão mais próximas e que para além disso se localizam a jusante da mesma área mineira;
- (ii). A existência de fracturas que intersectam a mineralização e que poderão direccionar em profundidade as águas com origem na mina ou na escombreira;
- (iii). A configuração piezométrica admitida para a região;
- (iv). A concentração de outras espécies químicas, nomeadamente os iões SO₄ e Ca dissolvidos nas águas.

As figuras seguintes representam a localização dos pontos de amostragem de interesse à exploração do modelo pela sua proximidade à BV, bem como a representação das respectivas concentrações em ²²⁶Ra (Bq/L) e em U (Bq/L) obtidas nas duas campanhas de amostragem. Os pontos de amostragem estão classificados de acordo com a seguinte designação e com a respectiva numeração:

- Piezómetros S₁, S₂, S₃, S₄, S₅, S₆, S₇, S₈, S₉ e S₁₀;
- Poços P₁₇, P₁₈, P₁₉, P₂₀, P₂₁, P₃₁, P₃₂ e P₃₅ e
- Furos F₃, F₄, F₅, F₆, F₇, F₈ e F₉.



Figura 4-8: Localização dos piezómetros (S), poços (P) e furos (F) amostrados.



Figura 4-9: Localização dos piezómetros e a respectiva actividade em ²²⁶Ra (Bq/L).



Figura 4-10: Localização dos piezómetros e a respectiva actividade em U (Bq/L).



Figura 4-11: Localização dos poços e a respectiva actividade em ²²⁶Ra (Bq/L).



Figura 4-12: Localização dos poços e respectiva actividade em U (Bq/L).



Figura 4-13: Localização dos furos e respectiva actividade em ²²⁶Ra (Bq/L).



Figura 4-14: Localização dos furos e respectiva actividade em U (Bq/L).

Os resultados das análises radiológicas destes pontos de amostragem referentes às duas campanhas de 2001 encontram-se na Tabela 4-25.

Os pontos de amostragem designados por F (furos) foram ainda objecto de análises periódicas entre 2002 e 2003 no âmbito da monitorização ambiental efectuada pela EXMIN na zona da Urgeiriça e também estão representadas na Tabela 4-25.

Ano	ID	U (ppb)	U (ppb)	Ra (Bq/L)	Ra (Bq/L)	⁵U (Bq/L)	Ra (Bq/L)
		1. ^a Camp.	2. ^a Camp.	1. ^a Camp.	2. ^a Camp.	Média	Média
2001	P ₁₇	57	143,5	0,2547	0,4662	2,529	0,360
	P ₁₈	0,5	3,8	0,162	0,242	0,054	0,202
	P ₁₉	0,9	4,2	0,048	0,020	0,064	0,034
	P ₂₀	0,5	0,3	0,027	0,010	0,010	0,019
	P ₂₁	51	134	0,41	0,37	2,334	0,390
	P ₂₂	89	18	0,98	0,72	1,350	0,850
	P ₃₁	0,4	0,9	0,021	0,030	0,016	0,026
	P ₃₂	0,3	0,4	0,0277	0,03	0,009	0,029
	P_{35}	212	216	0,83	0,37	5,399	0,600
2001	F ₃	6,9	1,1	0,094	0,097	0,101	0,096
	F_4	199	146	0,856	0,862	4,352	0,859
	F_5	14	3,7	0,209	0,265	0,223	0,237
	F_6	2,2	1,3	0,115	0,067	0,044	0,091
	F ₇	12	4,7	0,119	0,166	0,211	0,143
	F_8	10	5,5	0,175	0,087	0,196	0,131
	F ₉	11	8,3	0,429	0,343	0,243	0,386
2002	F ₃	2,9	3,2	0,03	0,03	0,077	0,030
	F_4	58	56	0,03	0,03	1,438	0,030
	F_5	8,3	8,5	0,04	0,04	0,212	0,040
	F_6	7,0	1,5	0,04	0,06	0,107	0,050
	F_7	21	4,4	0,03	0,04	0,320	0,035
	F_8	5,0	2,3	0,04	0,04	0,092	0,040
	F9	16	4,8	0,03	0,03	0,262	0,030
2003	F ₃	1,5					
	F ₄	46					
	F_5	577					
	F_6	2,3					
	F ₇	7,6					
	F ₈	3,5					
	F ₉	7,7					

Tabela 4-25: Resultados das análises radiológicas nos pontos amostrados (Exmin, 2003).

As amostras que denotam presença ou alteração na sua composição hidroquímica devido às actividades mineiras localizam-se preferencialmente para

 $^{^{6}}$ 1,11 Bq/L de 238 U é equivalente a 44 µg/L (= 44 ppb) de 238 U no equilíbrio (WISE, 2004).

jusante da escombreira da Barragem Velha, o que pode indicar que os fluxos hidrodinâmicos ocorrem dominantemente no sentido NW - SE (Exmin, 2003).

Os pontos de amostragem encontram-se representados na figura seguinte de acordo com a classificação feita pela EXMIN em dois grupos, em que um grupo representa o fundo natural e portanto não tem influência da actividade mineira, e outro grupo representa a contaminação com influência da actividade mineira.



Figura 4-15: Distribuição espacial da amostragem dos pontos de água.

Dos 9 poços representados 4 estão classificados como contaminados pela actividade mineira: P₂₁, P₂₂, P₃₂, P₃₅ e dos 7 furos representados 6 estão classificados como contaminados pela actividade mineira: F₄, F₅, F₆, F₇, F₈, F₉ (Exmin, 2003). A Tabela 4-26 representa a média, o desvio padrão e os valores mínimo e máximo para cada um dos grupos de amostras classificadas como contaminadas pela actividade mineira.

(Bq/L)	Poços - U	Poços - Ra	Furos - U	Furos - Ra
Média	2,27	0,47	0,88	0,31
Desvio padrão	2,29	0,35	1,70	0,29
Mínimo	0,009	0,029	0,09	0,88
Máximo	5,4	0,85	4,35	0,86

Tabela 4-26: Média, desvio padrão, máximo e mínimo das duas campanhas de amostragem em poços e furos em 2001 (Exmin, 2003).

Para a exploração do modelo só têm interesse os pontos de água a jusante da BV, uma vez que partimos do pressuposto de que as contaminações têm origem na escombreira da BV. Em Exmin (2003) é referido que no interior da barragem o sentido do escoamento ocorre preferencialmente de NW para NE na parte superior e de SW para NE na parte inferior, o que está de acordo com pressuposto anterior pois os pontos de água a montante não podem ser contaminados pela escombreira da BV uma vez que os fluxos hidrodinâmicos ocorrem precisamente na direcção contrária.

Dos poços contaminados, um situa-se a montante (P_{21}) e um na fronteira da BV (P_{22}); dos furos contaminados apenas um se situa a montante (F_9) da BV. A jusante encontram-se localizados 2 poços (contaminados) P_{32} e P_{35} e 5 furos (contaminados) F_4 , F_5 , F_6 , F_7 , F_8 . Na Tabela 4-27 estão representados os valores médios da actividade em Ra e em U, nos pontos de água localizados a jusante da BV, individualizados em dois grupos (i) Poços e (ii) Furos:

Tabela 4-27: Média dos pontos de água a jusante da Barragem Velha (BV).

μ	U (Bq/L)	Ra (Bq/L)
Poços - P	2,70	0,31
Furos - F	1,01	0,29

Na exploração do modelo consideram-se ambas as situações: i) todos os pontos de água contaminados e ii) apenas os pontos de água contaminados que se situam a jusante da BV.

4.6.3 A análise dos dados

Com o objectivo de verificar a direcção preferencial das amostras contaminadas que denotam a presença da actividade mineira efectuou-se um estudo mais aprofundado das análises radiológicas resultantes da amostragem dos pontos de água. O estudo refere-se a um tratamento geoestatístico em que se recorreu a
diferentes métodos de interpolação dos valores analíticos da actividade em rádio e em urânio, incluindo a análise de variogramas direccionais. Apresentamos na tabela seguinte um conjunto de dados estatísticos sumários relativos aos resultados das análises radiológicas de todos os pontos de água amostrados.

RDN	Ra (Bq/L)	U (Bq/L)
N – número de amostras	26	26
μ - média	0,284	2,835
Mediana	0,137	0,204
Variância s ²	0,120	36,310
σ/μ - razão (média / desvio padrão)	1,238	2,126
Mínimo	0	0
Máximo	1,470	28,730

Tabela 4-28: Síntese estatística para os RDN estudados.

A simples análise desta tabela permite verificar que, em especial para o urânio, existem concentrações significativamente elevadas para os pontos de água amostrados atingindo o valor máximo a 28,73 Bq/L. No caso do rádio, a concentração média apresenta um valor razoável; no entanto, o seu máximo é significativamente elevado. As figuras seguintes representam os diversos métodos de interpolação usados no *software* GMS (*Groundwater Modeling System*) para descrever a continuidade espacial das amostras dos respectivos pontos de água.



Figura 4-16: Interpolação linear - Ra (Bq/L).



Figura 4-17: Interpolação cúbica triangular - Ra (Bq/L).



Figura 4-18: Interpolação pelo inverso da distância (função constante) - Ra (Bq/L).



Figura 4-19: Interpolação pelo método "vizinho natural" (função quadrática) - Ra (Bq/L).



Figura 4-20: Interpolação linear - U (Bq/L).



Figura 4-21: Interpolação cúbica triangular - U (Bq/L).



Figura 4-22: Interpolação pelo inverso da distância (função constante) - U (Bq/L).



Figura 4-23: Interpolação pelo método "vizinho natural" (função quadrática) - U (Bq/L).

Procedeu-se ainda ao cálculo de variogramas experimentais e ao posterior ajuste do modelo teórico que melhor descreve cada variograma experimental, através da Krigagem ordinária. Usaram-se dois softwares diferentes para a Krigagem: *GMS e Surfer.* Para o conjunto de dados experimentais relativos ao RDN em estudo apenas



se ajustou um modelo teórico conforme os resultados apresentados nas figuras seguintes.

Figura 4-24: Cartografia da dispersão da contaminação em Ra (Bq/L) na água subterrânea. Representação obtida por Krigagem (*Surfer*).



Figura 4-25: Variograma Experimental e Ajuste do Modelo Teórico (Gaussiano) (Surfer).



Figura 4-26: Cartografia da dispersão da contaminação em U (Bq/L) na água subterrânea. Representação obtida por Krigagem (*Surfer*).



Figura 4-27: Variograma Experimental e Ajuste do Modelo Teórico (Gaussiano) (Surfer).



Figura 4-28: Dispersão da contaminação em U (Bq/L) na água subterrânea. Representação obtida por Krigagem (*Software*: GMS, tolerância – 90.º).



Figura 4-29: Dispersão da contaminação em Ra (Bq/L) na água subterrânea. Representação obtida por Krigagem (*Software*: GMS, tolerância – 60.°).



Figura 4-30: Dispersão da contaminação em Ra (Bq/L) na água subterrânea. Representação obtida por Krigagem (*Software*: GMS, tolerância – 45.°).

Verificou-se que em ambos os métodos existe uma concordância relativa sugerindo que a direcção SW - NE é predominante para o rádio e a direcção NW - SE é predominante para o urânio.

4.6.4 Exploração do modelo para cada ponto de água isolado

A exploração do modelo foi feita para cada ponto de água isolado considerando a distância real de cada ponto de amostragem à fronteira da BV e o valor médio das duas campanhas de amostragem representativo do valor anual da actividade. A exploração do modelo foi direccionada, numa primeira fase, para determinar a actividade na água do poço ao fim de um determinado período de tempo de simulação e numa segunda fase tentou-se determinar o período de tempo a que corresponde o valor actual obtido (média anual) nas análises radiológicas.

Podemos considerar os valores actuais correspondentes ao ano inicial (ano 0) ou como sendo o resultado da simulação ao fim de um determinado período de tempo, a que deverá corresponder ao tempo decorrido entre a deposição dos materiais na escombreira e o início da vigilância radiológica. Estipulou-se a simulação para o período de 10, 20, 30 e 50 anos.

A fonte é considerada pontual e a libertação de RDN na água subterrânea é contínua e constante no tempo. No transporte subterrâneo, considerou-se que os RDN dissolvidos estão em equilíbrio com os RDN adsorvidos pelos sólidos da formação do aquífero e o decaimento ocorre progressivamente tanto para os RDN dissolvidos como para os RDN adsorvidos.

4.6.4.1 Pontos de água contaminados

O poço P_{22} situa-se na fronteira da BV, pelo que a distância à fronteira seria nula. No entanto, fez-se a simulação considerando que este ponto de água se situa próximo da fronteira (40 m). O mesmo se passa com o P_{19} que também se situa na fronteira da BV mas como não se encontra contaminado, não se considerou este ponto de água na simulação.

Os pontos de água, P₁₈, P₂₀ e P₃₁ não são afectados pela contaminação de BV porque não estão localizados na direcção do fluxo hidrodinâmico o que está de acordo com as baixas concentrações em rádio e em urânio medidas nestes pontos de água. Os pontos de água isolados que se situam a jusante da barragem correspondem aos pontos de água que supostamente estão contaminados devido à BV. Os pontos que se encontram nesta situação são P₃₂, P₃₅, F₄, F₅, F₆, F₇ e F₈.

Os pontos de amostragem F_9 , P_{21} e P_{17} , apesar de incluídos na simulação, situam-se a montante da BV, ou seja, na direcção oposta à do fluxo hidrodinâmico.

ID	x (m)	U (Bq/L)	Ra (Bq/L)
P ₂₂	40	1,35	0,85
F۹	44	0,24	0,39
P ₂₁	167	2,30	0,39
F ₄	167	4,30	0,86
P_{35}	244	5,35	0,60
P ₁₇	278	2,50	0,36
F_6	467	0,04	0,091
F ₇	489	0,21	0,14
F ₈	522	0,19	0,13
F_5	533	0,22	0,24
P ₃₂	600	0,009	0,029

Tabela 4-29: Valores médios anuais para cada ponto de água amostrado.

ID	x (m)	U(10)	Ra(10)	U(20)	Ra(20)	U(30)	Ra(30)	U(50)	Ra(50)
P ₂₂	40	0,6	0,90	1,3	2	2	3	3	5
F9	44	0,6	0,9	2	1,8	1,8	3	3	5
P ₂₁	167	0,5	0,4	1,1	0,9	1,7	1,4	2	2,3
F ₄	167	0,5	0,4	1,1	0,9	1,7	1,4	2	2,3
P ₃₅	244	0,5	0,3	1	0,6	0,9	1,6	2,7	1,5
P ₁₇	278	0,5	0,25	1	0,5	1,5	0,75	2,7	1,2
F ₆	467	0,5	0,09	1	0,18	1,5	0,26	2,4	0,42
F ₇	489	0,5	0,07	1	0,15	1,5	0,22	2,5	0,38
F ₈	522	0,5	0,06	1	0,12	1,5	0,2	2,5	0,3
F ₅	533	0,5	0,06	1	0,12	1,5	0,18	2,3	0,3
P ₃₂	600	0,45	0,04	0,9	0,08	1,4	0,12	2,3	0,19

Tabela 4-30: Exploração do modelo para cada ponto de amostragem referente ao horizonte temporal de 10, 20, 30 e 50 anos (actividade em Bq/L).



Figura 4-31: Comparação dos dados analíticos com os resultados do modelo para os diferentes horizontes temporais considerados.

Comparando os valores analíticos com os resultados obtidos para cada uma das explorações verifica-se que, no caso do urânio, não há uma correspondente variação da actividade com a distância: os resultados do modelo apresentam uma ligeira diminuição da concentração em urânio com a distância enquanto que os dados analíticos revelam uma acentuada diminuição deste parâmetro após um aumento acentuado também. Contrariamente, no caso do rádio, existe um padrão de variação bastante semelhante entre os dados analíticos e os resultados do modelo: verifica-se uma diminuição acentuada da concentração em rádio com a distância. Tentou-se verificar se existe uma associação entre a distância ao ponto de amostragem e a actividade verificada nesse mesmo ponto de amostragem, mas apenas para os pontos de água que se localizam a jusante da BV (P₁₇, P₂₁, P₂₂, P₃₅, P₃₂, F₄, F₅, F₆, F₇, F₈, F₉). Para tal, começou-se por determinar o coeficiente de correlação entre a distância, x (m) e a actividade dos RDN (urânio e rádio) verificada no ponto de amostragem considerado, tanto para os dados analíticos como para os dados resultantes da exploração do modelo para diferentes horizontes temporais (10, 20, 30, e 50 anos).

	r	r
	x (m) <i>vs</i> U (Bq/L)	x (m) <i>vs</i> Ra (Bq/L)
Dados analíticos	- 0,67	- 0,96
t = 10 anos	- 0,76	- 0,93
t = 20 anos	- 0,86	- 0,93
t = 30 anos	- 0,35	- 0,96
t = 50 anos	- 0,93	- 0,39

Tabela 4-31: Coeficiente de correlação (r) entre a distância e a actividade no ponto amostrado.

Consultando uma tabela para coeficientes de correlação, para um número de graus de liberdade igual a v = n - 2 = 6 (n = 8 pares de variáveis e 2 variáveis, x e y) e uma variável independente (x), o valor correspondente é 0,621 para um nível de confiança de 90 %; 0,707 para um nível de confiança de 95 % e 0,834 para um nível de confiança de 99 %. Estes são os valores máximos que podem ser obtidos para o coeficiente de correlação, *r*, segundo o respectivo nível de confiança, devido ao acaso, quando não existe correlação entre as variáveis. Para se concluir que existe uma correlação, ao nível de confiança estabelecido, o valor calculado *r* deve ser superior ao valor tabelado. Assim, verifica-se que apenas para o resultado referente ao período de 50 anos no caso do rádio e para o resultado referente ao período de 30 anos no caso do urânio, o valor de *r* calculado não é superior ao valor tabelado para os níveis de confiança considerados. De todos os casos, o que apresenta melhor correlação da distância com a actividade, para ambos os RDN, é o que corresponde ao período de 20 anos com um nível de confiança de 99 %.

Tentou-se ainda estabelecer uma relação funcional entre a distância ao ponto de amostragem e a actividade verificada nesse ponto, através de uma análise de regressão. Consideramos a distância x (m) a variável independente e a actividade em U (Bq/L) ou em Ra (Bq/L), a variável dependente. Os resultados são apresentados por

ordem crescente da distância do ponto de água amostrado à fronteira da BV, sendo este um dado de entrada para a simulação do modelo.

Nas figuras seguintes estão representadas as curvas que melhor se ajustam quer aos dados analíticos, em função da distância entre o ponto de amostragem e a BV; quer aos valores obtidos no modelo, também em função da mesma distância, mas referente aos períodos de tempo estipulados inicialmente: 10, 20, 30 e 50 anos. Os pontos de amostragem a montante da BV não foram considerados.



Figura 4-32: Linhas de tendência para os dados analíticos (U e Ra) em função da distância.





No primeiro gráfico da Figura 4-32 não foi possível ajustar uma linha de tendência dada a variabilidade dos valores da concentração de urânio nestes pontos. O mesmo se poderia aplicar ao primeiro gráfico da Figura 4-35 e da Figura 4-36 dada a fraca correlação obtida ($R^2 = 0,4961 e R^2 = 0,277$, respectivamente).



Figura 4-34: Linhas de tendência para os resultados do modelo (U e Ra) em função da distância, para o horizonte temporal de 20 anos.



Figura 4-35: Linhas de tendência para os resultados do modelo (U e Ra) em função da distância, para o horizonte temporal de 30 anos.



Figura 4-36: Linhas de tendência para os resultados do modelo (U e Ra) em função da distância para o horizonte temporal de 50 anos.

Determinou-se ainda o intervalo de confiança da curva ajustada para cada caso: através da curva ajustada estimou-se o valor médio de y (actividade média em urânio ou em rádio) para diferentes valores de x (distância entre o ponto de amostragem e a fronteira da BV).

Apenas apresentamos o caso em que se conseguiu o melhor ajuste da curva para ambos os RDN, ou seja, os resultados para o tempo de simulação de 20 anos. As figuras seguintes representam os resultados obtidos para o urânio e para o rádio.



Figura 4-37: Intervalo de confiança para a recta ajustada aos resultados do modelo (U) para o tempo de simulação de 20 anos.



Figura 4-38: Intervalo de confiança para a recta ajustada aos resultados do modelo (Ra) para o tempo de simulação de 20 anos.

Determinou-se ainda o intervalo de confiança para a média de cada conjunto de dados, ou seja, o intervalo centrado na média e cuja amplitude do intervalo é $\mu \pm o$ valor do limite de confiança. Para um nível de confiança 90 %, a média de cada grupo de dados encontra-se compreendida entre os seguintes intervalos:

Parâmetro	Média, µ		
Х	382,75	±	118,54
U	1,459	±	1,244
Ra	0,368	±	0,202
U (10)	0,506	±	0,024
Ra (10)	0,240	±	0,173
U (20)	1,038	±	0,069
Ra (20)	0,519	±	0,387
U (30)	1,500	±	0,179
Ra (30)	0,873	±	0,607
U (50)	2,475	±	0,172
Ra (50)	1,296	±	0,974

Tabela 4-32: Intervalo de confiança centrado na média dos valores de cada grupo de dados.

O intervalo de variação da média dos valores analíticos está compreendido entre 0,215 e 2,70 Bq/L para o urânio e entre 0,165 e 0,570 para o rádio. No caso do urânio, os resultados médios de todos os casos de simulação estão dentro do intervalo limitado por 0,215 e 2,70. No caso do rádio excluem-se do intervalo compreendido entre 0,165 e 0,570 os resultados médios da exploração para os horizontes temporais de 30 e 50 anos.

Por último, tentou-se comparar os dados analíticos ou actuais (apenas dos pontos de amostragem situados a jusante da BV: P_{22} , F_4 , P_{35} , F_6 , F_7 , F_8 , F_5 e P_{32}) com os dados previstos no modelo de acordo com o tempo de simulação respectivo. A comparação pode ser visualizada na Figura 4-39 e na Figura 4-40 para o urânio e para o rádio, respectivamente.



Figura 4-39: Comparação entre os dados analíticos e os do modelo referentes ao U.



Figura 4-40: Comparação entre os dados analíticos e os do modelo referente ao ²²⁶Ra.

Também neste caso não se verifica uma correspondência entre os dados analíticos e os dados do modelo para a concentração em urânio, mas para o rádio, mais uma vez, há uma correspondência nítida entre os valores analíticos e os valores do modelo resultantes da simulação para o período de 20 anos. Se compararmos a média dos valores analíticos com a média dos resultados do modelo referente a cada caso (10, 20, 30 e 50 anos), verifica-se a mesma correspondência para o rádio (20

anos) e para o urânio uma correspondência perfeita com o caso de exploração para o período de tempo de 30 anos. Isto permite concluir que os resultados da simulação efectuada ajustam-se aos dados analíticos se considerarmos os valores médios de cada grupo de dados, para um tempo de simulação entre 20 e 30 anos⁷.

Tabela 4-33: Comparação entre a média dos dados analíticos e média de cada caso de exploração (U e Ra em Bq/L).

ID	U(0)	Ra(0)	U(10)	Ra(10)	U(20)	Ra(20)	U(30)	Ra(30)	U(50)	Ra(50)
P ₂₂	1,35	0,85	0,6	0,9	1,3	2	2	3	3	5
F_4	4,3	0,86	0,5	0,4	1,1	0,9	1,7	1,4	2	2,3
P ₃₅	5,35	0,6	0,5	0,3	1	0,6	0,9	1,6	2,7	1,5
F_6	0,04	0,091	0,5	0,09	1	0,18	1,5	0,26	2,5	0,4
F ₇	0,21	0,14	0,5	0,07	1	0,15	1,5	0,22	2,5	0,38
F ₈	0,19	0,13	0,5	0,06	1	0,12	1,5	0,2	2,5	0,3
F ₅	0,22	0,24	0,5	0,06	1	0,12	1,5	0,18	2,3	0,3
P ₃₂	0,01	0,029	0,45	0,04	0,9	0,08	1,4	0,12	2,3	0,19
Média	<u>1,5</u>	<u>0,4</u>	0,5	0,2	1,0	<u>0,5</u>	<u>1,5</u>	0,9	2,5	1,3

4.6.4.2 Dois grupos de pontos de água contaminados (Poços; Furos)

Consideraram-se dois grupos individualizados para os pontos de água contaminados, poços e furos, independentemente da sua localização a montante ou a jusante da BV. Os resultados analíticos encontram-se representados na Tabela 4-34 e na Tabela 4-35, respectivamente.

ID	U (ppb)	U (ppb)	μ (Bq/L)	Ra (Bq/L)	Ra (Bq/L)	μ (Bq/L)
Poços	1. ^a Camp.	2. ^a Camp.		1. ^a Camp.	2. ^a Camp.	
P ₁₇	57	143,5		0,255	0,466	
P ₂₁	51	134		0,41	0,37	
P ₂₂	89	18		0,98	0,72	
P ₃₂	0,3	0,4		0,03	0,03	
P ₃₅	212	216		0,83	0,37	
μ (ppb)	81,9	102,4	— —	0,50	0,40	
μ (Bq/L)			2,3			0,45

Tabela 4-34: Média anual (μ) da actividade para cada poço amostrado.

⁷ Exclui-se o tempo de transporte que levou à presença dos RDN na água subterrânea.

ID	U (ppb)	U (ppb)	μ (Bq/L)	Ra (Bq/L)	Ra (Bq/L)	μ (Bq/L)
Furos	1. ^a Camp.	2. ^a Camp.		1. ^a Camp.	2. ^a Camp.	
F_4	199	146		0,856	0,862	
F_5	14	3,7		0,209	0,265	
F ₆	2,2	1,3		0,115	0,07	
F ₇	12	4,7		0,119	0,166	
F ₈	10	5,5		0,175	0,087	
F ₉	11	8,3		0,429	0,343	
μ	41,4	28,3		0,32	0,30	
μ (Bq/L)			0,87			0,31

Tabela 4-35: Média anual (μ) da actividade para cada furo amostrado.

Considerou-se a distância média dos pontos de amostragem de cada grupo e usou-se este valor na exploração do modelo, em função do período de tempo necessário para obter resultados semelhantes aos resultados médios analíticos.

Tabela 4-36: Distância média dos poços e furos contaminados referente à fronteira da BV.

Poços	(m)	Furos	(m)
P ₁₇	278	F ₄	167
P ₂₁	167	F_5	533
P ₂₂	44	F_6	467
P ₃₂	600	F ₇	489
P ₃₅	244	F ₈	522
		F ₉	44
Média	266,6	Média	370,33

Tabela 4-37: Exploração do modelo em função do período de tempo necessário para obter resultados equivalentes aos das análises radiológicas.

Poços	U	Tempo (anos)	Ra	Tempo (anos)
Média anual (Bq/L)	2,3	44	0,45	12
Furos				
Média anual (Bq/L)	0,87	17	0,31	19

4.6.4.3 Um só grupo de pontos de água contaminados (Poços + Furos).

A exploração do modelo foi feita considerando um só grupo de pontos de amostragem contaminados (poços e furos). Como resultado obtemos um ponto médio de amostragem cuja distância à fronteira da BV é o resultado da média da distância de

todos os pontos de amostragem considerados nesta exploração. A respectiva actividade deste ponto é a média da actividade entre os poços e furos contaminados. A distância média é cerca de 320 m e a concentração média em rádio e em urânio é 0,38 e 1,6 Bq/L, respectivamente, de acordo com a representação na Tabela 4-38.

Tabela 4-38: Média anual da actividade de todos c	os pontos de água contaminados.
---	---------------------------------

ID	U	(ppb)	μ (Bq/L)	Ra	(Bq/L)	μ (Bq/L)
	1. ^a Camp.	2. ^a Camp.		1. ^a Camp.	2. ^a Camp.	
Poços	81,9	102,4	2,3	0,50	0,40	0,45
Furos	41,4	28,3	0,87	0,32	0,30	0,31
Média			1,6			0,38

O resultado da exploração do modelo, em função do período de tempo a que correspondem valores semelhantes aos valores das análises radiológicas (valores analíticos ou valores actuais), encontra-se representado na Tabela 4-39.

Tabela 4-39: Exploração do modelo em função do período de tempo necessário para obter os valores das análises radiológicas.

Poços e Furos	U	Tempo (anos)	Ra	Tempo (anos)
Média anual (Bq/L)	1,6	30	0,38	20

4.6.4.4 Pontos de água contaminados a jusante da BV (Poços + Furos)

A exploração do modelo foi feita considerando um só grupo de pontos de amostragem contaminados (poços e furos) mas só os que se situam a jusante da BV, (P₃₂, P₃₅, F₄, F₅, F₆, F₇, F₈). A distância média entre os pontos de água contaminados localizados a jusante da BV e a sua fronteira é aproximadamente 430 m.

Tabela 4-40: Exploração do modelo para o período de tempo a que corresponde os valores médios das análises radiológicas para os pontos de água contaminados a jusante da BV.

ID	U (Bq/L)	Tempo (anos)	Ra (Bq/L)	Tempo (anos)
Poços	2,7		0,31	
Furos	0,88		0,31	
Média	1,79	38	0,31	30

Nas figuras seguintes estão representadas as linhas de tendência para estes pontos de amostragem situados a jusante da escombreira da BV.



Figura 4-41: Linhas de tendência para os dados analíticos dos pontos de amostragem a jusante da BV, em função da distância.

4.6.5 A exploração do modelo para os radionuclídeos: Ra, Pb, Th e Utotal

Para o caso em que se considerou o conjunto de todos os pontos de amostragem contaminados (poços + furos) e cujos valores médios encontram-se representados na Tabela 4-38, a Tabela 4-41 sintetiza os resultados obtidos no que se refere à concentração na água do poço (C_{wp}) para os seguintes RDN: U_{total} (U_{234} + U_{238}), Ra, Th e Pb, e ao transporte cumulativo destes RDN até ao poço (Q_p).

Consideramos que estamos em presença de um hipotético poço localizado a cerca de 400 m da fronteira da BV, com actividade média anual em Ra igual a 1,6 Bq/L e actividade média anual em U igual a 0,38 Bq/L. Este hipotético poço constituiu o ponto de exposição. Considerou-se ainda a presença de outros RDN na água do poço, em particular o tório e chumbo.

t (anos)		C _{wp} (Bq/L)				
	Ra	Pb	Th	U _{total}		
0	0	0	0	0		
1	0,01	2,40 x 10 ⁻³⁵	1,80 x 10 ⁻¹⁴	0,05		
10	0,12	2,42 x 10 ⁻³⁴	1,83 x 10 ⁻¹³	0,50		
100	1,23	2,42 x 10 ⁻³³	1,83 x 10 ⁻¹²	5,04		
300	3,69	0,73 x 10 ⁻³³	5,49 x 10 ⁻¹²	15,11		

Tabela 4-41: Actividade na água do poço em função do tempo de simulação (Bq/L).

Os RDN tório e chumbo, geralmente, não são transportados a distâncias significativas devido à sua tendência reactiva natural. O ²³⁰Th tende a reagir

lentamente *in-situ* com a água, oxigénio e outros compostos, mas não é dissolvido rapidamente pela maioria dos ácidos, à excepção do cloreto de hidrogénio. No entanto, em soluções ácidas adequadas, mais de 50 % do ²³⁰Th presente no minério pode ser dissolvido. Os compostos insolúveis do ²³⁰Th incluem os hidróxidos, fluoretos e fosfatos. Os compostos solúveis incluem os cloretos, nitratos e sulfatos.

O chumbo tem uma elevada tendência para ser adsorvido pelos sedimentos do aquífero o que impede o seu transporte a grandes distâncias. Desta forma, considerou-se que os RDN mais importantes no transporte hidrológico são o U (²³⁸U e ²³⁴U) e o Ra. Neste caso de exploração apresentam-se os resultados para os 4 RDN estudados apesar dos parâmetros medidos nos pontos de amostragem apenas permitirem a comparação com a concentração na água do poço para o U e para o Ra.



Figura 4-42: Actividade na água do poço para o 226 Ra, U_{total}, 210 Pb e 230 Th (Bq/L).



Figura 4-43: Transporte cumulativo até ao poço: ²²⁶Ra, U_{total}, ²¹⁰Pb e ²³⁰Th (Bq/ano).

Para avaliar o grau de contaminação nos diversos pontos de água amostrados, compararam-se os valores obtidos nas diversas amostras com os valores legislados. Como se partiu do pressuposto que a água proveniente dos poços pode vir a ser utilizada para rega ou como água de ingestão, usaram-se para comparação os limites admitidos nos E.U.A. e no Canadá para estes RDN, em águas de rega (Exmin, 2003).

Tabela 4-42: Valores máximos admitidos (VMA) em águas de rega (Exmin, 2003).

Elemento	VMA
U (ppb)	20 – 100
U (Bq/L)	0,505 - 2,523
Ra (Bq/L)	0,55

Relativamente à média anual das duas campanhas de amostragem, os pontos de amostragem P_{22} e P_{35} ultrapassam o valor máximo admitido (VMA) para o Ra (Bq/L) e P_{17} (limite superior), P_{21} (próximo do limite superior) P_{22} e P_{35} ultrapassam o limite superior de VMA para o U (Bq/L) (excede em muito o limite superior). No caso

dos furos, o ponto de amostragem F₄ ultrapassa o VMA para ambas as espécies radiológicas.

Os resultados analíticos para o urânio e para o rádio evidenciam valores semelhantes aos obtidos no modelo. O valor médio da concentração de rádio na água do poço é de 0,4 Bq/L e para o urânio total igual a 1,6 Bq/L. Estes valores são obtidos no modelo no período referente aos primeiros 30 anos da simulação, após a contaminação da água subterrânea. O valor máximo admitido para cada um destes RDN na água subterrânea, segundo a *Environmental Protection Agency (EPA)*, e o valor máximo obtido nos resultados analíticos encontram-se na Tabela 4-43. Para a água de ingestão, o nível máximo de urânio (Maximum Contaminant Level) estabelecido pela EPA é igual a 30 µg/L ou seja 0,76 Bq/L.

Tabela 4-43: Valores médios, máximos e limites da EPA para a actividade de ²²⁶Ra e de U (total) nas águas subterrâneas.

RDN	U (Bq/L)	Ra (Bq/L)
Médio	1,6	0,4
Máximo	4,3	0,86
Limite EPA (WISE, 2004)	1,11	0,55

Verifica-se que em ambos os casos, os valores máximos obtidos para cada RDN são superiores ao limite máximo admitido em águas subterrâneas para locais semelhantes ao local em estudo ou seja, explorações de urânio desactivadas (WISE, 2004). EXMIN refere que os resultados analíticos apresentaram uma elevada variabilidade sazonal (até cerca de 30 %) para estes RDN com os valores mais elevados a verificarem-se em geral, nas amostras colectadas na campanha de Novembro (Exmin, 2003).

O ponto de amostragem P₂₁ apesar de se situar a montante da BV, foi considerado como contaminado por influência da actividade mineira uma vez que apresenta um elevado valor médio de urânio (2,3 Bq/L). Dada a sua localização não é provável que a sua contaminação tenha origem directamente nos materiais da escombreira da BV. Da mesma forma, o ponto de amostragem F₉ está localizado a montante da BV e também foi incluído no grupo das amostras contaminadas pela actividade mineira.

Apesar de algumas amostras estarem incluídas no grupo das amostras não afectadas pela actividade mineira, em alguns casos, a concentração de RDN ultrapassa os valores máximos definidos na legislação para águas de rega (Exmin, 2003). No entanto, não havendo influência da actividade mineira, uma das justificações para estes valores é baseada na existência de concentrações anómalas que podem ser de origem antropogénica ou de carácter geológico sob a forma de anomalias naturais.

4.6.6 Discussão dos resultados

Foram feitas algumas simulações relativamente aos RDN em estudo para verificar a sensibilidade do modelo face à variação de alguns dos parâmetros, em particular. Os valores de entrada adoptados bem como a discussão dos resultados são apresentados a seguir.

4.6.6.1 A análise dos resultados

A concentração inicial de ²¹⁰Pb é de 16 200 Bq/kg, a solubilidade do Pb foi estipulada em 17 mg/L, equivalente à solubilidade do PbO. O K_d adoptado foi de 100 ml/g. A simulação foi feita para o horizonte temporal de 300 anos. O tempo de simulação é adicionado ao tempo de transporte uma vez que só haverá contaminação da água subterrânea quando o tempo da simulação exceder o tempo de transporte na vertical. Os resultados obtidos encontram-se representados na Figura 4-44.



Figura 4-44: Exploração do modelo para o ²¹⁰Pb com K_d = 100 mg/l e K_d = 10 ml/g.

Para o horizonte temporal considerado, o Pb não migrou o suficiente para chegar ao ponto de exposição. Foi feita outra simulação com todos os parâmetros constantes, à excepção da concentração inicial que se considerou ser o dobro do caso anterior mas sem grande diferença no resultado. Para $K_d = 10$ ml/g obtiveram-se valores entre 10^{-5} e 10^{-2} Bq/L para a concentração na água do poço, dentro do

horizonte temporal considerado, no entanto o valor de $K_d = 10$ ml/g é um valor irreal, ainda que apareçam documentados na bibliografia valores de $K_d = 12$ (pH = 4) e $K_d = 60$ (pH = 6) para este RDN (Yu, 2001).

A concentração inicial (C_i) para o ²³⁸U e para o ²³⁴U é igual a 2 300 Bq/kg, o valor considerado para a solubilidade é de 500 mg/L e o K_d = 46,6 ml/g. Foi feita outra simulação alterando apenas a concentração inicial que se considerou ser o dobro do caso anterior. Adoptou-se o mesmo tempo de exploração de 300 anos.





Verifica-se que o urânio está presente no ponto de exposição e que ao fim de 50 anos a concentração no ponto de exposição é cerca de 2 Bq/L. No caso da simulação em que se considerou $C_i = 4600$ Bq/kg, verificou-se que para o mesmo período de tempo, a concentração aumenta até 4 Bq/L. Foi feita mais uma simulação para avaliar o efeito de um K_d mais baixo na previsão do transporte de U através da zona insaturada, K_d = 25 ml/g com a mesma concentração inicial de 2300 Bq/kg. Obteve-se um resultado semelhante ao caso anterior.



Figura 4-46: Exploração do modelo para o U_{total} com K_d = 25 ml/g e C_i = 2300 Bq/kg.

A concentração inicial de ²²⁶Ra é igual a 12 900 Bq/kg, a solubilidade para este RDN foi estipulada em 36 mg/L e $K_d = 70~000$ ml/g, calculado de acordo com o quociente entre a concentração entre a fase sólida e a fase líquida da BV. Para este valor de K_d , a concentração de rádio no ponto de exposição é nula.

Na bibliografia existem referências a diferentes valores de K_d para o rádio: 36 000 ml/g (Sheppard, 1990); 500 ml/g (NUREG, 1990) e 70 ml/g (Yu, 2001). Aos diferentes tipos de materiais sólidos também correspondem diferentes K_d para o mesmo RDN (Sheppard, 1990): areias – 500 ml/g; siltos – 36 000 ml/g; argila - 9 100 e material orgânico – 2 400 ml/g. Em ambientes ácidos, nomeadamente para 2 < pH < 7, o K_d varia entre 0 e 100 ml/g (Yu, 2001). O valor de K_d sobe para 2 400 ml/g a pH = 7,7. Foram feitas algumas simulações com os seguintes valores do coeficiente de distribuição: K_d = 70; K_d = 100; K_d = 500; K_d = 700; K_d = 2 400; K_d = 9 100 e K_d = 36 000 ml/g.



Figura 4-47: Exploração do modelo para o 226 Ra com K_d = 70 ml/g e Kd = 100 ml/g.



Figura 4-48: Exploração do modelo para o 226 Ra com K_d = 500 ml/g e K_d = 700 ml/g.

Para os valores de $K_d = 2400$; 9 100 e 36 000 ml/g, a concentração no ponto de exposição é nula. Fez-se uma simulação adicional mantendo K_d constante e variando a concentração inicial. Para o K_d estimado e igual a 70 000 ml/g para as três zonas definidas: zona contaminada, zona insaturada e zona saturada, verifica-se que qualquer aumento da concentração inicial, mesmo para valores da concentração na fonte de contaminação exageradamente elevados, da ordem de 1,29 x 10^{12} Bq/kg, não se verifica a presença deste RDN no ponto de exposição. No entanto, se variarmos apenas o K_d para a zona saturada (aquífero) e mantendo o $K_d = 70000$ ml/g para as restantes zonas, verifica-se que há, de facto, a presença de rádio no ponto de exposição:

- K_d (aquifero) = 7 000 ml/g $C_{wp} = 1 \times 10^{-23}$ Bq/L (≈ 0);
- K_d (aquífero) = 700 ml/g C_{wp} = 1 x 10⁻⁶ Bq/L e
- K_d (aquífero) = 70 ml/g C_{wp} = 1 x 10⁻² Bq/L.

Aumentando a concentração inicial cerca de 10 vezes, a concentração no ponto de exposição aumenta uma ordem de grandeza. Isto permite-nos concluir que o parâmetro crítico é o K_d referente à zona saturada ou ao aquífero, pois é este parâmetro que mais influência tem na estimativa da concentração de RDN no ponto de exposição.

Na Figura 4-49 e na Figura 4-50 estão representados os resultados da simulação com $K_d = 70\ 000\ ml/g$ para a zona contaminada e para a zona insaturada, variando este parâmetro para a zona saturada de 7000; 700 e 70 ml/g.



Figura 4-49: Exploração do modelo para o 226 Ra com K_d (zona saturada) = 7 000 e 700 ml/g.



Figura 4-50: Exploração do modelo para o 226 Ra com K_d (zona saturada) = 70 ml/g.

A concentração inicial de ²³⁰Th é de 9 800 Bq/kg, a solubilidade é igual a 650 mg/L e o K_d = 50 000 ml/g. O tório encontra-se presente no ponto de exposição em quantidades muito pequenas, da ordem de 10^{-6} Bq/L. Para uma concentração de cerca do dobro da concentração inicial, e para todos os parâmetros constantes, o aumento da concentração no ponto de exposição não é significativo (Figura 4-51).



Figura 4-51: Exploração do modelo para o 230 Th variando C_i = 9800 Bq/kg e 19 600 Bq/kg.

Os valores de K_d descritos na bibliografia para o tório podem variar em várias ordens de grandeza e por este motivo a simulação foi feita para C_i = 9800 Bq/kg com para K_d = 3 200 ml/g e K_d = 270 ml/g, valores característicos de materiais silto-argilosos semelhantes aos materiais que constituem a escombreira da barragem velha (NUREG, 1990). Os resultados encontram-se representados na Figura 4-52.



Figura 4-52: Exploração do modelo para o 230 Th variando o K_d (K_d = 3 200 e 270 ml/g).

4.6.6.2 Análise de sensibilidade dos parâmetros para o rádio e para o urânio

Foram ainda feitas algumas simulações para o rádio e para o urânio variando alguns parâmetros de entrada. Estas simulações constituíram uma tentativa de avaliar a sensibilidade dos parâmetros e ao mesmo tempo determinar que combinação dos mesmos produz resultados consistentes com os observados nos pontos de água amostrados. Os parâmetros de entrada como o K_d, o débito de infiltração (através da variação da escorrência, C_r e C_e), a porosidade efectiva, a densidade do material (e a porosidade total, consequentemente) e a condutividade hidráulica, foram alterados com algumas ordens de magnitude. No caso do urânio, o K_d pode variar entre 10 e 4 400 ml/g em ambiente com pH inferior a 7 e no caso do rádio, o K_d pode variar entre 70 e 36 000 ml/g. Estes são os valores de referência que constam na bibliografia mas como os valores estimados para o local em estudo são superiores, adoptamos os valores estimados como limite máximo para este parâmetro.

Parâmetros				
Porosidade efectiva do material da escombreira, (-)	$\epsilon_{e,\;esc}$	0,15	0,30	0,45
Porosidade total do material da escombreira, (-)	$\epsilon_{\text{t, esc}}$	0,37	0,25	0,55
Densidade do material da escombreira, (g/cm ³)	ρ_{esc}	1,67	1,39	2
Densidade do material da zona insaturada, (-)	ρ_{ins}	2,52	2,1	1,75
Condutividade hidráulica, (m/ano)	K_{h}	23,6	118	590
Coeficiente de escorrência, (-)	Cr	0,21	0,36	
Coeficiente de evapotranspiração, (-)	C _e	0,62	0,70	

ID	Eesc.	K _d	Conc.	Conc. máx.
²²⁶ Ra	(-)	(ml/g)	(Bq/L)	(Bq/L)
	0,15	7	6,80	82
		70	0,20	2,40
		700	2,30 x 10 ⁻⁶	2,73 x 10 ⁻⁵
		7 000	1,98 x 10 ⁻²⁴	2,38 x 10 ⁻²³
		70 000	0	0
	0,30	7	6,83	82
		70	0,199	2,38
		700	2,30 x 10 ⁻⁶	2,77 x 10 ⁻⁵
		7 000	1,98 x 10 ⁻²³	2,38 x 10 ⁻²³
		70 000	0	0
	0,45	7	6,83	82
		70	0,199	2,38
		700	2,30 x 10 ⁻⁶	2,73 x 10 ⁻⁵
		7 000	1,98 x 10 ⁻²⁴	2,38 x 10 ⁻²³
		70 000	0	0
U _{total}				
	0,15	46,6	0,4356	5,22
		466	0,0427	0,5568
		4 660	0,0152	0,0418
	0,3	46,6	0,4356	5,22
		466	0,0427	0,5568
		4 660	0,0152	0,0418
	0,45	46,6	0,4356	5,22
		466	0,0427	0,5568
		4 660	0,0152	0,0418

Tabela 4-45: Exploração do modelo variando o K_d e $\epsilon_{e,esc}.$

Como para K_d = 70 000 ml/g a concentração em rádio no ponto de exposição é sempre nula, adoptamos um K_d para a zona saturada (aquífero) diferente do K_d das restantes zonas consideradas. A simulação foi feita para K_d = 7 ml/g e K_d = 70 ml/g, variando a densidade do material da escombreira (ρ_{esc}), conforme a representação na Tabela 4-46.

ID	Eesc.	ρ	K _d	Conc.	Conc. máx.
²²⁶ Ra	(-)	(g/cm ³)	(ml/g)	(Bq/L)	(Bq/L)
	0,37	1,67	7	6,83	82
			70	0,1991	2,38
			700	2,30 x 10 ⁻⁷	2,77 x 10 ⁻⁵
			7 000	1,98 x 10 ⁻²⁴	2,378 x 10 ⁻²³
$K_d = 7 ml/g$			70 000	8,00 x 10 ⁻⁴	9,80 x 10 ⁻³
$K_d = 70 \text{ ml/g}$			70 000	2,00 x 10 ⁻⁴	2,40 x 10 ⁻³
	0,25	1,39	7	6,87	82,48
			70	0,1992	2,39
			700	2,28 x 10 ⁻⁶	2,773 x 10 ⁻⁵
			7000	1,98 x 10 ⁻²⁴	2,378 x 10 ⁻²³
$K_d = 7 ml/g$			70000	8,20 x 10 ⁻³	9,81 x 10 ⁻²
$K_d = 70 \text{ ml/g}$			70000	2,00 x 10 ⁻³	2,40 x 10 ⁻²
	0,55	2	7	6,78	81,37
			70	0,1989	2,38
			700	2,30 x 10 ⁻⁷	2,77 x 10 ⁻⁵
			7 000	1,98 x 10 ⁻²	0,2378
$K_d = 7 ml/g$			70 000	8,20 x 10 ⁻³	9,81 x 10 ⁻²
$K_d = 70 \text{ ml/g}$			70 000	2,00 x 10 ⁻³	2,40 x 10 ⁻²
U _{total}					
	0,37	1,67	46,6	0,4356	5,22
			466	0,0427	0,5568
			4 660	0,0152	0,0418
	0,25	1,39	46,6	0,4334	5,2
		<u></u>	466	0,0403	0,48
			4 660	0,0026	0,0314
	0,55	2	46,6	0,43	5,19
			466	0,04	0,4740
			4 660	0,0026	0,0314

Tabela 4-46: Exploração do modelo variando K_d e ρ_{esc} .

As tabelas seguintes representam os casos de exploração: $K_d = 7 \text{ ml/g} e K_d = 70 \text{ ml/g} e variação da densidade da zona insaturada (<math>\rho_{ins}$) conforme a representação na Tabela 4-47; $K_d = 7 \text{ ml/g} e K_d = 70 \text{ ml/g} e variação dos coeficientes de escorrência e de evapotranspiração (<math>C_r e C_e$) conforme a representação na Tabela 4-48 e $K_d = 7 \text{ ml/g} e K_d = 70 \text{ ml/g} e variação da condutividade hidráulica (<math>K_h$) conforme a representação na Tabela 4-49.

ID	ρ ins.	K _d	Conc.	Conc. máx.
²²⁶ Ra	(g/cm ³)	(ml/g)	(Bq/L)	(Bq/L)
	2,52	70	0,1991	2,38
$K_d = 7 ml/g$		70 000	0,0008	0,0098
$K_d = 70 \text{ ml/g}$		70 000	0,0002	0,0024
	2,1	70	0,1991	2,38
$K_d = 7 ml/g$		70 000	0,0008	0,0098
$K_d = 70 \text{ ml/g}$		70 000	0,0002	0,0024
	1,75	70	0,1991	2,38
$K_d = 7 ml/g$		70 000	0,0002	0,0098
$K_d = 70 \text{ ml/g}$		70 000	0,0008	0,0024
U _{total}				
	2,52	46,6	0,4330	5,22
		466	0,4030	0,4844
		4 660	0,0026	0,0314
	2,1	46,6	0,4330	5,22
		466	0,4030	0,4844
		4 660	0,0026	0,0314
	1,75	46,6	0,4330	5,22
		466	0,4030	0,4844
		4 660	0,0026	0,0314

Tabela 4-47: Exploração do modelo variando o K_{d} e $\rho_{\text{ins}}.$

Tabela 4-48: Exploração	o do modelo	variando o K _d e os	coeficientes	(C _r) (e (C _e).
				(-1)	- (

ID	C _r e C _e	K _d	Conc.	Conc. máx.
²²⁶ Ra	(-)	(ml/g)	(Bq/L)	(Bq/L)
	0,21 e 0,62	70	0,1350	1,6195
$K_d = 7 ml/g$		70 000	0,0006	0,0067
$K_d = 70 \text{ ml/g}$		70 000	0,0001	0,0016
	0,36 e 0,70	70	0,0552	0,6625
$K_d = 7 ml/g$		70 000	0,0002	0,0027
$K_d = 70 \text{ ml/g}$		70 000	0,0554	0,6646
U _{total}				
	0,21 e 0,62	46,6	0,2910	3,49
		466	0,0250	0,2998
		4 660	0,0006	0,0070
	0,36 e 0,70	46,6	0,119	1,4282
		466	0,0102	0,1226
		4 660	0,0002	0,0028

ID	K _h	K _d	Conc.	Conc. máx.
²²⁶ Ra	(m/ano)	(ml/g)	(Bq/L)	(Bq/L)
	590	70	0,1350	0,1619
$K_d = 7 ml/g$		70 000	0,0006	0,0067
$K_d = 70 \text{ ml/g}$		70 000	0,0001	0,0016
	118	70	0,6748	8,0970
$K_d = 7 ml/g$		70 000	0,0028	0,0333
$K_d = 70 \text{ ml/g}$		70 000	0,0007	0,0081
	23,6	70	3,3740	40,5
$K_d = 7 ml/g$		70 000	0,0139	0,1663
$K_d = 70 \text{ ml/g}$		70 000	0,0034	0,0406
U _{total}				
	590	46,6	0,28	3,5
		466	0,0298	0,3568
		4 660	0,003	0,0356
	118	46,6	1,44	17,46
		466	0,148	1,78
		4 660	0,0148	0,1784
	23,6	46,6	7,4	88
		466	0,74	8,92
		4 660	0,0744	0,89

Tabela 4-49: Exploração do modelo variando o K_d e a condutividade hidráulica, K_h.

Não há alteração nos resultados variando a porosidade efectiva ou a densidade do material da escombreira: o modelo mostra assim pouca sensibilidade à variação da porosidade efectiva, à variação da densidade, quer do material da escombreira quer do material da zona insaturada, e à variação da porosidade total do material da escombreira. Apresenta, no entanto, alguma sensibilidade aos coeficientes de escorrência e de evapotranspiração e à condutividade hidráulica. O parâmetro K_d é o parâmetro mais sensível e influencia bastante os resultados, em particular o K_d da zona saturada.

A simulação no caso do rádio com $K_d = 70$ ml/g origina valores muito próximos das concentrações observadas, no entanto, este valor é cerca de 1000 vezes inferior ao estimado para o local: $K_d = 70\ 000\ ml/g$ (Exmin, 2003). A exploração do modelo com este valor, nas simulações efectuadas não gera as concentrações em rádio na água subterrânea verificadas nas análises radiológicas. Por este motivo, o valor de K_d foi alterado para um valor sucessivamente inferior para determinar que valores

poderão originar a presença de rádio na água subterrânea dentro de um período de tempo razoável.

Com o valor de K_d = 70 ml/g, o modelo indica que dentro de 20 a 30 anos, verifica-se a presença de rádio no ponto de exposição, no entanto, baixos valores de K_d para o rádio nestes materiais são irreais. O K_d para a zona da escombreira foi determinado mediante os dados disponíveis e adoptado para todas as zonas, o que nem sempre se verifica uma vez que o K_d é específico do tipo de material. Um K_d baixo pode representar um determinado tipo de material mais favorável para a migração dos RDN e justificar a concentração deste RDN na água subterrânea, pelo menos em parte. Assim, mantemos o valor de K_d calculado para a zona da escombreira e para a zona insaturada e adoptamos um K_d mais baixo para a zona saturada. Os valores obtidos para a concentração na água do poço foram os seguintes: C_{wp} = 1,5 x 10⁻⁸ (K_d aquífero = 700); C_{wp} = 1,0 x 10⁻⁴ (K_d aquífero = 70) e C_{wp} = 6,0 x 10⁻⁴ (K_d aquífero = 0). Desta forma, superamos o problema anterior em que para K_d = 70 000 ml/g, independentemente da concentração inicial, a contaminação do ponto de exposição nunca se verificava.

As simulações indicam que as concentrações que eventualmente advêm da lixiviação dão origem a concentrações de rádio muito baixas no ponto de exposição. Isto implica que os contaminantes não migrem para a água subterrânea suficientemente rápido para que se tenha o impacto observado nos pontos de amostragem. Estas ocorrências sugerem que outro mecanismo além da lixiviação, seja responsável pelos contaminantes observados na água subterrânea actualmente, uma vez que a água proveniente dos poços circundantes revelam a presença do rádio, o que deve ter vindo a acontecer provavelmente nos últimos 30 anos (período de vida razoável da deposição dos contaminantes).

O facto de a lixiviação não reproduzir as concentrações observadas pode ser explicado, de uma forma geral, pela presença de materiais (areia, cascalho ou siltos) que permitam uma mais fácil (e rápida) migração dos RDN na zona insaturada do que a que se verifica pela lixiviação. Os valores baixos de K_d e as elevadas condutividades podem ter originado trajectórias favoráveis à entrada da contaminação na água subterrânea. A escombreira é constituída por material de natureza arenosa (2/3 do volume total) e materiais silto-argilosos (1/3 do volume total). Os valores de K_d podem ter uma influência dramática no tempo e na distância percorrida por estes materiais. Outra hipótese é que a água contaminada (proveniente da mina, por exemplo) possa

estar em contacto directo ocasionalmente com a água subterrânea devido à subida do nível freático, ou a infiltração do lixiviado para a água subterrânea ocorrer mais rapidamente devido à infiltração através das fracturas.

Já verificamos que um dos parâmetros críticos na simulação do modelo é o coeficiente de distribuição, K_d, especialmente no caso do rádio, é e com este parâmetro que vamos prosseguir o nosso estudo.

O valor adoptado na exploração, $K_d = 70$ ml/g, foi retirado da bibliografia (Yu, 2001) e reproduz a concentração em rádio que se verifica actualmente nos poços envolventes à escombreira da BV. O valor referido nos estudos efectuados pela EXMIN é bastante superior, $K_d = 70000$ ml/g ou cm³/g, e foi estimado com base na definição de K_d , ou seja, o quociente entre a concentração na fase sólida (actividade em rádio na barragem = 12 900 Bq/kg) e a concentração na fase líquida (actividade no efluente da escombreira da barragem velha, WAE = 0,184 Bq/L). Dados anteriores fornecidos pela ENU, de análises da fracção líquida da escombreira da barragem velha referentes a 1990, referem que a concentração de ²²⁶Ra na fase líquida varia de acordo com os dados da Tabela 4-50.

Amostra	²²⁶ Ra (Bq/L)	K _d (ml/g)
UTS2	16,628	776
UTS3	0,167	77 477
UTS4	0,070	183 499
UTS5	0,259	49 807
UTS6	0,207	62 259
UTS7	0,577	22 349
UTS8	0,385	33 524
UTS12	1,114	11 583
UTS13	0,059	217 905
Média	2,163	73 242

Tabela 4-50: Actividade na fracção líquida da barragem.

O valor médio de K_d é equivalente ao valor referido pela EXMIN (Exmin, 2003). Repetimos a exploração do modelo para o rádio com o valor mais baixo de K_d = 776 ml/g para o horizonte temporal de 300 anos e 1000 anos, respectivamente.


Figura 4-53: Actividade em 226 Ra na água do poço (Bq/L) para K_d = 776 ml/g e horizonte temporal igual a 300 e 1000 anos, respectivamente.



Figura 4-54: Transporte cumulativo de ²²⁶Ra até ao poço (Bq) para K_d = 776 ml/g e horizonte temporal igual a 300 e 1000 anos, respectivamente.

Os valores obtidos para a concentração de rádio na água do poço são bastante inferiores aos obtidos no caso anterior da exploração com $K_d = 70$ ml/g e mesmo para o horizonte temporal de 1000 anos, a actividade em rádio na água do poço é muito pequena como verificamos anteriormente. Se na simulação, $K_d = 70$ 000 ml/g ou cm³/g, a concentração na água do poço é sempre nula. Isto implica que a actividade em rádio na água amostrada da escombreira da BV seja muito baixa relativamente ao expectável tendo em consideração as concentrações observadas nestes mesmos materiais.

A concentração de urânio U (total) apresenta elevadas flutuações podendo ter origem em processos geoquímicos que actuam na escombreira da BV, capazes de remover esta espécie dos suportes mineralógicos onde inicialmente se encontrava, transferindo-a para as águas que percolam os materiais sólidos. No entanto, tal não se verifica para o rádio em que a sua actividade é mais elevada na água da mina do que na escombreira (Exmin, 2003). Alguns estudos laboratoriais de extracção do rádio (ATSDR, 1990) demonstraram que este RDN pode ser lixiviado do resíduo sólido, em particular pelas águas residuais ácidas. Exmin (2003) justifica o comportamento do rádio neste caso em particular com o facto de que, provavelmente, o suporte mineralógico onde se encontra presentemente incorporado o rádio não seja muito favorável à sua mobilização pelas águas ácidas da circulação. Por outro lado, o urânio apresenta uma significativa mobilidade na presença de soluções o que está de acordo com os elevados teores detectados nas amostras de águas da escombreira, sendo o urânio residual susceptível de uma forte lixiviação.

4.7 Conclusões

Relativamente à concepção do modelo, o objectivo do modelo é simular a libertação dos RDN dos resíduos através da lixiviação pela infiltração de água e o seu transporte pela água subterrânea até atingir o ponto de exposição localizado a uma distância definida previamente. Pretende-se avaliar a eventual exposição à água contaminada proveniente de poços existentes na proximidade de uma escombreira de estéreis resultantes da exploração e do tratamento do minério de urânio. O modelo simula ainda o transporte cumulativo de RDN até ao ponto de exposição. A situação ideal no modelo aplica-se a camadas ou estratos geológicos com propriedades constantes, uniformes e horizontais, para que os dados possam ser igualmente atribuídos a todos os estratos.

A avaliação da exposição é o principal objectivo do modelo e não se pretende que este seja um modelo descritivo do transporte dos RDN na zona insaturada e na zona saturada ou na água subterrânea.

As limitações da concepção do modelo resultam da aplicação de uma solução analítica de transporte, limitada pela forma específica das suas condições fronteira o que vai gerar algum erro devido à aproximação das condições fronteira; no entanto, a magnitude do erro vai depender largamente da conformidade entre as condições locais e as condições do modelo teórico. No anexo C é apresentada uma abordagem diferente da usada para o transporte hidrológico.

O tempo necessário para um RDN ser transportado pela água subterrânea depende de muitos parâmetros específicos do solo. Em particular, a água que

transporta os RDN varia com pequenas oscilações das propriedades hidráulicas do meio através do qual ocorre o transporte, e mesmo durante a fase de caracterização da fonte de contaminação, estes dados raramente são conhecidos.

A caracterização da fonte de contaminação, nomeadamente a concentração do contaminante na fase sólida e na fase líquida na escombreira da BV, quantifica a contaminação disponível para ser mobilizada, através do coeficiente de distribuição dos RDN entre a fase sólida e a fase líquida no solo. Este é o parâmetro mais crítico do modelo quer pela sua variabilidade quer pela sua dificuldade de determinação pois muito factores podem influenciar o K_d, incluindo a forma química do RDN, o pH do lixiviado, o tipo de constituintes orgânicos, a presença de material orgânico em solução (pode diminuir o K_d e aumentar o transporte) ou na fase sólida (tende a aumentar o K_d e a diminuir o transporte), o débito de infiltração da água e a presença de outras espécies químicas. Os factores que mais afectam o K_d de um RDN, em particular, são a sua solubilidade e a capacidade de ser adsorvido na fase sólida.

A solubilidade aparente dos RDN também pode aumentar a solubilidade por complexação com espécies orgânicas ou por adsorção pelo material coloidal. As partículas coloidais (0,003 < ϕ < 0,1 mm) podem migrar com a água subterrânea através de solos suficientemente porosos ou fracturados.

A adsorção dos RDN depende da disponibilidade das ligações do solo e da natureza química dos RDN. Com algumas excepções, os elementos que sofrem hidrólise ou que formam hidróxidos insolúveis a pH superior a 4 tendem a ser reactivos. Os elementos destes hidróxidos insolúveis são rapidamente imobilizados ou permanecem ligados à fase sólida dos materiais no solo. Actinídeos no estado de valência 4+, como o tório, tendem a ser reactivos e são fortemente retidos pelos materiais particulados. Os iões dos elementos divalentes como o Ra²⁺ formam compostos solúveis (Ra(OH))₂ em água e tendem a ser mobilizados pela água subterrânea. O rádio quando combinado com o ião sulfato forma um composto com reduzida solubilidade ou mesmo insolúvel; por outro lado se combinado com o ião sulfito forma um composto fortemente solúvel.

O rádio existente na água pode ser rapidamente adsorvido pelos sedimentos, pelo solo e pelos componentes do aquífero. Entre estes potenciais adsorventes do rádio encontram-se os hidróxidos de ferro e o quartzo, a caulinite e a montemorilonite. Os coeficientes de adsorção ou de partição (K_d) de iões inorgânicos como o Ra²⁺ não podem ser previstos *à priori* uma vez que dependem do tipo de adsorvente, do pH da

água (a solubilidade dos sais de rádio aumenta com o pH) e da presença de outros iões em solução. Elementos multivalentes, como o urânio hexavalente, que são geralmente solúveis em águas subterrâneas naturais são também fortemente absorvidos e retidos nestas mesmas águas em condições anaeróbicas. Mais uma vez existe a hipótese do transporte coloidal ocorrer para todas as espécies adsorvidas ou precipitados.

A lixiviação do resíduo depende de diversos factores. Os mais importantes são o débito de infiltração de água e a capacidade de absorção da matriz para reter os constituintes do resíduo. O débito de infiltração de água depende essencialmente do estado de conservação da cobertura, se esta existir.

A infiltração dos RDN até ao aquífero ocorre no caso da BV da Urgeiriça através de um sistema de fracturas estando em presença, na realidade, de dois tipos de aquíferos diferentes: um aquífero fracturado (a água circula através de fracturas ou de pequenas fissuras) cuja formação geológica é um granito apresentando-se com a profundidade decomposto a alterado e pouco alterado, e um aquífero poroso (a água circula através dos poros) cujas formações presentes são areias, de grão médio a fino, materiais silto-argilosos e ainda compostos de granulometria muito fina que aparentam ser precipitados de origem química (Exmin, 2003).

Os resultados das simulações efectuadas são totalmente condicionados pelos dados de entrada, nomeadamente pelo K_d, pela distância do ponto de água à fronteira da barragem e pela variabilidade dos resultados analíticos que serviram de base de comparação aos resultados da simulação.

Relativamente ao primeiro caso de exploração com os dados das análises radiológicas da Urgeiriça (4.6.4.1) consideraram-se os pontos de amostragem situados a oeste e a este da BV. A exploração do modelo foi feita para os horizontes temporais de 10, 20, 30 e 50 anos. Da comparação dos resultados do modelo com os dados analíticos conclui-se que, para o caso do urânio, não há uma correspondência no padrão de variação da concentração com a distância, mas no caso do rádio verifica-se um comportamento bastante semelhante. De salientar que nesta comparação foram considerados os pontos de amostragem P₁₇, P₂₁ e F₉, situados a montante da BV e P₂₂ situado na fronteira, e que teoricamente a sua contaminação não se deve aos materiais da BV.

A melhor correlação da distância (entre a fronteira da BV e o ponto de exposição) com a actividade nos pontos amostrados (situados a jusante de BV) para

ambos os RDN é a que corresponde ao período de 20 anos com um nível de confiança de 99 % (r = 0.834).

O melhor ajuste das linhas de tendência que relacionam a concentração com a distância, referentes aos resultados do modelo, corresponde ao horizonte temporal de 20 anos, com $R^2 = 0,9006$ para um ajuste com uma função logarítmica no caso do urânio e $R^2 = 0,9991$ para um ajuste com uma função exponencial no caso do rádio. A tendência de variação destes parâmetros (concentração *vs* distância) é, em todos os casos de exploração, uma tendência decrescente, sendo mais acentuada no comportamento do rádio do que no do urânio. A distância máxima considerada foi de 600 m e a distância mínima foi de 40 m. A variação dos resultados com a distância encontra-se resumida nas alíneas seguintes:

- i) Dados analíticos:
 - 1,35 a 0,009 para o U (diminuição de 99 %);
 - 0,85 a 0,029 para o Ra (diminuição de <u>97 %</u>);
- ii) Tempo de exploração = 10 anos:
 - 0,6 a 0,45 para o U (diminuição de 25 %);
 - 0,90 a 0,04 para o Ra (diminuição de <u>96 %</u>);
- iii) Tempo de exploração = 20 anos:
 - 1,3 a 0,9 para o U (diminuição de 31 %);
 - 2 a 0,08 para o Ra (diminuição de <u>96 %</u>);
- iv) Tempo de exploração = 30 anos:
 - 2 a 0,9 para o U (diminuição de 55 %);
 - 3 a 0,12 para o Ra (diminuição de <u>96 %);</u>
- v) Tempo de exploração = 50 anos:
 - 3 a 2,3 para o U (diminuição de 23 %);
 - 5 a 0,19 para o Ra (diminuição de <u>96 %</u>);

Como se verifica, a tendência decrescente com a distância é muito mais acentuada no rádio do que no urânio.

No caso de exploração (4.6.4.2) em que se consideraram dois grupos de amostras contaminadas: poços e furos, independentemente da localização a montante ou a jusante, os dados médios analíticos de cada grupo são comparáveis com a média dos resultados obtidos na simulação, tendo presente que o tempo necessário no modelo para obter resultados semelhantes aos valores analíticos é o seguinte:

i) $U_{(poços)} \approx 44$ anos, $Ra_{(poços)} \approx 12$ anos;

ii) $U_{(furos)} \approx 17$ anos e $Ra_{(furos)} \approx 19$ anos.

No caso dos furos, para um horizonte temporal aproximado de 20 anos obtêmse valores semelhantes aos actuais, no entanto, no caso dos poços isto não se verifica. Este caso de exploração não traduz resultados conclusivos, o que pode ser explicado pelo facto de se considerarem os pontos amostrados localizados a montante da BV cuja contaminação não terá origem nos materiais da escombreira da BV.

Relativamente ao caso de exploração (4.6.4.3) em que se considerou a média (distância e actividade) de todos os pontos amostrados (poços + furos), o resultado da simulação demonstra que seria necessário um horizonte temporal de 20 a 30 anos para obter a actividade média verificada neste ponto de exposição, localizado à distância média de 320 m da escombreira da BV.

Relativamente ao caso de exploração (4.6.4.4) em que se considerou os pontos de amostragem relativos aos poços e furos apenas localizados a jusante da BV, os valores obtidos foram ligeiramente superiores (apenas no caso do urânio - 1,79 Bq/L) a que correspondeu um horizonte temporal também superior (38 anos para o urânio e 30 para o rádio), mas justificável também pelo facto da distância ao ponto de exposição (430 m) ser superior à considerada no caso anterior (320 m).

Dos vários casos simulados, o que se apresenta mais próximo da realidade é o caso dos pontos de água localizados a jusante de BV. A contaminação destes pontos de água provavelmente terá origem nos materiais da escombreira da BV como indica a direcção segundo a qual estes RDN estão a ser mobilizados pela acção dos fluxos hidrodinâmicos. Dada a variabilidade dos dados analíticos, optou-se pelos valores médios referentes a estes resultados bem como os valores da distância média da localização do ponto de exposição. Nestas condições, obtiveram-se valores aproximados aos valores analíticos nos primeiros 30 anos através da exploração do modelo (após ocorrer a contaminação da água subterrânea).

Deve ter-se em atenção que os dados analíticos também vão ser influenciados pela distribuição espacial heterogénea da concentração em urânio e em rádio nos materiais da escombreira ao contrário dos resultados do modelo que partem do pressuposto de uma concentração média e igual para todos os pontos da escombreira.

Se relacionarmos a actividade medida nos piezómetros no interior da escombreira, verifica-se que existem duas zonas principais de origem da contaminação, a Norte ($S_9 \in S_{10}$) e Sul ($S_1 \in S_5$). Podemos concluir que a

contaminação de F_4 e P_{22} têm a influência de S_9 e S_{10} . Por outro lado, S_1 e S_5 estarão a contaminar P_{35} . Podemos ainda concluir que S_1 contamina preferencialmente P_{35} em rádio enquanto que S_9 contamina preferencialmente F_4 , P_{32} e P_{35} em urânio. Estes são os pontos de água a jusante da escombreira em que se verificaram os valores mais elevados de actividade o que vem confirmar o que foi dito sobre a direcção dos fluxos das linhas de água: de NW para NE na parte superior e de SW para NE na parte inferior (Exmin, 2003).

Relativamente a todos os casos de exploração, e de uma forma geral, os valores obtidos na simulação do modelo não são muito diferentes entre si: para o urânio variam de 0,87; 1,6 e 1,8 com respectivo horizonte temporal a variar entre 17 e 42 anos, para o rádio variam de 0,31; 0,38 e 0,45 com respectivo horizonte temporal a variar entre 17 e 32 anos. Podemos concluir que dentro destes horizontes temporais, após ocorrer a contaminação da água subterrânea, haverá presença de rádio e de urânio nos poços localizados na proximidade da escombreira da barragem velha.

De uma forma genérica, podemos dizer os pontos de amostragem a montante da fonte de contaminação devem ser desprezados, ainda que estes apresentem evidências de contaminação; bem como os pontos de amostragem isolados ou grupos de pontos de amostragem, devemos antes considerar apenas os valores médios, quer da distância, quer dos valores das respectivas concentrações em rádio e em urânio, como ficou demonstrado pelas resultados das diversas hipóteses de simulação consideradas anteriormente. "A maioria das pessoas são subjectivas para consigo próprias e objectivas para com os demais, por vezes terrivelmente objectivas – mas o importante é ser-se objectivo para consigo próprio e subjectivo para com todos os outros."

Kierkegaard

Capítulo 5

Transporte e transferência no meio aquático

Resumo

Neste capítulo descreve-se o modelo de transporte de radionuclídeos na água superficial. O modelo tem por base a equação genérica de advecção-difusão na forma tridimensional, para o transporte de radionuclídeos nas águas superficiais contemplando diferentes massas de água, nomeadamente: rios, estuários, águas costeiras, lagos e reservatórios. Adoptou-se uma forma simplificada da expressão genérica de advecção-difusão para se obter a solução analítica que corresponde a uma libertação contínua nos diferentes tipos de água superficial, para condições de fluxo em estado estacionário. A partir da solução analítica obtida para cada caso foi possível simular diferentes cenários de exposição tendo como resultado final a estimativa da actividade a uma distância estipulada do ponto de descarga onde se considera localizado o ponto de exposição ou o receptor, bem como a concentração nos sedimentos. Posteriormente, quantifica-se a transferência da actividade dos pontos de exposição para a biota aquática através do factor de bioacumulação nos peixes, uma vez que os radionuclídeos existentes num ambiente aquático também podem ser assimilados pelos organismos vivos: os peixes têm tendência a bioacumular os compostos orgânicos e os metais pesados, sendo portanto, monitores do estado de contaminação do meio aquático. Na exploração do modelo foi feita uma simulação teórica para cada uma das massas de água consideradas e uma simulação para um caso real: a envolvente da área mineira da Urgeiriça que se encontra inserida em pleno vale aluvionar da ribeira da Pantanha. Consideraram-se vários pontos de exposição ao longo da ribeira estrategicamente definidos pelos dados disponíveis. Estimou-se a concentração da actividade em ²²⁶Ra na água superficial nestes pontos, bem como nos sedimentos, e a transferência da actividade para a biota aquática a partir destes pontos de exposição.

5.1 Introdução

Os contaminantes libertados no ambiente podem ser transportados, transferidos ou transformados. O transporte dos contaminantes envolve o movimento pelos processos de advecção, de difusão e de dispersão hidrodinâmica. A transferência dos contaminantes para outro meio ou local de armazenagem (transferência de fases) resulta da actuação de outros mecanismos. Em alguns casos, os contaminantes são transformados em outros produtos que podem ser mais tóxicos do que o composto químico original.

O transporte dos contaminantes pela acção dum fluxo (água) que tanto pode ser livre (escorrência superficial) como pode percorrer uma matriz porosa ou um sistema fracturado depende, em cada caso, de vários processos mecânicos e geoquímicos. Dentro dos processos geoquímicos pode-se referir a adsorção nas superfícies minerais, a precipitação, a especiação, o transporte coloidal, a biofixação, a complexação, a permuta iónica e as interacções na matéria orgânica natural. A concentração é ainda alterada pelos processos mecânicos de transporte, a advecção e os efeitos de dispersão (dispersão hidrodinâmica) além da difusão molecular.

A advecção é o processo através do qual os solutos são transportados pelo movimento da massa de água. A quantidade de soluto transportado é uma função da sua concentração na água bem como do fluxo desta. A dispersão hidrodinâmica resulta da tendência do soluto se dispersar da trajectória linear que seguiria se só existisse o fenómeno da advecção. Origina a diluição do soluto e ocorre devido às variações espaciais na velocidade do fluxo e à mistura mecânica durante a advecção. A difusão molecular ocorre devido à agitação térmica das partículas do soluto e também contribui para o processo de dispersão, originando um movimento na direcção do seu gradiente de concentração.

Para além dos mecanismos de transporte, podem ocorrer diversas reacções químicas e biológicas que afectam o destino dos contaminantes: a atenuação, a retardação e o incremento da mobilidade.

A retardação refere-se aos processos que impedem o transporte dos contaminantes quer pela sua remoção, quer pela sua imobilização a partir de um estado livre (a solução aquosa ou vapor). Alguns exemplos das reacções de retardação são descritas por: sorção, precipitação, permuta iónica, filtração orgânica ou inorgânica. Nos processos de retardação, os contaminantes imobilizados não são transformados e as reacções são reversíveis. A inversão da reacção ocorre por acção da lei das massas, quando a concentração do contaminante na solução aquosa é baixa, regressando estes à solução aquosa durante um período mais ou menos longo, originando uma pluma de contaminação.

A atenuação refere-se a dois tipos de processos: a remoção irreversível e a transformação. Na atenuação, a massa do contaminante é reduzida, contrariamente

ao que se passa na retardação. Dentro dos exemplos dos processos de atenuação contam-se: as reacções de oxidação-redução, as reacções biológicas de oxidação-redução, a hidrólise e a volatilização.

Por último, podem ainda ocorrer processos que incrementam a mobilidade dos contaminantes no subsolo, como é o caso da dissolução das substâncias orgânicas e a complexação de iões metálicos. Estes processos denominam-se por incremento da mobilidade e como exemplos podem-se citar: a co-solvatação, a ionização, a dissolução, a complexação e a partilha entre fases imiscíveis.

Pode ainda ocorrer um fenómeno conjunto de transporte e transferência através da suspensão das partículas. Ocorre pela formação natural de colóides com a consequente aderência dos contaminantes aos colóides o que resulta numa forma de transporte ou retardação que envolve o movimento e a retardação mecânica dos contaminantes aderentes suspensos na água.

5.2 Representação matemática do transporte em águas superficiais

O transporte e o comportamento dos radionuclídeos (RDN) podem ser previstos com mais ou menos detalhe podendo ser descritos através de uma simples abordagem por um balanço de massa com uma solução numérica multidimensional.

O desenvolvimento das equações de transporte mássico tem por base a expressão da conservação da massa de qualquer contaminante que se pode exprimir da seguinte forma:

O débito mássico de um composto que entra num sistema por transporte convectivo ou difusivo menos (-) o débito de mássico de mesmo composto que sai do sistema por convecção ou por difusão, mais ou menos (\pm) a massa do composto criada ou destruída por reacções químicas ou transferências de fase (termos cinéticos), mais ou menos (\pm) a eventual criação ou destruição de composto, é igual à velocidade de alteração da massa do composto no interior do sistema.

Na expressão do balanço global, o termo acumulativo engloba a transferência para o elemento (transporte), a variação das propriedades dentro do elemento (reacção e transferência de fase) e a criação ou destruição de composto. De uma forma geral, o transporte e a trajectória de RDN nas águas superficiais pode ser representado pela expressão genérica de advecção-difusão na forma tridimensional:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + U \frac{\partial C}{\partial x} + V \frac{\partial C}{\partial y} + W \frac{\partial C}{\partial z} = \varepsilon_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \varepsilon_y \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} + \varepsilon_z \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \lambda_i C + S$$
(5-1)

Nesta equação genérica, C é a concentração do RDN transportado na água superficial; U, V e W representam a velocidade do fluxo na direcção x, y e z, respectivamente; S representa a adição ou diminuição de RDN; ε_x , ε_y , ε_z são os coeficientes de dispersão, na direcção x, y, z, respectivamente, e λ é a constante de decaimento radioactivo do RDN transportado.

Esta expressão pressupõe a homogeneidade do meio e pode ser resolvida simultaneamente para todas as fases do contaminante (RDN dissolvidos, RDN adsorvidos nas partículas de sedimentos, etc.) mas a sua resolução na forma analítica para um caso geral não é possível. Neste caso, deve ser usado um método numérico. Para casos mais simples, como por exemplo para os RDN dissolvidos, a solução analítica é a mais adequada: as soluções analíticas podem ser usadas para resolver o transporte dos RDN em vários tipos de massas de água, contudo, apenas são válidas para descrever os RDN dissolvidos sem incluir quaisquer mecanismos de adsorção/dessorção.

Os RDN com pequenos coeficientes de distribuição (K_d), que geralmente são transportados numa forma dissolvida, podem ser adequadamente descritos pelas soluções analíticas. No entanto, estes métodos são menos eficazes quando aplicados a RDN com elevados K_d que podem ser facilmente absorvidos pelos sedimentos suspensos e pelos sedimentos de fundo.

A expressão geral de advecção-difusão foi simplificada nas formas que a seguir se descrevem, para se obter as soluções que correspondem a libertações contínuas de RDN em diferentes tipos de massa de água superficial a considerar para condições de fluxo em estado estacionário. Tentou-se abordar a questão de uma forma genérica para as seguintes massas de água: rios, estuários, águas costeiras, lagos e reservatórios.

5.2.1 Rios

Para estimar a concentração de RDN é necessário conhecer algumas características do meio onde se pretende estimar a concentração, tais como: o fluxo de entrada de RDN, a velocidade do fluxo, a largura do rio e os coeficientes de dispersão dos RDN na água. Apesar destes parâmetros serem variáveis ao longo do

ano, considera-se que a largura (B_r), a profundidade (D_r) e a velocidade aumentam de acordo com uma função potência para os fluxos médios anuais (IAEA, 2001). As seguintes expressões foram derivadas com base nos dados experimentais de Leopold et al. (1964):

$$D_{r} = 0.163 \cdot q_{r}^{0.447}$$
(5-2)

$$B_{r} = 10 \cdot q_{r}^{0.460}$$
(5-3)

$$U = \frac{q_r}{D_r \cdot B_r}$$
(5-4)

em que,

B_r: largura do rio, (m)

D_r: profundidade do rio, (m)

- q_r : caudal do rio (caudal mínimo verificado no período de 30 anos), (m³/s)
- U: velocidade linear, (m/s).

Para estimar o caudal anual do rio, a largura e a profundidade, a que corresponde o caudal mínimo no período de 30 anos, admitem-se os seguintes pressupostos (IAEA, 2001):

- O caudal mínimo no período de 30 anos (q_r) é igual a 1/3 do caudal médio anual do rio (q_r = 1/3·<u>q</u>_r);
- A relação entre o caudal, largura e profundidade estabelecidos para o caudal médio anual (<u>q</u>_r) também é válida quando aplicada aos mesmos parâmetros com referência ao caudal mínimo no período de 30 anos, q_r.

5.2.1.1 Coeficientes de dispersão e distâncias para a mistura completa nos rios

Os coeficientes de dispersão variam grandemente consoante o local onde se dá o movimento do fluido. A expressão mais usada para estimar o coeficiente de dispersão é a descrita por Sayre (1973):

$$\varepsilon_z = 0.067 \cdot u_* \cdot D_r \tag{5-5}$$

em que ε_z (m²/s) representa o coeficiente de dispersão na vertical e u₁ (m/s) a velocidade de corte. A velocidade de corte é definida como a velocidade de cisalhamento ou de atrito e representa as variações do vector velocidade do fluido na

direcção perpendicular ao movimento. A velocidade de corte pode ser calculada pela seguinte expressão (Fisher et al., 1979):

$$u_{\star} = U_{\sqrt{\frac{g}{C}}}$$
(5-6)

em que g representa a aceleração da gravidade (m/s²). O parâmetro C representa o coeficiente de Chezy (m.s^{-1/2}) expresso em função do raio hidráulico (R_h, m) e do coeficiente de Manning (M, m^{1/3}.s⁻¹):

$$\mathbf{C} = \mathbf{M} \cdot \mathbf{R}_{\mathrm{h}}^{1/6} \tag{5-7}$$

$$R_{h} = \frac{D_{r} \cdot B_{r}}{(2 \cdot D_{r} + B_{r})}$$
(5-8)

O coeficiente de Chezy pode ser determinado empiricamente pela tensão média de arrastamento numa dada secção (τ_0) através da expressão (5-9).

$$\tau_0 = C_f \cdot \rho \cdot \frac{U^2}{2}$$
(5-9)

em que C_f é o coeficiente de resistência local e, no caso do regime turbulento rugoso uniforme, τ_0 é dado por (Sancho, 2004):

$$\tau_0 = \rho \cdot g \cdot R_h \cdot J_p \tag{5-10}$$

sendo J_p a perda de carga unitária.

Nestas condições, a velocidade do escoamento é dada por (Sancho, 2004):

$$U = C_{\sqrt{R_{h} \cdot J_{p}}}$$
(5-11)

e o coeficiente de Chezy (C, L^{1/2}T⁻¹) pode ser estimado por (Sancho, 2004):

$$C = \sqrt{\frac{2 \cdot g}{C_f}}$$
(5-12)

O coeficiente de Chezy depende do material de fundo e da profundidade do escoamento. Pode ser determinado com recurso às fórmulas de Bazin (Sancho, 2004), (Deniculi et al., 2003):

$$C = \frac{87 \cdot \sqrt{R_h}}{\gamma + R_h}$$
(5-13)

em que γ (L^{1/2}) é conhecido pelo coeficiente de Bazin, tabelado de acordo com a natureza das paredes do canal (escoamento permanente e uniforme) ou com recurso às fórmulas de Kutter (Sancho, 2004):

$$C = \frac{100 \cdot \sqrt{R_h}}{m + R_h}$$
(5-14)

em que *m* é o coeficiente de Kutter ($L^{1/2}$) também tabelado (Oppo, 2007). Os coeficientes de rugosidade de Chezy (C) e de Manning (M) podem ser relacionados pelo raio hidráulico (R_h) de acordo com a expressão (5-8). Os valores do coeficiente de Manning encontram-se tabelados (Hermann, 1984) em função das características do local onde se dá o escoamento. A tabela seguinte indica os valores do coeficiente de Manning para alguns casos.

Tabela 5-1: Coeficient	te de Manning.
------------------------	----------------

Coeficiente de Manning	(m ^{1/3} .s ⁻¹)
Rios em terras baixas, sem obstáculos	60
Com pedras e plantas em meandros	40
Rio em encosta de pendente suave	40 a 45
Rios de montanhas com seixos	45
Rios de montanhas com pedras	36

Fonte: Trapp & Matties (1997).

Os coeficientes de dispersão longitudinal (ϵ_x , m²/s) e de dispersão lateral (ϵ_y , m²/s) podem ser estimados por (Sayre, 1973), (Bowie et al., 1985):

$$\varepsilon_{x} = \frac{U^2 \cdot B_r^2}{30 \cdot D_r \cdot u_*}$$
(5-15)

$$\varepsilon_{y} = \alpha_{p} \cdot D_{r} \cdot u_{*}$$
(5-16)

em que α_p é o coeficiente de proporcionalidade. Este coeficiente varia com a relação entre a largura e a profundidade e pode apresentar valores dentro dos intervalos de 0,1 a 0,2 ou 0,6 a 2,0 (Sayre, 1973), (Fisher et al., 1979). Adoptamos o valor de α_p igual a 0,6 de acordo com o sugerido por Fisher et al. (1979). Assumindo que genericamente, $u_* = 0,1.U$ e fazendo a substituição de u_* nas expressões (5-5), (5-15) e (5-16) obtém-se:

$$\varepsilon_z = 0,0067 \cdot U \cdot D_r \tag{5-17}$$

$$\varepsilon_{x} = \frac{U^{2} \cdot B_{r}^{2}}{3 \cdot D_{r} \cdot u_{\star}}$$
(5-18)

$$\varepsilon_{v} = 0.06 \cdot U \cdot D_{r}$$
(5-19)

Para se determinar a distância longitudinal à qual se verifica a mistura completa, assume-se que a mistura completa na vertical e lateral ocorre quando a concentração mínima é pelo menos metade da concentração máxima ao longo da mesmas linhas verticais e laterais, respectivamente (IAEA, 2001).

Considerando que os RDN são libertados de uma das margens à profundidade de $D_r/2$, a distância longitudinal necessária para atingir esta mistura completa lateral e vertical, representadas por L_y e L_z , respectivamente, podem ser estimadas por (Sayre, 1973), (IAEA, 2001):

$$L_{y} = 0,18 \cdot \frac{U \cdot B_{r}^{2}}{\epsilon_{y}}$$
(5-20)

$$L_{z} = 0.045 \cdot \frac{U \cdot D_{r}^{2}}{\varepsilon_{z}}$$
(5-21)

Substituindo os coeficientes de dispersão ε_y e ε_z , determinados pelas expressões (5-17) e (5-19), nas expressões (5-20) e (5-21), obtemos:

$$L_{y} = 3 \cdot \frac{B_{r}^{2}}{D_{r}}$$
(5-22)

$$L_z = 7 \cdot D_r \tag{5-23}$$

A distância L_z é superior a L_y , dado que normalmente a largura do rio será superior à sua profundidade. Desta forma, a concentração a jusante do ponto de descarga, à distância L_y , está completamente misturada tanto na direcção vertical como lateral, ou seja, em toda a secção recta do rio. Para distâncias x < L_z , a distribuição do RDN é ainda tridimensional. Contudo, dado que L_z é apenas 7 vezes a profundidade do rio próximo da margem, assume-se que nesta região não há diluição.

5.2.1.2 Solução da expressão após a mistura completa na vertical (x > L_z)

Quando os RDN estão completamente misturados na vertical, a expressão de transporte dos RDN é reduzida da forma tridimensional à forma bidimensional considerando apenas o decaimento radioactivo, sem qualquer outro processo de adição ou de subtracção de RDN (IAEA, 2001):

$$U\frac{\partial C_{as}}{\partial x} = \varepsilon_{x} \frac{\partial^{2} C_{as}}{\partial x^{2}} + \varepsilon_{y} \frac{\partial^{2} C_{as}}{\partial y^{2}} - \lambda_{i} C_{as}$$
(5-24)

em que C_{as} representa a concentração de RDN na água superficial. A solução desta expressão para as condições iniciais: $C_{as}(0, t) = 0$, $C_{as}(x, 0) = 0$, pode ser escrita na forma (IAEA, 2001):

$$C_{as}(x,y) = \frac{Q_{i}}{2 \cdot \pi \cdot D_{r} \sqrt{\varepsilon_{x} \cdot \varepsilon_{y}}} \exp\left(\frac{Ux}{2 \cdot \varepsilon_{x}} - \frac{\lambda_{i}x}{U}\right) k_{0} \left[\frac{U}{2 \cdot \varepsilon_{x}} \sqrt{x^{2} + \frac{\varepsilon_{x}}{\varepsilon_{y}} (y - y_{0})^{2}}\right]$$
(5-25)

em que,

- Q_i: descarga média anual do RDN i, (Bq/s)
- y₀: distância lateral do ponto de libertação do RDN a partir da margem do rio, (m)
- k_o : função de Bessel modificada de 2.º tipo de ordem 0 (valores tabelados).

A concentração de RDN será máxima ao longo da linha central da pluma de contaminação em qualquer secção recta do rio. A concentração de RDN ao longo do centro da pluma é estimada quando $y = y_0$.

Partindo do pressuposto de que os RDN são libertados de uma das margens do rio ($y_0 = 0$), a estimativa da concentração ao longo desta mesma margem (y = 0) pode ser obtida pela expressão anterior respeitando estas duas condições, $y_0 = 0$ e y = 0.

$$C_{as}(x,0) = \frac{Q_{i}}{2 \cdot \pi \cdot D_{r} \sqrt{\varepsilon_{x} \cdot \varepsilon_{y}}} \exp\left(\frac{U \cdot x}{2 \cdot \varepsilon_{x}} - \frac{\lambda_{i} \cdot x}{U}\right) k_{0} \left[\frac{U \cdot x}{2 \cdot \varepsilon_{x}}\right]$$
(5-26)

Substituindo os coeficientes de dispersão ε_x e ε_y pela igualdade da expressão (5-18) e da expressão (5-19), respectivamente, a expressão (5-26) transforma-se em:

$$C_{as}(x,0) = \frac{Q_i}{0,142 \cdot \pi \cdot D_r \cdot U \cdot B_r} \exp\left(\frac{1,5 \cdot D_r \cdot x}{B_r^2} - \frac{\lambda_i \cdot x}{U}\right) k_0 \left[\frac{1,5 \cdot D_r \cdot x}{B_r^2}\right]$$
(5-27)

e que pode ser escrita na forma:

$$C_{as}(x,0) = C_t \cdot P_{rr}$$
(5-28)

em que,

$$C_{t} = \frac{Q_{i}}{q_{r}} \exp\left(-\frac{\lambda_{i} \cdot x}{U}\right)$$
(5-29)

$$\mathsf{P}_{\mathrm{rr}} = \frac{1}{0,142 \cdot \pi} \exp\left(\frac{1,5 \cdot \mathsf{D}_{\mathrm{r}} \cdot \mathsf{x}}{\mathsf{B}_{\mathrm{r}}^2}\right) \mathsf{k}_0 \left[\frac{1,5 \cdot \mathsf{D}_{\mathrm{r}} \cdot \mathsf{x}}{\mathsf{B}_{\mathrm{r}}^2}\right]$$
(5-30)

e o caudal do rio é dado pela expressão (5-4), já definida anteriormente:

$$q_r = \frac{D_r}{U \cdot B_r}$$
(5-31)

Esta expressão permite estimar a concentração de RDN no rio à distância x do ponto de descarga. A expressão que define C_t descreve a concentração de RDN completamente misturada ao longo da secção recta do rio. Os valores de P_{rr} podem ser calculados pela função de Bessel (IAEA, 2001). Este parâmetro pode ser considerado como um factor de correcção da mistura parcial aproximando-se da unidade à medida que a distância x, a jusante do ponto de descarga, aumenta. Quando a distância a jusante do ponto de descarga é superior a L_y, obtém-se a mistura completa lateral e do mesmo modo, a mistura completa em toda a secção recta do rio. Nestas condições (x > L_y), P_{rr} = 1 e a expressão (5-28) pode ser simplificada em:

$$\mathbf{C}_{\mathrm{as}} = \mathbf{C}_{\mathrm{t}} \tag{5-32}$$

5.2.2 Estuários

O modelo matemático para estimar a concentração na água superficial de um estuário descreve uma libertação contínua em estado estacionário com base na mesma expressão genérica (5-24) e na respectiva solução analítica (5-25) para o caso dos rios atendendo às seguintes diferenças:

- a velocidade média do fluxo da maré, U (m/s);
- o coeficiente de dispersão vertical é estimado pela expressão (5-17) mas baseia-se na velocidade média do fluxo durante o ciclo da maré;

- os coeficientes de dispersão longitudinal e lateral são estimados com base na velocidade do fluxo durante o ciclo das marés corrigido para contemplar as variações hidrodinâmica da maré;
- considera-se a exposição a montante e a jusante do ponto de descarga e a concentração de RDN a montante pode ser corrigida para considerar os efeitos da maré.

5.2.2.1 Coeficientes de dispersão e distâncias para a mistura completa nos estuários

Os processos de dispersão nos estuários são muito complexos, geralmente mais complexos do que os que se verificam nos rios, devendo-se em grande parte, aos efeitos adicionais da maré e à densidade da estratificação e ao vento.

Na bibliografia são apresentados alguns valores para os coeficientes de dispersão longitudinal em estuários (Fisher et al., 1979). A expressão (5-5) usada anteriormente para estimar o coeficiente de dispersão na vertical é válida também para os estuários, mas será calculada com a velocidade média do fluxo durante o ciclo da maré em vez da velocidade para o caudal mínimo no período de 30 anos, usado no caso dos rios. Desta forma (IAEA, 2001):

$$u_* = 0, 1 \cdot U_t$$
 (5-33)

$$\varepsilon_z = 0,0067 \cdot U_t \cdot D_r \tag{5-34}$$

$$U_{t} = 0.32 \cdot (|U_{e}| + |U_{f}|)$$
 (5-35)

Os parâmetros U_e e U_f representam as velocidades máximas (m/s) de fluxo vazante e de fluxo enchente, respectivamente.

A mistura lateral num estuário tende a ser muito maior do que a correspondente mistura lateral no rio (sem efeito da maré). Assim, o coeficiente de proporcionalidade da expressão (5-16) passa a ser 3 para este caso (Fisher et al., 1979).

$$\varepsilon_{v} = 3 \cdot D_{r} \cdot u_{\star}$$
 (5-36)

e substituindo a expressão (5-33) na expressão (5-36), o coeficiente de dispersão lateral para o estuário pode ser estimado por:

$$\varepsilon_{v} = 0.3 \cdot D_{r} \cdot U_{t}$$
(5-37)

A mistura longitudinal de um estuário é afectada pelo fluxo oscilatório da maré: a velocidade da maré varia sinusoidalmente com o tempo. O quociente entre o coeficiente de dispersão longitudinal do estuário e o coeficiente de dispersão longitudinal do rio é representado pelo parâmetro N_q, expresso em função do parâmetro, M', que por sua vez representa o quociente entre o período da maré e o tempo necessário para ocorrer a mistura na secção recta. Se o tempo de mistura na secção recta for representado por $B_r^2/\varepsilon_y \in \varepsilon_y = 0,3.D_r.U_t$, como descrito na expressão (5-37), o parâmetro M' pode ser equacionado da seguinte forma:

$$M' = \frac{0.3 \cdot D_r \cdot U_t \cdot T_p}{B_r^2}$$
(5-38)

O período da maré (T_p) pode ser igual a 45 000 s para a maré do tipo semidiurno (ocorre 2 vezes ao dia), como descrito na expressão (5-39), ou igual a 90 000 s no caso do tipo de maré diurno (ocorre uma vez por dia), como descrito na expressão (5-40):

$$M' = \frac{13500 \cdot D_{r} \cdot U_{t} \cdot T_{p}}{B_{r}^{2}}$$
(5-39)

$$M' = \frac{27000 \cdot D_{r} \cdot U_{t} \cdot T_{p}}{B_{r}^{2}}$$
(5-40)

Os valores de N_q que resultam do quociente entre o coeficiente de dispersão longitudinal do estuário e o coeficiente de dispersão longitudinal do rio em função de M encontram-se no anexo D (tabela D-3) (IAEA, 2001). O coeficiente de dispersão longitudinal num estuário é estimado por:

$$\varepsilon_{x} = \frac{N_{q} \cdot U_{t} \cdot B_{r}^{2}}{3 \cdot D_{r}}$$
(5-41)

Substituindo a expressão (5-37) na expressão (5-26) obtemos a distância longitudinal necessária para que ocorra a mistura lateral completa:

$$L_{y} = 0.6 \cdot \frac{B_{r}^{2}}{D_{r}}$$
(5-42)

Analogamente, a distância longitudinal (L_z) necessária para atingir a mistura completa na vertical pode obtida substituindo a expressão (5-34) na expressão (5-21):

$$L_z = 7 \cdot D_r \tag{5-43}$$

E como no caso dos rios, assume-se que metade da mistura é completa.

5.2.2.2 Solução da expressão para distâncias superiores à da mistura completa na vertical ($x > L_z = 7.D$)

A expressão genérica do modelo é a mesma usada no caso dos rios (5-24) e a sua solução associada obtém-se pela resolução da expressão (5-25). Substituindo os coeficientes de dispersão longitudinal e lateral expressos pela expressão (5-41) e pela expressão (5-37), respectivamente, na (5-25), podemos obter:

$$C_{as} = \frac{Q_i}{0,632 \cdot \pi \cdot D_r \cdot U_t \cdot B_r \sqrt{N_q}} e^{\left(\frac{1,5 \cdot D_r \cdot x \cdot U}{N_r \cdot B_r^2 \cdot U_t}\right)} k_0 \left(\frac{1,5 \cdot D_r}{N_q \cdot B_r^2} \frac{U}{U_t} \sqrt{x^2 + \frac{N_q \cdot B_r^2}{0,9 \cdot D_r^2}} (y - y_0)\right) e^{\left(-\frac{\lambda_i \cdot x}{U}\right)}$$
(5-44)

Analogamente ao que se verifica no caso dos rios, a concentração de RDN ao longo da linha de costa do estuário, a jusante do ponto de descarga ($y = y_0$) pode ser estimada por:

$$C_{as} = C_{te} \cdot P_{ee}$$
(5-45)

em que a concentração para a mistura completa é dada por:

$$C_{te} = \frac{Q_i}{q_w} e^{\left(\frac{-\lambda_i \cdot x}{U}\right)}$$
(5-46)

e a descarga média da maré, q_w:

$$\mathbf{q}_{w} = \mathbf{D}_{r} \cdot \mathbf{B}_{r} \cdot \mathbf{U}_{t}$$
 (5-47)

e finalmente, o factor Pee é dado por:

$$P_{ee} = \frac{1}{0,32 \cdot \pi \cdot \sqrt{N_q}} e^{\left(\frac{1,5 \cdot D_r \cdot x \cdot U}{N_q \cdot B_r^2 \cdot U_t}\right)} K_0 \left(\frac{1,5 \cdot D_r \cdot x}{N_q \cdot B_r^2} \cdot \frac{U}{U_t}\right)$$
(5-48)

Esta expressão é usada para estimar as concentrações de RDN a montante e a jusante do ponto de descarga. Dado que C_{te} representa a concentração de RDN após atingir a mistura completa ao longo da secção recta, o parâmetro P_{ee} pode ser considerado um factor de correcção para a mistura parcial. Os valores de P_{ee} devem ser superiores à unidade e inferiores a q_w/Q_e , em que Q_e (m³/s) é o caudal do efluente (IAEA, 2001).

Para estimar a concentração de RDN a montante do ponto de descarga, o factor de correcção da mistura parcial pode ser obtido pela expressão (5-44) e pela expressão (5-45).

Para estimar a concentração de RDN a jusante do ponto de descarga, é usada uma expressão unidimensional para obter o factor de correcção. A solução para o estado estacionário desta expressão com um termo de decaimento de $1.^{a}$ ordem para uma libertação contínua em x = 0 é dada por (O'Conner et al., 1965):

$$U\frac{\partial C_{as}}{\partial x} = \varepsilon_{x} \frac{\partial^{2} C_{as}}{\partial x^{2}} - \lambda_{i} C_{as}$$
(5-49)

$$C_{as} = \frac{Q_{i}}{B_{r}D_{r}U\sqrt{1 + \frac{4 \cdot \lambda_{i} \cdot \varepsilon_{x}}{U^{2}}}} e^{\left(\frac{U \cdot x}{2 \cdot \varepsilon_{x}}\left(1 \pm \sqrt{1 + \frac{4 \cdot \lambda_{i} \cdot \varepsilon_{x}}{U^{2}}}\right)\right)}$$
(5-50)

O sinal ± está associado com as concentrações a montante e a jusante do ponto de descarga, respectivamente.

O quociente entre a concentração a montante e a concentração a jusante (Q_{Cmi}) pode ser representada por (O'Conner et al., 1965):

$$Q_{C_{mj}} = e^{\left(\frac{U \cdot x}{\epsilon_x} \sqrt{1 + \frac{4 \cdot \lambda_i \epsilon_x}{U^2}}\right)}$$
(5-51)

Os valores de x devem ser considerados com sinal negativo para calcular Q_{Cmj} definido na expressão anterior. Substituindo a expressão (5-41) na expressão (5-51) obtemos:

$$Q_{C_{mj}} = e^{\left(\frac{3 \times D_r \cdot U}{N_q \cdot B_r^2 \cdot U_t}\right)}$$
(5-52)

Desta forma, a mistura parcial da concentração de RDN dissolvido (C_{wm}) a montante do ponto de descarga, antes de ocorrer a mistura completa na secção recta é dada por:

$$C_{wm}(x, y) = Q_{C_{mi}} \cdot C_{as}$$
 (5-53)

A concentração de RDN na água superficial (C_{as}) pode ser calculada pela expressão (5-44) ou pela expressão (5-45). Esta expressão implica que a distância x a montante do ponto de descarga, seja inferior à distância actual à qual o RDN pode ser transportado durante o período de enchente da maré.

5.2.3 Águas costeiras

O modelo matemático para estimar a concentração de RDN nas águas costeiras tem por base a expressão genérica de advecção-difusão a 2 dimensões:

$$U\frac{\partial C_{as}}{\partial x} = \varepsilon_{y} \frac{\partial^{2} C_{as}}{\partial y^{2}} - \lambda_{i}C_{as}$$
(5-54)

e neste caso, U representa a corrente costeira. Esta expressão representa o balanço da variação temporal da concentração de RDN com advecção longitudinal, dispersão lateral (ε_y) e com decaimento radioactivo (λ_i).

A dispersão longitudinal não está incluída na expressão anterior, o que pode originar uma estimativa conservativa para a concentração de RDN, uma vez que a extensão da mistura é maior à medida que a pluma se afasta da fonte. Assume-se ainda que o coeficiente de dispersão lateral (ε_y , m²/s), é uma função da distância e pode ser estimado por (IAEA, 2001):

$$\varepsilon_{y} = 3,44 \times 10^{-7} \cdot \left(\frac{x}{U}\right)^{1,34}$$
 (5-55)

Partindo dos pressupostos que:

- a linha de costa é uma linha recta ao longo do eixo dos xx (y = 0);
- a profundidade é constante;
- a corrente costeira U é constante e paralela à linha de costa.

A solução da expressão genérica para uma libertação contínua a partir do ponto de descarga (x = 0, y = y_0) é dada por (IAEA, 2001):

$$C_{as} = \frac{Q_{i}}{D_{r}\sqrt{\pi \cdot U \cdot \varepsilon_{y} \cdot x}} \left[e \left(-\frac{U(y - y_{0})^{2}}{4 \cdot \varepsilon_{y} \cdot x} - \frac{\lambda_{i} \cdot x}{U} \right) \right]$$
(5-56)

em que U = 0,1 m/s, por defeito.

A expressão (5-54) e a expressão (5-56) podem ser obtidas a partir da expressão (5-24), assumindo que a dispersão longitudinal é desprezável mediante as seguintes condições na expressão (5-25):

$$\frac{\varepsilon_{y}}{\varepsilon_{x}} \left(\frac{y - y_{0}}{x}\right)^{2} << 1$$
(5-57)

$$\frac{\mathbf{x} \cdot \mathbf{U}}{2 \cdot \varepsilon_{\mathbf{x}}} >> 1 \tag{5-58}$$

Verificando-se estas condições, ε_x pode ser estimado por (IAEA, 2001):

$$\varepsilon_{x} = 4,66 \times 10^{-6} \cdot \left(\frac{x}{U}\right)^{1,34}$$
 (5-59)

Se calcular os coeficientes ε_x e ε_y , fazendo U = 0,1 m/s na expressão (5-55) e na expressão (5-59), respectivamente, e substituindo o resultado na expressão (5-57) e na expressão (5-58), verificam-se as seguintes condições:

$$7 \cdot D < x < 8 \times 10^{-7} (m)$$
 (5-60)

$$\left|\frac{y-y_0}{x}\right| << 3,7 \tag{5-61}$$

Por último, substituindo a expressão (5-55) na expressão (5-56) resulta a expressão final para a estimativa da concentração de RDN nas águas costeiras (IAEA, 2001):

$$C_{as} = \frac{962 \cdot U^{0,17} \cdot Q_{i}}{D_{r} \cdot x^{1,17}} e \left(\frac{-\frac{7,28 \times 10^{5} \cdot U^{2,34} (y-y_{0})^{2}}{x^{2,34}}}{D_{r} \left(\frac{-\lambda_{i} \cdot x}{U} \right)} \right) e^{\left(-\frac{\lambda_{i} \cdot x}{U} \right)}$$
(5-62)

A concentração ao longo do centro da pluma e da linha de costa pode ser estimada considerando y = y_0 e y_0 = 0 nas expressões (5-56) e (5-62), respectivamente.

5.2.4 Lagos e reservatórios

Neste caso, a concentração de RDN é considerada uniforme dentro de todo o reservatório, logo a mistura é completa. Sob estas condições, a expressão que permite estimar a concentração de RDN num lago ou reservatório é dada por:

$$\frac{dC_{as}}{dt} = -\frac{(q_L + \lambda_i \cdot V) \cdot C_{as}}{V_L} + \frac{Q_i}{V_L}$$
(5-63)

em que V_L é o volume do lago e q_L é o fluxo de entrada ou de saída. Assumindo que no tempo inicial (t = 0), a concentração é nula (C = 0), a solução da expressão anterior é dada por (IAEA, 2001):

$$C_{as} = \frac{Q_i}{q_L + \lambda_i \cdot V_L} \left[1 - e^{\left(- \left(\frac{q_r}{V_L} + \lambda_i \right) t \right)} \right]$$
(5-64)

Este método permite avaliar os efeitos a longo prazo de uma libertação contínua (durante cerca de 30 anos) e pode ser aplicado também para RDN com período de semi-vida muito curtos. Desta forma, na presença das seguintes condições:

$$\left(\frac{q_{L}}{V_{L}} + \lambda_{i}\right) > 10^{-8}, \left(s^{-1}\right)$$

$$e^{\left[-\left(\frac{q_{L}}{V_{L}} + \lambda_{i}\right)t\right]} << 1$$
(5-66)

a expressão (5-64) pode ser simplificada para se obter solução final de estimativa da concentração de RDN na água, no estado estacionário:

$$C_{as} = \frac{Q}{q_{L} + \lambda_{i} \cdot V_{L}}$$
(5-67)

A mistura que ocorre num lago considerado de grandes dimensões é dominada pela acção do vento, analogamente ao que ocorre nas águas costeiras. No entanto, sabe-se que mesmo para lagos de elevadas dimensões pode ocorrer a mistura completa num período de tempo relativamente curto (USNRC, 1978). Desta forma, as concentrações estimadas pelas expressões (5-56) e (5-64) (ou pela expressão (5-62) e (5-67), respectivamente) devem ser adicionadas para incluir a concentração de fundo resultante da mistura completa.

5.3 Modelo de transporte e de transferência no meio aquático

5.3.1 Introdução

A mineração do urânio gera grandes quantidades de resíduos sendo usualmente depositados a céu aberto. Além dos estéreis depositados, os efluentes gerados no processamento do minério para a recuperação do urânio também podem ser libertados, transportados e acumulados no ambiente dando origem a novos meios de exposição.

Os efluentes resultantes destes processos de beneficiação são geralmente tratados e posteriormente lançados nas águas superficiais (lagos, ribeiros, rios, etc.). Se o tratamento para remover os contaminantes é inexistente ou deficiente, os efluentes lançados no meio hídrico vão constituir trajectórias de libertação desses contaminantes. O tratamento tem por objectivo diminuir a concentração de alguns dos contaminantes radioactivos (²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, etc.), e não radioactivos, de acordo com os valores limites estipulados pela legislação ou por outros critérios de saúde pública ou ambiental.

A exposição do público aos contaminantes na água superficial, em particular o ²²⁶Ra, é maioritariamente pela trajectória da ingestão, nomeadamente: de água, de produtos irrigados com água contaminada, de peixes ou de outro tipo de organismos aquáticos, ou ainda através de animais que ingeriram água ou outros produtos contaminados. As aves migratórias não constituem uma contribuição relevante, já que apenas estão expostas à contaminação parte do ano.

A avaliação das consequências radiológicas resultantes da libertação de radionuclídeos de vários locais estudados referidos por Heling et al. (1999), revela que existe efectivamente uma contribuição importante das massas de água contaminadas para a dose total recebida pela população. A remobilização do material depositado (cheias, chuvas ácidas, etc.) e a ressuspensão dos sedimentos podem originar a migração dos radionuclídeos e afectar áreas agrícolas originalmente não contaminadas bem como a água para ingestão. Adicionalmente, a remobilização dos RDN acumulados nos sedimentos de fundo de lagos e reservatórios causam um atraso na transferência da actividade para o ambiente aquático.

5.3.2 Descrição conceptual dos objectivos do modelo

A abordagem apresentada anteriormente pretende ser aplicada a libertações contínuas ou prolongadas no ambiente, considerando que se estabeleceram as condições de equilíbrio, para estimar a concentração dos radionuclídeos no meio de exposição considerado. Para tal, é necessário conhecer o débito de entrada dos RDN no meio e identificar o tipo de RDN que poderá estar presente, isto porque diferentes RDN podem apresentar solubilidades diferentes gerando diferentes concentrações também.

O modelo pretende descrever os métodos genéricos para estimar a concentração dos radionuclídeos na água (C_{as}, Bq/m³) e nos sedimentos (C_{sd}, Bq/kg) resultante da contaminação da água superficial por uma libertação contínua (Q_i, Bq/s). Diferentes tipos de massas de água podem ser consideradas: rios, estuários, águas costeiras, pequenos e grandes lagos, através de submodelos que consideram as diferentes características de cada uma das massas de água. Na exploração do modelo será exemplificado um caso para cada tipo de massa de água e finalmente será aplicado a um caso real (estudo de caso).

A concentração na água e nos sedimentos é estimada para pontos específicos, a uma distância x metros da fonte de contaminação, onde se considera que ocorre a exposição através do uso da água contaminada para (ingestão), para irrigação, para a prática de actividades recreativas, como a pesca e a natação, e também através do uso dos sedimentos para diversos fins. Estes locais específicos representam a distância mais próxima a que se considera que pode ocorrer a exposição.

A absorção dos RDN aos sedimentos reduz a concentração de RDN dissolvidos na água. No entanto, estes RDN adsorvidos podem migrar ao longo do rio ou sofrer deposição no leito e daqui serem ressuspensos ficando incorporados em bancos de areia e praias, constituindo um local de exposição adicional: durante certo período de tempo, a remobilização dos RDN associados aos sedimentos depositados pode constituir uma fonte adicional de exposição. Estes processos são específicos do local a estudar podendo ocorrer em maior ou menor intensidade.

A absorção e a retenção dos RDN pela biota aquática são quantificadas através dos factores de bioacumulação que descrevem o estado de equilíbrio entre a concentração do radionuclídeo na biota (ou no organismo aquático) e na água.

5.3.3 Descrição matemática do modelo

Do ponto de vista matemático, podemos considerar 3 tipos de modelos básicos usados para estimar o transporte de RDN em águas superficiais (IAEA, 2001):

- Modelos numéricos;
- Modelos compartimento (box model);
- Modelos analíticos.

A metodologia adoptada no presente modelo tem por base a solução analítica das equações de advecção-difusão descrevendo o transporte uniforme dos RDN (a velocidade do escoamento não varia) nas águas superficiais em estado estacionário (não há variação ao longo do tempo). Um modelo "compartimento" foi adoptado no caso de pequenos lagos e reservatórios. São ainda incluídos alguns processos simples para estimar os coeficientes de dispersão por defeito, as condições de fluxo de rio e as correntes costeiras, no caso de ausência de dados específicos do local a estudar.

Os RDN libertados na água superficial são sujeitos a vários processos físicos e químicos que afectam o seu transporte a partir do ponto de libertação. Alguns destes processos podem ser descritos por:

- Processos relativos ao fluxo: advecção e mistura (dispersão turbulenta);
- Processos relativos aos sedimentos: adsorção/dessorção nos sedimentos, transporte pela corrente, deposição e ressuspensão dos RDN;
- Outros processos, incluindo o decaimento radioactivo, que vão reduzir a concentração na água.

Estes processos são, geralmente, tridimensionais e transientes. Contudo, a estimativa da concentração média anual dos RDN no meio aquático pode ser feita com base no pressuposto que muitos destes processos se encontram em estado estacionário.

No caso da libertação contínua dos contaminantes num rio pode então admitirse a hipótese de estacionaridade (não há variação da concentração ao longo do tempo). Poderá ainda admitir-se a hipótese da contaminação ser unidimensional, sem necessidade de se considerarem os efeitos pluma e de dispersão transversal. Os principais efeitos a considerar são:

- diluição;
- transporte advectivo;

- protólise (dissociação de ácidos e bases);
- sorção nas partículas em suspensão;
- deposição de agregados de partículas;
- processos de degradação (hidrólise, fotólise, biodegradação e outros);
- volatilização.

Na abordagem mais simplista, considera-se o rio constituído por um compartimento de fluido descrevendo-se o movimento da água no seu interior, bem como a suspensão de partículas sólidas, e a presença de organismos expostos (peixes).

A concentração média inicial depende directamente da diluição do efluente emitido, ou descarregado no rio. No caso de mistura imediata, se o caudal médio do efluente for Q_e e o caudal médio do rio for q_r, o factor de diluição é dado por:

$$\mathsf{D}_{\mathsf{f}} = \frac{\mathsf{q}_{\mathsf{r}}}{\mathsf{Q}_{\mathsf{e}}} \tag{5-68}$$

- D_f: factor de diluição, (-)
- q_r : caudal do rio, (m³/s)
- Q_e : caudal do efluente, (m³/s).

A concentração média de RDN no rio, perto do ponto de descarga (C_{od}) é calculada a partir da concentração no efluente, C_{ee} :

$$C_{od} = \frac{C_{ee}}{D_f}$$
(5-69)

Todos os processos de eliminação durante o transporte advectivo (degradação por fotólise, hidrólise e transformação biótica, a volatilização e a sedimentação com as respectivas componentes de deposição, de ressuspensão e de trocas difusivas), são expressos como tendo cinéticas de 1.ª ordem. A constante cinética total de eliminação (d⁻¹) será a soma das cinéticas correspondentes a cada processo de eliminação:

$$\frac{\mathrm{d}\mathbf{C}_{wt}}{\mathrm{d}t} = -\lambda \cdot \mathbf{C}_{wt}$$
(5-70)

A integração desta expressão com condição inicial $C(0) = C_{od}$ conduz a:

$$\mathbf{C}_{\mathsf{wt}} = \mathbf{C}_{\mathsf{od}} \cdot \mathbf{e}^{-\lambda \cdot \mathsf{t}} \tag{5-71}$$

Se considerarmos a velocidade média (u) constante no rio e igual a:

$$t = \frac{x}{u}$$
(5-72)

em que x é a distância percorrida no tempo. Substituindo, teremos:

$$\mathbf{C}_{\rm wt} = \mathbf{C}_{\rm od} \cdot \mathbf{e}^{-\lambda \cdot \mathbf{x}/\mathbf{u}} \tag{5-73}$$

O que significa que a concentração decresce exponencialmente com a distância ao ponto de descarga.

Por outro lado, a abordagem mais pessimista, apesar de também ser simples, para estimar a concentração de RDN na água é desprezar os efeitos da diluição, o que significa que a exposição ocorre no ponto de entrada dos RDN na água. Neste caso, a concentração é independente do tipo de massa de água e pode ser estimada por (IAEA, 2001):

$$C_{wt} = C_{ee} = \frac{Q_i}{Q_e}$$
(5-74)

C_{wt}: concentração total de RDN, (Bq/m³)

C_{ee}: concentração de RDN no efluente descarregado na massa de água, (Bq/m³)

Q_i: descarga anual do RDN i, (Bq/s)

 Q_e : caudal do efluente, (m³/s).

A concentração dos RDN nos sedimentos pode ser estimada a partir da concentração na água (C_{wt}) através do coeficiente de distribuição (K_d , L/kg). Contudo, o efeito de adsorção nos sedimentos deve ser desprezado, por questões de simplificação, desde que se verifiquem as seguintes condições (IAEA, 2001):

- A geometria da massa de água não varia muito com a distância;
- As características do fluxo (velocidade, profundidade, etc.) não variam significativamente com a distância ou com o tempo;
- Considera-se que existe equilíbrio entre os RDN na água e nos sedimentos.

A partir do valor da concentração de RDN nos sedimentos é possível estimar a e concentração transferida para os organismos aquáticos, permitindo estimar a dose resultante para o potencial receptor. Se este valor for superior ao valor estabelecido como limite aceitável, então é necessário efectuar um estudo mais detalhado tendo em consideração a diluição na massa de água específica (rios, lagos, águas costeiras ou estuários).

5.3.3.1 Rios

A estimativa da concentração de RDN na água pode ser feita em qualquer ponto situado ao longo da margem onde ocorre a descarga bem como ao longo da margem contrária a esta. Nesta primeira abordagem da estimativa da concentração de RDN na água, são desprezados os efeitos dos sedimentos. Para estimar a concentração é necessário conhecer os seguintes parâmetros dos RDN no rio:

- largura do rio, B_r (m);
- distância longitudinal desde o ponto de libertação até à localização do potencial receptor, x (m);
- constante de decaimento radioactivo λ, (s⁻¹);
- caudal do rio que corresponde ao caudal mínimo no período de 30 anos, q_r, (m³/s);
- profundidade do fluxo, correspondente ao caudal qr, Dr (m);
- velocidade do rio, correspondente ao caudal q_r, U (m/s).

A estimativa da distância longitudinal para a mistura completa resulta do pressuposto de que a mistura na vertical e lateral é completa quando a concentração mínima é metade da concentração máxima ao longo das mesmas linhas verticais e laterais. A distância longitudinal necessária para atingir esta mistura vertical completa, L_z (m), é dada pela mesma expressão definida anteriormente por (5-23) (IAEA, 2001):

$$L_z = 7 \cdot D_r \tag{5-75}$$

O caudal médio anual (\underline{q}_r) pode ser obtido em função da largura média do rio, (\underline{B}). A correspondência entre os valores destes dois parâmetros encontra-se descrita na bibliografia e é apresentado no anexo D, na tabela D-1 (IAEA, 2001). Assumindo os valores por defeito para a estimativa dos parâmetros locais desconhecidos, pode-se considerar que o caudal mínimo no período de 30 anos, q_r, é igual a 1/3 do caudal médio anual do rio, \underline{q}_r . Os valores para os parâmetros, B_r (largura do rio) e D_r (profundidade do rio), que correspondem ao caudal mínimo no período de 30 anos (q_r) também são referidos na bibliografia e apresentados na tabela D-1, do anexo D (IAEA, 2001). Esta referência ao caudal mínimo no período de 30 anos resulta do pressuposto que a contaminação contínua ocorreu durante 30 anos. A velocidade do rio (m/s) a que corresponde as condições anteriores pode ser estimada pela mesma expressão definida por (5-4) (IAEA, 2001):

$$U = \frac{q_r}{B_r \cdot D_r}$$
(5-76)

Para estimar a concentração de RDN na água superficial podemos considerar dois locais distintos quanto à potencial localização da exposição:

a) Na margem oposta onde ocorre a descarga: neste caso, o transporte dos RDN ocorre, pelo menos, até metade da largura do rio para chegar à margem oposta. A concentração de RDN na água (não filtrada) pode ser estimada pela expressão definida anteriormente por (5-29) (IAEA, 2001):

$$C_{wt} = \frac{Q_i}{q_r} e^{\left(-\frac{\lambda_i \cdot x}{U}\right)} = C_t$$
(5-77)

- C_t: concentração total de RDN na água superficial, (Bq/m³)
- Q_i: descarga anual do RDN i, (Bq/s)
- q_r : caudal do rio, (m³/s)
- λ_i : constante de decaimento radioactivo, (s⁻¹)
- x: distância entre o ponto de descarga e o receptor, (m)
- U: velocidade do rio, (m/s)
- b) Na margem onde ocorre a descarga: neste caso considera-se que a exposição vai ocorrer antes de se verificar a mistura completa na vertical (x ≤ L_z = 7.D_r) e como se pressupõe que não há diluição, a concentração na água superficial é igual à concentração da descarga, e então:

 $\mathbf{C}_{\mathsf{wt}} = \mathbf{C}_{\mathsf{od}} \tag{5-78}$

Se o ponto de exposição ocorre na margem da descarga e há uma mistura completa na vertical, a estimativa da concentração de RDN deve ser modificada para ter em conta o facto de que a mistura lateral pode estar incompleta. Na bibliografia, esta mistura incompleta é quantificada pelo coeficiente de mistura parcial (P_{rr}) sendo uma função de outro parâmetro, o índice de mistura parcial (A_{ip}) dado por (IAEA, 2001):

$$A_{ip} = \frac{1.5 \cdot D_r \cdot x}{B_r^2}$$
(5-79)

O coeficiente de mistura parcial (P_{rr}) encontra-se relacionado com o índice de mistura parcial (A_{ip}). Esta relação encontra-se transcrita na tabela D-2 do anexo D. (IAEA, 2001)

A concentração de RDN ao longo do rio é obtida pela multiplicação da expressão (5-73) pelo parâmetro P_{rr} que pode ser considerado como um factor de correcção para a mistura parcial, e que tende para 1 à medida que a distância x aumenta, a expressão resultante é igual à expressão (5-28) já definida anteriormente:

$$\mathbf{C}_{\mathrm{wt}} = \mathbf{C}_{\mathrm{t}} \cdot \mathbf{P}_{\mathrm{rr}} \tag{5-80}$$

$$x \ge 3 \cdot \frac{B_r^2}{D_r}, P_{rr} \cong 1$$
(5-81)

5.3.3.2 Estuários

Um estuário é definido como uma massa de água que está ligada por um lado a um rio e por outro ao mar. Neste extremo, a água doce mistura-se com a água salgada sendo a salinidade um traçador por excelência da proporção entre a água do mar e a água doce. A mistura resultante é, geralmente, menos salina do que a água do mar. A mistura vai ser uma componente muito importante para os *habitats* dos estuários dado que estabelece um gradiente entre a água doce e a água salgada. Os maiores gradientes indicam a região onde se dá a mistura das águas provenientes do rio e do mar. As velocidades elevadas e as marés longas geram turbulência e difusão por efeito de corte responsáveis pela mistura intensa.

Assume-se que a descarga pode ocorrer numa das margens do estuário, analogamente ao que foi considerado para os rios. A metodologia descrita anteriormente para os rios pode ser usada neste caso, introduzindo as alterações adequadas para os efeitos da maré, uma vez que a velocidade é variável com a maré.

É necessário conhecer os seguintes parâmetros para estimar a concentração de RDN num estuário:

- largura do estuário, B_r (m);
- largura média do rio (ou seja, largura média do estuário na parte a que corresponde o rio e que por isso não tem o efeito da maré), (m);
- período de maré, T_p (s);

- distância longitudinal desde o ponto de libertação até à localização do potencial receptor, x (m);
- constante de decaimento radioactivo, λ_i (s⁻¹);
- profundidade do fluxo, D_r (m).

A distância à qual o RDN é transportado para montante do ponto de descarga, L_u (m) é dada por (IAEA, 2001):

$$\mathbf{L}_{u} = \mathbf{0.32} \cdot \left| \mathbf{U}_{f} \right| \cdot \mathbf{T}_{p} \tag{5-82}$$

em que U_f representa a velocidade do fluxo na maré enchente.

Todos os cálculos apresentados anteriormente para estimar a concentração de RDN na água do rio são válidos para o caso da água dos estuários.

Se os valores da velocidade máxima em condições de maré vazante e de maré enchente não são conhecidas podem adoptar-se os seguintes valores: $U_e = 0,5$ m/s e $U_f = 0,5$ m/s, respectivamente (IAEA, 2001). A velocidade média da maré (U_t) e o caudal em presença da maré (q_w) podem ser estimados pelas expressões definidas anteriormente (5-35) e (5-47), respectivamente (IAEA, 2001):

$$U_{t} = 0.32 \cdot (|U_{e}| + |U_{f}|)$$
(5-83)

$$q_{w} = D \cdot B \cdot U_{t}$$
(5-84)

A concentração de RDN na água superficial de um estuário pode ser estimada em diferentes pontos consoante a localização da exposição. Foram considerados os seguintes casos:

 Se a exposição ocorre na margem oposta à qual onde ocorre a descarga. Neste caso, o RDN é transportado pelo menos, a metade da largura do rio para atingir a margem oposta e a concentração de RDN pode ser estimada pela expressão (5-46) já definida anteriormente (IAEA, 2001):

$$\mathbf{C}_{wt} = \frac{\mathbf{Q}_{i}}{\mathbf{q}_{w}} \mathbf{e}^{\left(-\frac{\lambda_{i} \cdot \mathbf{x}}{U}\right)} = \mathbf{C}_{te}$$
(5-85)

ii. Se a exposição ocorre quer a montante quer a jusante do ponto de descarga, mas antes de se verificar a mistura completa na vertical, ou seja, para
distâncias $|\mathbf{x}| \le L_z = 7 \cdot D_r$, pode-se considerar a concentração de RDN igual à concentração no ponto de descarga (C_{od}):

$$C_{\rm wt} = C_{\rm od}$$
(5-86)

iii. Se a exposição ocorre a montante do ponto de descarga e a uma distância superior a L_u, isto é, $|x| > L_u = 0,32 \cdot |U_f| \cdot T_p$, $(T_p: período da maré, segundos) o fluxo da maré não chega a atingir o ponto de exposição em condições de maré enchente, porque L_u é a distância máxima a que o RDN pode ser transportado pela maré. Nestas condições, a concentração de RDN no ponto de exposição é nula:$

$$C_{\rm wt} = 0$$
 (5-87)

iv. Se a exposição ocorre a montante do ponto de descarga, a uma distância inferior a L_u, ou seja, $7 \cdot D_r < |x| \le L_u = 0,32 \cdot |U_f| \cdot T_p$ ou a jusante do ponto de descarga (para além da distância à qual ocorre a mistura completa na vertical) para uma distância superior a L_z , $x > 7 \cdot D_r (x > L_z)$, a estimativa da concentração do RDN no ponto de exposição deve contemplar a mistura parcial. Nestes casos, considera-se a mistura igual em qualquer direcção do rio a montante ou a jusante do ponto de descarga. A metodologia é semelhante à descrita para os rios, no entanto, mais complexa devido aos efeitos da maré no estuário. Os parâmetros necessários aos cálculos são descritos a seguir (IAEA, 2001).

O quociente (M') entre o período da maré (T_p) e a escala temporal para a mistura na secção recta é dado pela mesma expressão definida anteriormente por (5-38) (Fisher et al., 1979):

$$M' = \frac{0.3 \cdot D_r \cdot U_t \cdot T_p}{B_r^2}$$
(5-88)

O quociente entre o coeficiente de dispersão longitudinal de um estuário e de um rio é descrito pelo parâmetro N_q . Os seus valores são apresentados na bibliografia em função do parâmetro M´ e encontram-se transcritos na tabela D-3, do anexo D. Se estes dois parâmetros são conhecidos, é possível estimar o índice de mistura parcial, (A_{ip}) para um estuário (IAEA, 2001):

$$A_{ip} = \frac{1.5 \cdot D_r \cdot x}{N_a \cdot B_r^2} \cdot \frac{U}{U_t}$$
(5-89)

A concentração do RDN à distância x, a montante ou a jusante, do ponto de descarga no estuário, considerando os coeficientes de dispersão longitudinal e lateral, por defeito descritos na bibliografia, pode ser estimada pela mesma expressão definida anteriormente por (5-45):

$$\mathbf{C}_{\mathrm{wt}} = \mathbf{C}_{\mathrm{te}} \cdot \mathbf{P}_{\mathrm{ee}} \tag{5-90}$$

O coeficiente de mistura (P_{ee}) é uma função do índice de mistura parcial (A_{ip}) e pode ser obtido relacionando a mistura parcial no estuário com o índice A_{ip} . Este parâmetro P_{ee} pode ser considerado um factor de correcção para a mistura parcial e aproxima-se da unidade à medida que a distância aumenta, analogamente a P_{rr} . Se $P_{ee} < 1$, deve assumir-se P_{ee} igual à unidade (IAEA, 2001):

$$x > \frac{0.6 \cdot B_r^2}{D_r}, P_{ee} \cong 1$$
 (5-91)

5.3.3.3 Águas costeiras

As tentativas mais recentes de estimar o comportamento da libertação de RDN em águas costeiras tiveram por base experiências com traçadores para estimar a diluição provocada pelos fluxos da maré e o transporte pelas correntes induzidas pelo vento (Seligman, 1955). Esta abordagem é, contudo, restrita à vizinhança do ponto onde ocorre a descarga, pois verifica-se que existe uma transferência dos RDN da escala local para a escala regional por processos advectivos que pode ser descrita por um modelo matemático com base na expressão de advecção-difusão no estado estacionário.

Para estimar a concentração de RDN neste tipo de massa de água é necessário definir os seguintes parâmetros:

- profundidade do local onde se dá a descarga do efluente, Dr (m);
- distância entre o ponto de libertação e a linha de costa, y₀ (m);
- distância longitudinal (ao longo da corrente costeira) desde o ponto de libertação até ao receptor, x (m);
- constante de decaimento radioactivo, λ_i (s⁻¹);
- para a corrente costeira pode ser usado o valor por defeito, U = 0,1 m/s.



Considerando as áreas que satisfazem as seguintes condições:

Figura 5-1: Condições para aplicação do modelo às águas costeiras. Fonte: IAEA (2001).

A concentração de RDN na água superficial pode ser estimada para a distância x a que corresponde, por exemplo, um local de pesca (x = 50 vezes a profundidade, por defeito) (IAEA, 2001):

$$C_{wt} = \frac{962 \cdot U^{0,17} \cdot Q_i}{D_r \cdot x^{1,17}} e^{\left(-\frac{\lambda_i \cdot x}{U}\right)}$$
(5-94)

ou à distância x ao longo da linha de costa, definida anteriormente pela expressão (5-62) (IAEA, 2001):

$$C_{wt} = \frac{962 \cdot U^{0,17} \cdot Q_{i}}{D_{r} \cdot x^{1,17}} e^{\left(-\frac{(-7,28 \times 10^{5}) \cdot U^{2,34} y_{0}^{2}}{x^{2,34}}\right)} e^{\left(-\frac{\lambda_{i} \cdot x}{U}\right)}$$
(5-95)

A metodologia pode ser resumida nas seguintes etapas:

- calcular D_r, U_r, y₀;
- definir a distância x do ponto de descarga a que se pretende estimar a concentração;

- no caso da exposição ao longo da linha de costa, a concentração deve ser calculada pela expressão (5-95);
- para todos os outros pontos a concentração deve ser estimada pela expressão (5-94) à qual corresponde a distância onde os organismos aquáticos podem sofrer exposição aos RDN existentes na água.

5.3.3.4 Lagos e reservatórios

Os factores mais importantes na mistura em lagos são as ondas induzidas pelo vento, a turbulência, a estratificação e a diluição do contaminante na água. A estratificação, por exemplo, deve-se à radiação solar na superfície do lago que restringe a transferência dos RDN e limita a diluição apenas dentro da camada superior (epilímnio), quando se verifica a deposição de RDN na superfície do lago. Posteriormente, quando a mistura ocorre, a concentração pode diminuir drasticamente, principalmente quando a profundidade desta camada superior é relativamente pequena em relação à profundidade total do lago. A estratificação também afecta o tempo de residência da água do lago.

Os processos de mistura, a sedimentação e a ressuspensão das partículas afectam significativamente a distribuição da concentração do contaminante total no lago. A sedimentação, por si só é regulada pela adsorção das partículas e pelo débito de sedimentação no lago. A elevada adsorção e a elevada quantidade de matéria particulada são a principal causa da rápida remoção da actividade da coluna de água. Estes processos que influenciam a mistura deixam de ser relevantes quando se considera um modelo compartimental (*box model*), pois assume-se que a mistura é completa e instantânea.

Podemos classificar este grupo em dois subgrupos: lagos pequenos e grandes. Os lagos são considerados grandes se a massa de água ocupa uma área superficial de pelo menos 400 km². Nos lagos pequenos e/ou reservatórios, considera-se que a concentração de RDN é uniforme dentro do lago ou reservatório, logo a mistura é completa. A metodologia é a de *box model* ou de compartimento e pode ser representada pelo diagrama da Figura 5-2.



Figura 5-2: Aplicação do conceito de *box model* a um pequeno lago ou reservatório. Fonte: IAEA (2001).

Segundo o conceito de *box model* toda a massa de água (incluindo a camada de sedimentos) ou parte desta massa de água é representada como um compartimento homogéneo, no entanto, este tipo de modelo pode apresentar mais do que um compartimento dentro da massa de água, referindo-se, como por exemplo: um compartimento aos RDN nos sedimentos de fundo (compartimento dos sedimentos) e outro compartimento aos RDN na água (compartimento da água) (Heling et al., 1999). A aplicação deste tipo de modelos é limitada pelo facto do pressuposto da mistura completa dentro do compartimento.

Os parâmetros necessários para a estimativa da concentração no modelo compartimental são:

- caudal de entrada e de saída no lago, q_L (m³/s);
- a área da superfície do lago, A_L (m²);
- o volume do lago, V_L (m³) ou a profundidade média do lago, D_r (m);
- a deposição atmosférica, d_d (Bq.m⁻².d⁻¹);
- o tempo durante o qual ocorre a descarga de RDN no lago;
- a constante de decaimento radioactivo, λ_i (s⁻¹).

No caso de existirem outras fontes de contaminação além da descarga directa na massa de água, tais como a deposição atmosférica de RDN ou a contribuição resultante das escorrências, da erosão do solo superficial, do escoamento de águas subterrâneas, etc., estas devem ser consideradas na estimativa da concentração total de RDN na água. Partindo do pressuposto que a bacia hidrográfica do lago é 100 vezes superior à área da superfície do lago e que 2 % dos RDN depositados na bacia vão para o lago através das escorrências, da erosão do solo superficial e do escoamento subterrâneo, a contaminação total de RDN (anualmente) no lago pode ser quantificada por (IAEA, 2001):

$$Q'_{i} = Q_{i} + \frac{3 \cdot d_{d} \cdot A_{L}}{86\,400}$$
(5-96)

A deposição atmosférica (d_d , $Bq.m^{-2}.d^{-1}$) pode ser estimada pelo produto entre a velocidade de deposição (m/d) e a concentração de RDN existente na camada de ar por cima da superfície do lago (Bq/m^3).

Partindo do pressuposto de que quando t = 0 verifica-se que $C_{as} = 0$, a concentração de RDN no lago pequeno ou reservatório pode ser estimada pela mesma expressão definida anteriormente por (5-64) (IAEA, 2001):

$$\mathbf{C}_{wt} = \frac{\mathbf{Q'}_{i}}{\mathbf{q}_{L} + \lambda_{i} \cdot \mathbf{V}_{L}} \left\{ 1 - \mathbf{e}^{\left[- \left(\frac{\mathbf{q}_{L}}{\mathbf{V}_{L}} + \lambda_{i} \right) \mathbf{t} \right]} \right\}$$
(5-97)

Se verificar a seguinte condição, também já definida pela expressão (5-65):

$$\left(\frac{q_{L}}{V_{L}}+\lambda_{i}\right) > 10^{-8}, (s^{-1})$$
 (5-98)

então a concentração do RDN encontra-se em estado estacionário (temporalmente independente) e pode ser estimada pela mesma expressão definida anteriormente por (5-67) (IAEA, 2001):

$$C_{wt} = \frac{Q'_i}{q_L + \lambda_i \cdot V_L}$$
(5-99)

Considera-se neste estudo que lagos grandes são massas de água com elevado tempo de residência ($\tau_r = V_L/q_r$) e com elevadas correntes induzidas pelo vento. O transporte dos RDN resulta essencialmente da corrente induzida pelo vento, da estratificação e da mistura, analogamente ao que se verifica no caso das águas costeiras (USNRC, 1977).

Num lago com elevado tempo de residência verifica-se que a mistura completa ocorre num período de tempo curto (muito menos do que 1 ano), devido a um elevado

coeficiente de dispersão variável com a distância (USNRC, 1978). No entanto, próximo do ponto de descarga, a mistura completa não se verifica. Desta forma, a concentração de RDN é estimada a partir da metodologia desenvolvida para a mistura parcial aplicada às águas costeiras. Os parâmetros necessários são os mesmos usados no caso dos estuários. Se a velocidade da corrente (U) não é conhecida, pode adoptar-se o valor por defeito igual a 1 m/s.

No caso de se considerar a mistura parcial, a concentração de RDN é estimada com as expressões anteriores apresentadas para os estuários.

A concentração dos RDN não dissolvidos ao longo da pluma de dispersão (no centro da linha), pode ser estimada por (IAEA, 2001):

$$C_{wt} = \frac{962 \cdot U^{0,17}}{D_r \cdot x^{1,17}} Q_i \ e^{\left(-\frac{\lambda_i \cdot x}{U}\right)}$$
(5-100)

A concentração de RDN ao longo da linha de costa pode ser estimada por (IAEA, 2001):

$$C_{wt} = \frac{962 \cdot U^{0,17}}{D_r \cdot x^{1,17}} Q_i e^{\left[\frac{(-7,28 \times 10^5) U^{2,34} \cdot y_0^2}{x^{2,34}}\right]} e^{\left(-\frac{\lambda_i \cdot x}{U}\right)}$$
(5-101)

De igual modo como quando aplicada às águas costeiras, a metodologia tem de verificar as seguintes condições:

$$7 \cdot D_r < x$$
 (5-102)

$$\left|\frac{y-y_0}{x}\right| < 3.7 \tag{5-103}$$

5.3.3.5 Efeitos dos sedimentos

Uma água extremamente limpa tem uma concentração normal em partículas de 1 mg/L. Contudo, na maior parte das situações, a concentração é mais elevada variando entre 5 e 20 mg/L (Fiúza, 2003). As partículas são constituídas por material argiloso ou silicioso e por detritos de matéria orgânica designado genericamente por húmus, ácidos húmicos ou ácidos fúlvicos e ainda mais genericamente por matéria orgânica. As partículas materiais servem como veículo de transporte dos

contaminantes para o fundo dos cursos de água onde se depositam na forma de sedimentos.

5.3.3.5.1 Sorção e retenção

Os sedimentos podem interactuar com os RDN dissolvidos na água, originando uma diminuição dos RDN na fase dissolvida devido à absorção dos RDN pelas partículas dos sedimentos. Consequentemente, os RDN presentes nos sedimentos suspensos, nas margens e no fundo da massa de água vão aumentar devido à absorção e à deposição das partículas.

A permuta dos RDN entre a fase dissolvida e a fase sorvida pelos sedimentos pode ser quantificada pelo coeficiente de distribuição K_d, (L/kg) para um dado RDN. Neste caso, o coeficiente de distribuição resulta do quociente entre a concentração de RDN sorvidos nos sedimentos por unidade de peso dos sedimentos (Bq/kg) e a concentração de RDN dissolvidos na água por unidade de volume de água, (Bq/L):

$$K_d = \frac{Concentração de RDN sorbidos nos se dimentos, Bq/kg}{Concentração de RDN dissolvidos na água, Bq/L}$$

O uso dos modelos com base no coeficiente de distribuição (K_d) é bastante frequente pelo facto de ser relativamente fácil a sua determinação em laboratório com a recolha de dados do campo. No entanto, os valores determinados são dependentes do local no qual foram obtidos os dados e, que de certa forma, quantifica uma série de processos físicos e químicos que controlam a retenção dos RDN nesse local, em particular. Esta abordagem assume ainda um completo equilíbrio de sorção.

Em estuários, é comum assumir condições de equilíbrio entre as duas fases, onde geralmente as concentrações são relativamente baixas para se considerar um modelo de isotérmica de adsorção linear. Uma consequência deste modelo é que a adsorção do contaminante à fase sólida é independente da concentração na fase aquosa. Desta forma, podemos definir um coeficiente de partição adimensional (K'_p) com base na hipótese de completa reversibilidade (Portela, 1997):

$$\mathbf{C}_{\mathbf{p}}^{\mathbf{s}} = \mathbf{K'}_{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{C}_{\mathbf{d}}$$
(5-104)

C^s_p: razão entre a massa de soluto e a massa de adsorvente [M.M⁻¹]

K'_d: coeficiente de partição, [L.M⁻³]

C_d: concentração de soluto na solução em condições de equilíbrio, [M.L⁻³].

A concentração total de um contaminante (C_T) será a soma da concentração na fase dissolvida (C_d) com a concentração sorvida às partículas sólidas em suspensão, ou seja, na fase particulada (C_{pu}). Esta última pode ser obtida pela relação com a concentração de sólidos no meio (C_s) [M.L⁻³].

$$C_{T} = C_{d} + C_{pu}$$
 (5-105)

$$C_{pu} = C_{p}^{s} + C_{s}$$
 (5-106)

Donde se pode definir o coeficiente de partição adimensional:

$$K'_{p} = \frac{C_{p}^{s} \cdot C_{s}}{C_{ws}} = \frac{C_{pu}}{C_{ws}}$$
 (5-107)

bem como a fracção de composto dissolvido na água (f_w) e a fracção de composto sorvido (ou na fase particulada) (f_f):

$$\mathbf{C}_{\mathsf{pu}} = \mathbf{K}_{\mathsf{p}} \cdot \mathbf{C}_{\mathsf{ws}}$$
(5-108)

$$C_{T} = C_{ws} + C_{pu} = C_{ws} + K'_{d} \cdot C_{ws} = C_{ws} \cdot (1 + K'_{d})$$
 (5-109)

$$f_{w} = \frac{C_{ws}}{C_{T}} = \frac{C_{ws}}{C_{ws} + C_{pu}} = \frac{C_{ws}}{C_{ws} + K'_{d} \cdot C_{ws}} = \frac{1}{(1 + K'_{d})}$$
(5-110)

$$f_{f} = \frac{C_{pu}}{C_{T}} = \frac{C_{pu}}{C_{ws} + C_{pu}} = \frac{C_{ws} \cdot K'_{d}}{C_{ws} + K'_{d} \cdot C_{ws}} = \frac{K'_{d}}{(1 + K'_{d})}$$
(5-111)

5.3.3.5.2 Concentração de radionuclídeos dissolvidos na água

A concentração de RDN dissolvidos na água superficial (C_{ws} , Bq/m³), pode ser estimada por (IAEA, 2001):

$$C_{w_{s}} = \frac{C_{wt}}{1 + 0,001 \cdot K_{d} \cdot C_{su}}$$
(5-112)

C_{su}: concentração dos sedimentos suspensos, kg/m³ ou g/L;

10⁻³: conversão de unidades de L/kg a m³/kg.

A dose resultante da exposição através da ingestão (de água, peixes, etc.) deve ser estimada com base na concentração total na água (incluindo os sedimentos).

A concentração de RDN nos sedimentos só deve ser considerada separadamente no caso das doses estimadas resultarem da exposição apenas neste meio.

A concentração total de RDN na água (C_{wt}) é estimada com as expressões já descritas anteriormente, de acordo com o tipo de massa de água a considerar.

Os valores de K_d são afectados pelo tipo de sedimentos, pela qualidade da água e por outras características específicas do local podendo variar em várias ordens de grandeza para cada RDN.

A concentração nos sedimentos suspensos vai variar dependendo das características da massa de água. Na ausência de dados específicos referentes a um local em particular, a Agência Internacional de Energia Atómica (IAEA, 2001) sugere que se adoptem os seguintes valores para cada tipo de massa de água: estuário – 0,05 kg/m³; rios e lagos – 0,05 kg/m³; águas costeiras – 0,01 kg/m³.

5.3.3.5.3 Concentração de radionuclídeos nos sedimentos suspensos

A concentração de RDN adsorvida pelos sedimentos suspensos ($C_{sw,}$ Bq/kg), pode ser obtida por:

$$C_{sw} = \frac{0,001 \cdot K_{d} \cdot C_{wt}}{1 + 0,001 \cdot K_{d} \cdot C_{su}} = 0,001 \cdot K_{d} \cdot C_{ws}$$
(5-113)

No caso da água superficial contaminada ser usada para ingestão, os processos de tratamento da água removem os sedimentos suspensos, não constituindo perigo por ingestão nesta forma. A concentração nos sedimentos pode ser importante no caso da exposição ocorrer através do uso destes como solo superficial.

5.3.3.5.4 Concentração de radionuclídeos nos sedimentos de fundo

Os sedimentos de fundo contaminados com RDN podem resultar da deposição de uma fracção de sedimentos suspensos, nos quais os RDN estarão adsorvidos, e na directa adsorção pelos sedimentos de fundo dos RDN dissolvidos na água. Os valores aparentes de K_d para este tipo de sedimentos são da ordem de 1/10 do valor de K_d associado com os sedimentos suspensos (IAEA, 2001).

Considerando-se os efeitos do decaimento radioactivo durante a acumulação dos RDN no fundo do rio, a estimativa da concentração de RDN nos sedimentos de

fundo (C_{sb} , Bq/kg) pode ser estimada de acordo com a seguinte expressão (IAEA, 2001):

$$C_{sb} = \frac{(0,1) \cdot (0,001) \cdot K_{d} \cdot C_{wt}}{1 + 0,001 \cdot C_{su} \cdot k_{d}} \cdot \frac{1 - e^{(-\lambda_{i} \cdot T_{e})}}{\lambda_{i} \cdot T_{e}} = 0,1 \cdot C_{sw} \cdot \frac{1 - e^{-\lambda_{i} \cdot T_{e}}}{\lambda_{i} \cdot T_{e}}$$
(5-114)

em que T_e é o tempo de acumulação efectiva, em segundos. Considera-se o valor de T_e , por defeito, igual a 1 ano (3,15 x 10⁷ s). Este valor corresponde ao tempo durante o qual os sedimentos de fundo migram rio abaixo (à excepção dos pequenos lagos sem corrente de fluxo) ou são sobrepostos por camadas de sedimentos mais recentes (IAEA, 2001). Com efeito, a camada mais recente é a mais relevante em que houve menos tempo para que os RDN sofressem decaimento radioactivo.

5.3.3.5.5 Concentração de radionuclídeos nos sedimentos de costa

A concentração da actividade na superfície dos sedimentos da linha de costa (ou nas praias) (Bq/m²), considerando que o decaimento radioactivo ocorre enquanto os RDN estão a acumular-se nos sedimentos da costa (ou de praia), pode ser estimada por (IAEA, 2001):

$$\mathbf{C}_{ss} = \frac{(0,1) \cdot (0,001) \cdot \mathbf{K}_{d} \cdot 60 \cdot \mathbf{C}_{wt}}{1 + 0,001 \cdot \mathbf{C}_{su} \cdot \mathbf{K}_{d}} \cdot \left(\frac{1 - e^{-\lambda_{i} \cdot \mathbf{T}_{e}}}{\lambda_{i} \cdot \mathbf{T}_{e}}\right) = 60 \cdot \mathbf{C}_{sb}$$
(5-115)

O valor de 60 kg/m² representa a densidade considerada para a camada superior (5 cm) e para os sedimentos (IAEA, 2001).

5.3.3.6 Transferência para a biota aquática

Os RDN existentes num ambiente aquático também podem ser assimilados pelos organismos vivos. Os peixes têm tendência a bioacumular os compostos orgânicos e os metais pesados, sendo portanto, monitores do estado de contaminação de lagos e de cursos de água. Alguns dos RDN assimilados são transferidos na cadeia alimentar aquática constituindo uma trajectória de exposição para os humanos. Os modelos apresentados pretendem descrever o transporte dos RDN na água superficial até aos pontos de exposição e a consequente transferência para o biótipo aquático.

A bioacumulação nos peixes é regulada pelo tempo de retenção ou pelo tempo de semi-vida biológico do RDN no peixe. O tempo de semi-vida biológico é definido como o tempo que o organismo aquático necessita para eliminar cerca de 50 % do RDN (um composto ou químico) numa base estritamente biológica (EPA, 2006). Quanto maior o tempo da semi-vida biológica de um RDN num organismo específico, mais tempo decorre até atingir o pico da concentração no organismo aquático. O órgão alvo também é importante porque diferentes RDN podem ter diferentes órgãos alvos.

A concentração de RDN nos organismos vivos resultante da contaminação da água, pode ser estimada pelo factor de bioacumulação que representa o quociente entre a concentração de RDN nos organismos aquáticos e a concentração de RDN dissolvidos na água (Bq.kg⁻¹/Bq.L⁻¹) no equilíbrio:

$$C_{af} = C_{as} \cdot B_{p} / 1000$$
 (5-116)

- Caf: concentração dos RDN nos organismos aquáticos, (Bq/kg)
- C_{as}: concentração dos RDN dissolvidos na água, (Bq/m³)
- B_p: factor de bioacumulação, (L/kg)
- 10^3 : factor de conversão de m³ a L.

O factor de bioacumulação (B_p) é bastante variável sendo influenciado, além do nível trófico do organismo, por outros factores de que depende este parâmetro:

- i) a concentração dos sedimentos suspensos;
- ii) a composição química da água;
- iii) o estado químico do RDN libertado;
- iv) as características específicas do organismo aquático.

Na bibliografia é possível encontrar estimativas genéricas de valores para o parâmetro B_p. Alguns destes valores encontram-se transcritos na tabela D-4 do anexo D, em função do elemento específico (IAEA, 2001).

Relativamente ao ajuste de B_p para o efeito dos sedimentos suspensos, no caso de estimativas genéricas e por questões de simplificação, deve usar-se a concentração total de RDN (C_{wt}) em vez da concentração de RDN dissolvidos (C_{ws}) apesar das partículas radioactivas dos RDN poderem estar adsorvidas nas partículas suspensas encontram-se indisponíveis para absorção biológica o que resultaria numa sobrestimativa do resultado (IAEA, 2001). No entanto, se esta trajectória é importante e são necessárias estimativas mais precisas, então deve usar-se a concentração dos RDN dissolvidos.

A concentração de RDN no estado estacionário na biota aquática, e em particular nos peixes, perto do ponto de descarga, é estimada pelo factor de

bioacumulação (B_p) e pela concentração no ponto de descarga (C_{od}) para a condição inicial C(0) = C_{od}, com uma correcção para as espécies dissolvidas (Fiúza, 2003):

$$C_{peixe} = B_p \cdot C_{od} \cdot f_w$$
(5-117)

A transferência dos RDN para o biótipo aquático é assim descrita através do factor de bioacumulação.

A concentração mínima no ponto de exposição é obtida à distância x da origem na qual a concentração do contaminante é C_{wt} (Fiúza, 2003):

$$\mathbf{C}_{\text{peixe,min}} = \mathbf{B}_{p} \cdot \mathbf{C}_{wt} \cdot \mathbf{f}_{w}$$
(5-118)

A concentração em equilíbrio nos sedimentos pode ser calculada a partir de C_{od} ou de C_{wt} usando os coeficientes de partilha e o factor f_w (Fiúza, 2003):

$$\mathbf{C}_{s,max} = \mathbf{C}_{od} \cdot \mathbf{f}_{w} \cdot \mathbf{K}_{sw}$$
(5-119)

$$\mathbf{C}_{s,min} = \mathbf{C}_{wt} \cdot \mathbf{f}_{w} \cdot \mathbf{K}_{sw}$$
(5-120)

sendo o K_{sw}, o coeficiente de partilha sedimentos-água, calculado por (Fiúza, 2003):

$$K_{sw} = \frac{C_{sw}}{C_{wt}} = \frac{K_s}{\rho_w} + \theta$$
(5-121)

e θ a porosidade preenchida com água.

5.3.4 Conclusões

As simplificações adoptadas no modelo genérico de transporte na água superficial restringem a sua aplicação condicionando-o aos casos em que não há uma variação significativa da geometria da massa de água (secção recta do rio) com a distância, as características do fluxo (velocidade do fluxo, profundidade da água) não variam significativamente com a distância ou no tempo e os RDN presentes na água com origem numa libertação contínua a longo prazo encontram-se em equilíbrio.

As previsões do modelo genérico podem ser, em certa medida, conservativas, como consequência de algumas das condições estabelecidas:

O ponto de localização da exposição é intencionalmente escolhido;

- Os valores adoptados por defeito para o fluxo, velocidade da corrente e profundidade da água são representativos dos menores valores (média anual) que ocorreram num período de 30 anos;
- As concentrações de RDN são calculadas ao longo da linha central da pluma, à excepção do caso particular de cálculo ao longo da linha de costa;
- Assume-se que os RDN são libertados ao longo de uma das margens do rio, estuário ou lago grande, restringindo desta forma a mistura;
- Ao excluir o efeito de adsorção dos sedimentos maximiza-se a estimativa da concentração de RDN na água, sobrestimando este valor.

Ao modelo genérico está também associada uma parte de incerteza resultante da diferença entre a situação real e os pressupostos assumidos. Apesar da solução analítica da expressão genérica de advecção-difusão ser frequentemente usada em abordagens semelhantes (IAEA, 2001) não foi possível quantificar a incerteza em todas as potenciais aplicações do modelo. No entanto, é possível apontar algumas situações de onde esperar que haja incerteza na aplicação do modelo genérico.

Para a estimativa da concentração de RDN nas zonas parcialmente misturadas da massa de água considerada, a geometria desta e as características do fluxo devem ser relativamente constantes. No entanto, se ocorrerem alterações significativas nas características da geometria ou do fluxo entre o ponto de libertação e o ponto de exposição deve-se estimar os valores da concentração superior e inferior de RDN com os valores extremos das alterações verificadas. Depois de se ter atingido a mistura, as alterações deixam de ser críticas.

O cálculo da adsorção dos sedimentos é uma potencial fonte de erro significativo. O quociente entre os RDN sorvidos nos sedimentos para os RDN dissolvidos é o produto entre o coeficiente de distribuição (K_d, L/kg) e uma milionésima parte da concentração dos sedimentos suspensos (C_{su}, kg/m³ ou g/L). Se este produto for inferior a 1, o erro na estimativa da adsorção pelos sedimentos não é significativo, mas se for muito superior, então os valores dos parâmetros K_d e C_{su} devem ser obtidos localmente no local em estudo para diminuir o potencial erro na estimativa da concentração de RDN (IAEA, 2001).

5.4 Exploração do modelo

No modelo de transporte e transferência no meio aquático podemos ter várias situações diferentes consoante o tipo de massa de água que se considera e também, no caso dos sedimentos, o tipo de sedimentos (suspensos, de fundo, de praia ou costa). A exploração do modelo vai ser faseada para cada um dos tipos de águas superficiais e para os sedimentos, através de submodelos que consideram as diferentes características de cada um dos meios considerados. Na exploração do modelo exemplificamos um caso para cada um destes meios e uma aplicação a um caso real, a um estudo de caso, a envolvente da área mineira da Urgeiriça que se situa em pleno vale aluvionar da ribeira da Pantanha.

Os valores dos parâmetros de entrada foram adaptados, em alguns casos, da bibliografia consultada. No caso de estudo em particular, tentou-se sempre que possível, usar valores específicos do local escolhido.

Na simulação do transporte de RDN nas águas superficiais consideraram-se 4 RDN principais que podem estar incorporados nos efluentes a descarregar nas águas superficiais: ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²³⁰Th e ²¹⁰Pb.

5.4.1 Exploração do modelo para um caso teórico

5.4.1.1 Rios

Os parâmetros de entrada do modelo, no caso dos rios, são os seguintes:

Parâmetros	Unidades			
Q _i , descarga anual do RDN i na água superficial	Bq/s			
Q _e , caudal do efluente	m³/s			
λ_i , constante de decaimento radioactivo do RDN i				
<u>B</u> , largura média do rio	m			
<u>q</u> r, caudal médio anual do rio				
q _r , caudal mínimo do rio que corresponde ao período de 30 anos				
B _r , largura do rio	m			
D _r , profundidade do rio	m			
x, distância entre o ponto de descarga e a localização da exposição	m			

Tabela 5-2: Parâmetros necessários à exploração do modelo no caso dos rios.

A metodologia de cálculo a adoptar deve ser a seguinte:

- Definir a distância x à qual ocorre a exposição;
- Se as características do fluxo do rio: caudal (q_r), velocidade (U), largura do rio (B_r) e profundidade (D_r) não são conhecidas, podem ser deduzidas pela seguinte metodologia:
 - o estimar a largura média do rio, <u>B</u>
 - o deduzir <u>q</u>, pela tabela D-1 do anexo D
 - calcular $q_r (q_r = \underline{q}_r/3)$
 - \circ deduzir B_r pela tabela D-1 do anexo D, em função do q_r calculado
 - deduzir D_r pela tabela D-1 do anexo D, em função do q_r calculado
 - calcular a velocidade por $U = q_r/(B_r.D_r)$.

As tabelas do anexo D foram elaboradas com base em estudos hidrológicos desenvolvidos por Leopold et al. (1964) dos quais deduziu as expressões (5-2) e (5-3) (Fisher et al., 1979).

Consoante a localização da exposição (x) podemos ter presentes três situações:

 Se x está localizado na margem oposta onde ocorre a descarga: o transporte de RDN ocorre pelo menos até metade da largura do rio para chegar ao ponto de exposição e neste caso a concentração de RDN na água é estimada pela expressão (5-77):

$$\mathbf{C}_{\mathsf{wt}} = \frac{\mathbf{Q}_{\mathsf{i}}}{\mathsf{q}_{\mathsf{r}}} \exp\!\left(-\frac{\lambda_{\mathsf{i}} \cdot \mathbf{x}}{\mathsf{U}}\right) = \mathbf{C}_{\mathsf{t}}$$

 Se x está localizado na mesma margem onde ocorre a descarga e x ≤ 7.D_r, considera-se que a exposição vai ocorrer antes de se verificar a mistura completa na vertical, isto é, não há diluição, e a concentração no ponto de exposição é igual à concentração da descarga dada pela expressão (5-78):

$$C_{wt} = C_{od} = Q/Q_e$$

3. Se x está localizado na mesma margem onde ocorre a descarga e x > 7.D_r, então é necessário calcular o índice de mistura parcial pela expressão (5-79) e obter pela tabela D-2 do anexo D o factor de correcção para a mistura parcial (P_{rr}). A concentração na água é estimada pela expressão (5-77) modificada pelo factor de correcção P_{rr}.

$$C_{wt} = \frac{Q_i}{q_r} exp\left(-\frac{\lambda_i \cdot x}{U}\right) \cdot P_{rr} = C_t \cdot P_{rr}$$

Alternativamente, P_{rr} pode ser calculado directamente incorporando no modelo uma função de Bassel modificada, de segundo tipo e ordem zero (IAEA, 2001).

Como se desconhecem as características do fluxo do rio, é necessário seguir a metodologia de cálculo sugerida anteriormente. A exploração do modelo foi efectuada para o Ra, Pb, Th, U e os valores de entrada no modelo encontram-se na Tabela 5-3.

Parâmetros	Valores	Ref. ^a		
Q(²²⁶ Ra) (Bq/s)	34,82	(1)		
Q(²¹⁰ Pb) (Bq/s)	24,47	(1)		
Q(²³⁰ Th) (Bq/s)	0,04	(1)		
Q(²³⁸ U) (Bq/s)	49,38	(1)		
Q _e (m ³ /s)	0,769	(USNRC, 1978)		
λ(²²⁶ Ra) (s ⁻¹)	1,36 x 10 ⁻¹¹	-		
λ(²¹⁰ Pb) (s ⁻¹)	9,98 x 10 ⁻¹⁰	-		
λ(²³⁰ Th) (s ⁻¹)	2,85 x 10 ⁻¹³	-		
λ(²³⁸ U) (s ⁻¹)	4,92 x 10 ⁻¹⁸	-		
x (m)	1000	(USNRC, 1978))		
<u>B</u> (m)	50	(USNRC, 1978)		
<u>q</u> r (m³/s)	30	(USNRC, 1978)		
q _r (m³/s)	10	(USNRC, 1978)		
B _r (m)	28,8	(USNRC, 1978)		
D _r (m)	0,48	(USNRC, 1978)		
U (m/s)	0,72	(USNRC, 1978)		

Tabela 5-3: Valores de entrada para a exploração do modelo aplicado aos rios.

Os valores identificados por (1) têm origem na exploração do modelo do capítulo 4 para cada RDN.

Uma vez que a distância x, onde se considera que ocorre a exposição, é superior à distância longitudinal necessária para atingir a mistura completa, definida por L_z (7. D_r = 3,36 m), é necessário corrigir a concentração na água pelo factor de correcção de mistura parcial (P_{rr}). Este factor pode ser obtido pela consulta da tabela D-2, em anexo, cujos valores foram obtidos em função do índice de mistura calculado (A_{ip}) ou pode ser directamente calculado pela função de Bessel modificada de 2.º tipo e ordem zero. Os resultados obtidos encontram-se na Tabela 5-4.

Parâmetros	Resultados
L _z (m)	3,36
A _{ip} (-)	0,87
P _{rr} (-)	2,70
C_{wt} (Ra) = C_t (Bq/m ³)	3,48
C_{wt} (Pb) = C_t (Bq/m ³)	2,45
C_{wt} (Th) = C_t (Bq/m ³)	0,004
$C_{wt}(U) = C_t(Bq/m^3)$	4,94
$C_{wt} (Ra) = C_t P_{rr} (Bq/m^3)$	9,49
$C_{wt} (Pb) = C_t P_{rr} (Bq/m^3)$	6,67
C_{wt} (Th) = $C_t P_{rr}$	0,01
$C_{wt}(U) = C_t P_{rr}$	13,46

Tabela 5-4: Valores obtidos no modelo de transporte de RDN nos rios.

A concentração de RDN completamente misturados (ao longo da secção recta do rio), isto é, na margem oposta onde ocorre a descarga, à distância de 1000 m a jusante do ponto de descarga, é dada por C_t. A concentração na margem onde ocorre a descarga, para a mesma distância do ponto de descarga, é dada por C_{wt}.

Se considerarmos o caso oposto em que a exposição ocorre a uma distância inferior a 7.D_r = 3,36 m, a concentração de RDN na água é igual a $C_{od} = Q_i/Q_e$.

Tabela 5-5: Concentração média de cada RDN no ponto de descarga.

Parâmetros	Resultados
C _{od} (Ra) (Bq/m ³)	45,28
C_{od} (Pb) (Bq/m ³)	31,82
C_{od} (Th) (Bq/m ³)	0,05
C_{od} (U) (Bq/m ³)	64,21

Podemos ainda fazer a variação da concentração com a distância à medida que x (e consequentemente a localização do ponto de exposição) se distancia do ponto de descarga. Os resultados obtidos apresentam-se nas figuras seguintes: Figura 5-3, Figura 5-4, Figura 5-5 e Figura 5-6, para o ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²³⁰Th e ²³⁸U, respectivamente.



Figura 5-3: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga (rios).



Figura 5-4: Concentração de ²¹⁰Pb em função da distância ao ponto de descarga (rios).



Figura 5-5: Concentração de ²³⁰Th em função da distância ao ponto de descarga (rios).



Figura 5-6: Concentração de ²³⁸U em função da distância ao ponto de descarga (rios).

5.4.1.2 Estuários

Considera-se o mesmo efluente do caso anterior com a mesma concentração em ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²³⁰Th e ²³⁸U. Os parâmetros de entrada no modelo são os seguintes:

Tabela 5-6: Parâmetros necessários à exploração do modelo no caso dos estuários.

Parâmetros	Unidades
q_r , caudal mínimo do rio que corresponde ao período de 30 anos	m³/ano
U _e , velocidade do fluxo na maré vazante	m/s
U _f , velocidade do fluxo na maré enchente	m/s
T _p , período da maré	S
q _w , caudal em presença da maré	m³/ano

Supõe-se a existência de maré semidiurna (ocorre 2 vezes ao dia) e adoptouse para a velocidade máxima da maré enchente e da maré vazante em ambos os casos, o valor por defeito descrito na bibliografia é igual a 1 m/s. O caudal mínimo do rio (valor médio anual) no período de 30 anos é de 20 m³/s e corresponde ao lado do estuário constituído pelo rio e por isso não tem o efeito da maré. A largura e profundidade média do estuário são 100 e 2 m, respectivamente. A exposição ocorre a cerca de 1 km do ponto de descarga na mesma margem onde ocorre a descarga.

A exploração efectuada para os mesmos RDN considerados anteriormente: ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²³⁰Th e ²³⁸U, teve como dados de entrada os valores que constam na Tabela 5-7.

Tabela 5-7: Valores de entrada para a exploração do modelo no caso dos estuários.

Parâmetros	Valores
q _r (m ³ /s)	20
B _r (m)	100
D _r (m)	2
U _e (m/s)	1
U _f (m/s)	1
T _p (s)	45 000

É necessário calcular ainda a velocidade média do fluxo do rio (U) o caudal em presença da maré (q_w) a velocidade média do fluxo da maré (U_t) e uma vez que a exposição ocorre a montante do local de descarga (para nascente), é necessário estimar a distância até onde os RDN podem ser transportados (L_u). Dado que x > L_z ,

 $(L_z = 7.D_r = 14 \text{ m e x} = 1000 \text{ m})$ os RDN vão ser efectivamente transportados até ao local de exposição.

A concentração de RDN completamente misturada pode ser obtida por C_t e no caso de se considerar a mistura parcial, a concentração pode ser estimada por C_{as} .

Para estimar o coeficiente de mistura parcial (P_{ee}) é necessário primeiro estimar o parâmetro M' = (0,3.D_r U_t T_p)/(B_r²), deduzir N_q da tabela D-2 do anexo D, em função do M' calculado, calcular o índice de mistura parcial para os estuários: A_{ip} = (1,5.D_r.U.x)/(U_t.N_q.B_r²) e calcular P_{ee} através da expressão (5-48), em função de A_{ip} e do valor de N_q calculado. Estes resultados encontram-se na Tabela 5-8.

Tabela 5-8: Valores obtidos no modelo de transporte de RDN nos estuários.

Parâmetros	Resultados
U (m/s)	0,1
U _t (m/s)	0,64
q _w (m ³ /s)	128
L _u (m)	14 400
C _t (Ra) (Bq/m ³)	0,27
C _t (Pb) (Bq/m ³)	0,19
C _t (Th) (Bq/m ³)	0,00031
C _t (U) (Bq/m ³)	0,39
C _{wt} (Ra) (Bq/m ³)	0,93
C _{wt} (Pb) (Bq/m ³)	0,66
C _{wt} (Th) (Bq/m ³)	0,0011
C _{wt} (U) (Bq/m ³)	1,33

A metodologia de cálculo a adoptar deve ser a seguinte:

- Definir a distância x à qual ocorre a exposição;
- Estimar os parâmetros B_r, D_r, T_p, U_e e U_f para o estuário;
- Deduzir as características do fluxo do rio: caudal (q_r); velocidade (U); largura do rio (B_r) e profundidade (D_r) se não são conhecidas:
 - o estimar a largura média do rio, B;
 - o deduzir \underline{q}_r pela tabela D-1 do anexo D;
 - o calcular $q_r (q_r = \underline{q}_r/3)$;
 - o deduzir B pela tabela D-1 em função de q_r calculado;
 - o deduzir D pela tabela D-1 em função de q_r calculado;
 - calcular a velocidade por $U = q_r/(B_r.D_r)$;

- Calcular $U_t = 0.32.(|U_e| + |U_f|);$
- Calcular $q_w = D_r U_t B_r$;
- Calcular $U = q_r/B_r.D_r$.

Consoante a localização do ponto de exposição podemos considerar quatro situações:

1 Se a exposição ocorre na margem oposta à qual onde ocorre a descarga, expressão (5-85):

$$C_{wt} = \frac{Q_i}{q_w} e^{\left(-\frac{\lambda_i \cdot x}{U}\right)} = C_{te}$$

2 Se a exposição ocorre quer a montante quer a jusante do ponto de descarga, mas para distâncias $|x| \le L_z = 7 \cdot D_r$, expressão (5-86):

$$C_{wt} = C_{od}$$

- 3 Se a exposição ocorre a montante do ponto de descarga e para uma distância de $|x| > L_u = 0.32 \cdot |U_f| \cdot T_p$, expressão (5-87):
 - $C_{wt} = 0$
- 4 Se a exposição ocorre a montante do ponto de descarga, a uma distância $7 \cdot D_r < \left|x\right| \le L_u = 0.32 \cdot \left|U_f\right| \cdot T_p ~\text{ou a jusante do ponto de descarga (para além da$ distância à qual ocorre a mistura completa na vertical) para uma distância L_z, $x > 7 \cdot D_r$ (x > L_z) deve considerar-se a mistura parcial. Os parâmetros a definir são: M', N_q, A_{ip} e P_{ee}. Para estimar o coeficiente de mistura parcial (P_{ee}) é necessário primeiro calcular M' pela expressão (5-88), deduzir N_a da tabela D-2 do anexo D, em função do M' calculado, calcular o índice de mistura parcial (Aip) para os estuários pela expressão (5-89) e calcular o valor de Pee, pela expressão (5-90), em função de A_{ip} e do N_q calculado. O valor de P_{ee} também pode ser estimado directamente pela função de Bessel através da expressão (5-48). Os resultados obtidos encontram-se representados nas figuras seguintes: Figura 5-7, Figura 5-8, Figura 5-9 e Figura 5-10 para os RDN ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²³⁰Th, ²³⁸U, respectivamente. A descontinuidade que se verifica nestas figuras, na linha que representa a concentração na mesma margem onde ocorre a descarga, corresponde ao ponto da mistura completa na vertical, o que significa que ocorreu diluição da concentração e consequentemente a diminuição da concentração.



Figura 5-7: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga (estuários).



Figura 5-8: Concentração de ²¹⁰Pb em função da distância ao ponto de descarga (estuários).



Figura 5-9: Concentração de ²³⁰Th em função da distância ao ponto de descarga (estuários).



Figura 5-10: Concentração de ²³⁸U em função da distância ao ponto de descarga (estuários).

5.4.1.3 Águas costeiras

A metodologia de cálculo a aplicar no caso de cálculo da concentração de RDN nas águas costeiras deve ser a seguinte:

- Definir a distância y₀ a que corresponde a distância entre o ponto de descarga e a linha de costa;
- Definir D_r, U e a distância x à qual ocorre a exposição. Esta distância pode ser considerada para duas situações representativas de uma potencial exposição: correspondente a uma zona de pesca (a exposição ocorre através da ingestão dos peixes) e para a linha de costa.

Considera-se que o ponto de descarga se situa a 50 m da costa ($y_0 = 50$ m). A concentração na água é estimada por C_{wt}, quando $y = y_0$, e este valor vai servir de base para estimar a actividade transferida para os peixes, constituindo assim um meio de exposição adicional pela sua ingestão. Os parâmetros de entrada do modelo, no caso das águas costeiras, são os seguintes:

Tabela 5	5-9: `	Valores	de	entrada	para	а	exploração	no	caso	das	águas	costeiras.
			~~~	0	P	~	en prorong en e				-gaac	

Parâmetros	Valores	Ref. ^a
Q( ²²⁶ Ra) (Bq/s)	34,82	(1)
Q( ²¹⁰ Pb) (Bq/s)	24,47	(1)
Q( ²³⁰ Th) (Bq/s)	0,04	(1)
Q( ²³⁸ U) Bq/s)	49,38	(1)
y ₀ (m)	50	(USNRC, 1978)
x (m)	2000	(USNRC, 1978)
T _p (s)	45 000	(USNRC, 1978)
q _r (m³/s)	20	(USNRC, 1978)
D _r (m)	30	(USNRC, 1978)
U (m/s)	0,1	(USNRC, 1978)

Para a distância x = 2000 m do ponto de descarga e para y = y₀ (50 m), a concentração de RDN na água é dada pela expressão (5-94). Os valores obtidos para a concentração de ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²³⁰Th e ²³⁸U encontram-se na Tabela 5-10.

Unidades	Resultados
(Bq/m ³ )	1,04 x 10 ⁻¹
(Bq/m ³ )	7,29 x 10 ⁻²
(Bq/m ³ )	1,19 x 10 ⁻⁴
(Bq/m ³ )	1,47 x 10 ⁻¹
	Unidades (Bq/m ³ ) (Bq/m ³ ) (Bq/m ³ ) (Bq/m ³ )

Tabela 5-10: Valores obtidos para a concentração de Ra, Pb, Th e U nas águas costeiras, quando  $y_0 = 50$ .

A variação da concentração dos RDN em função da distância, desde o ponto de descarga até à distância de 2000 m deste e para  $y = y_0$  encontra-se representada na Figura 5-11.



Figura 5-11: Concentração de ²²⁶Ra e de ²¹⁰Pb na água em função da distância do ponto de descarga localizado em y = y₀, até à distância de x = 2000 m (eixo dos yy em escala log).

Para a distância x = 2000 m do ponto de descarga e para y = 0, a concentração de RDN na água, ao longo da linha de costa, é estimada pela expressão (5-62), fazendo y = 0. Os valores obtidos para a concentração de ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²³⁰Th e ²³⁸U encontram-se na Tabela 5-11.

Parâmetros	Unidades	Resultados
$C_{wt}(^{226}Ra; y = 0)$	(Bq/m ³ )	8,86 x 10 ⁻²
$C_{wt}(^{210}Pb; y = 0)$	(Bq/m ³ )	6,23 x 10 ⁻²
$C_{wt}(^{230}Th; y = 0)$	(Bq/m ³ )	1,02 x 10 ⁻⁴
$C_{wt}(^{238}U; y = 0)$	(Bq/m ³ )	1,26 x 10 ⁻¹

Tabela 5-11: Valores obtidos para a concentração de Ra, Pb, Th e U nas águas costeiras, quando  $y_0 = 0$ .

Os resultados, em função da distância, desde o ponto de descarga até à distância de 2000 m deste quando y = 0, encontram-se representados na Figura 5-12.



Figura 5-12: Concentração de ²²⁶Ra e de ²¹⁰Pb na água em função da distância do ponto de descarga localizado em y = 0, até à distância de x = 2000 m (eixo dos yy em escala log).

De igual forma, a variação da concentração para o  230 Th e para o  238 U em função da distância, desde o ponto de descarga até à distância de 2000 m deste, quando y = y₀ e quando y = 0 encontra-se representada na Figura 5-13 e na Figura 5-14, respectivamente.



Figura 5-13: Concentração de ²³⁰Th e de ²³⁸U na água em função da distância do ponto de descarga localizado em y = y₀, até à distância de x = 2000 m (eixo dos yy em escala log).



Figura 5-14: Concentração de ²³⁰Th e de ²³⁸U na água em função da distância do ponto de descarga localizado em y = 0, até à distância de x = 2000 m (eixo dos yy em escala log).

## 5.4.1.4 Pequenos lagos

No caso de pequenos lagos aplicam-se os conceitos de modelo compartimento ou *box model*. As dimensões do compartimento são alguns dos dados de entrada necessários: comprimento 400 m, largura 100 m e profundidade 10 m. Admite-se que a largura média do rio, <u>B</u>, no qual ocorre a descarga média anual do efluente contaminado é de 10 m. Considera-se que não há outras contribuições para a contaminação do lago (d_d = 0) e que a exposição ocorre ao longo de uma das margens do lago. Os parâmetros de entrada no modelo são os seguintes:

Tabela 5-12: Valores de entrada para a exploração do modelo no caso dos lagos.

Parâmetros	Valores	Ref. ^a
Q( ²²⁶ Ra) (Bq/s)	34,82	(1)
Q( ²¹⁰ Pb) (Bq/s)	24,47	(1)
Q( ²³⁰ Th) (Bq/s)	0,04	(1)
Q( ²³⁸ U) (Bq/s)	49,38	(1)
Q _e (m ³ /s)	1,38	(USNRC, 1978)
λ( ²²⁶ Ra) (s ⁻¹ )	1,36 x 10 ⁻¹¹	-
λ( ²¹⁰ Pb) (s ⁻¹ )	9,98 x 10 ⁻¹⁰	-
λ( ²³⁰ Th) (s ⁻¹ )	2,85 x 10 ⁻¹³	-
λ( ²³⁸ U) (s ⁻¹ )	4,92 x 10 ⁻¹⁸	-
t (= 30 anos) (s)	9,46 x 10 ⁸	(USNRC, 1978)
<u>B</u> (m)	10	(USNRC, 1978)
<u>q</u> r (m ³ /s)	1	(USNRC, 1978)
B _r (m)	100	(USNRC, 1978)
D _r (m)	10	(USNRC, 1978)

Os valores identificados por (1) têm origem na exploração do modelo do capítulo 4 para cada RDN.

Ao valor de <u>B</u> = 10 m corresponde um caudal médio anual, <u>g</u>_r, de 1 m³/s. O caudal mínimo no período de 30 anos pode ser estimado através da expressão q_r = <u>q</u>_r/3 sendo ainda necessário estimar a área do lago (A_L) e o volume (V_L).

Parâmetros	Resultados
$A_L(m^2)$	40 000
q _r (m ³ /s)	0,33
V _L (m ³ )	400 000
C _{wt} ( ²²⁶ Ra) (Bq/m ³ )	105,51
C _{wt} ( ²¹⁰ Pb) (Bq/m ³ )	74,06
C _{wt} ( ²³⁰ Th) (Bq/m ³ )	0,12
C _{wt} ( ²³⁸ U) (Bq/m ³ )	149,64

Tabela 5-13: Valores obtidos para a concentração de Ra, Pb, Th e U, no caso dos lagos.

Como a área do lago é inferior a 400 km² considera-se que este é um lago pequeno e assim, os resultados são independentes da distância ao ponto de descarga uma vez que nos modelos tipo compartimento a mistura é homogénea, gerando uma concentração igual em todos os pontos do compartimento. A metodologia de cálculo pode ser resumida em:

- Estimar o volume do lago (V_L) o caudal mínimo no período de 30 anos a que corresponde a descarga do rio (q_r) a área do lago (A_L) e o débito de deposição atmosférico (d_d) se existir. Se o caudal mínimo (q_r) não é conhecido, pode ser estimado como já foi descrito no caso dos rios;
- Estimar a contribuição de todas as trajectórias de contaminação (deposição atmosférica, escorrências, erosão do solo, etc.) dada pela expressão (5-96):

$$\mathbf{Q'}_{i} = \mathbf{Q}_{i} + \frac{3 \cdot \mathbf{d}_{d} \cdot \mathbf{A}_{L}}{86\,400}$$

 Se (q_r/V_L+λ_i) ≤ 10⁻⁸ s⁻¹, então a concentração de RDN é dada pela expressão (5-97):

$$\mathbf{C}_{wt} = \frac{\mathbf{Q'}_{i}}{\mathbf{q}_{r} + \lambda_{i} \cdot \mathbf{V}_{L}} \left\{ 1 - \mathbf{e}^{\left[ - \left( \frac{\mathbf{q}_{r}}{\mathbf{V}_{L}} + \lambda_{i} \right) \mathbf{t} \right]} \right\}$$

Se (q_r/V_L+λ_i) > 10⁻⁸ s⁻¹, então a concentração de RDN encontra-se em estado estacionário e é estimada pela expressão (5-99):

$$\boldsymbol{C}_{wt} = \frac{\boldsymbol{Q'}_i}{\boldsymbol{q}_r + \boldsymbol{\lambda}_i \cdot \boldsymbol{V}_L}$$

Se por outro lado estivéssemos em presença de um lago grande, com área superior a 400 km², a concentração dentro do lago seria estimada com as mesmas expressões usadas no caso das águas costeiras.

## 5.4.1.5 Sedimentos

Assume-se que há uma contaminação, através da descarga de um efluente no rio que tem vindo a ocorrer nos últimos 30 anos. Os valores da concentração ( $C_{wt}$ ) dos RDN não dissolvidos ( 226 Ra;  210 Pb,  230 Th e  238 U) são dados pela Tabela 5-4. Consideramos ainda outro caso em que a concentração na água do rio é cerca de 100 Bq/m³ para cada um dos RDN, num ponto localizado na margem do rio, onde a concentração dos sedimentos suspensos ( $C_{su}$ ) é 0,1 kg/m³ (ou 100 mg/L). Os parâmetros de entrada no modelo estão representados na Tabela 5-14. Os valores de k_d na primeira coluna (1) referem-se à água doce (IAEA, 2001), (Yu, 1993) e os valores de k_d na segunda coluna (2) referem-se à água salgada (IAEA, 2001).

Parâmetros	Valores (1)	Valores (2)
C _{su} (kg/m ³ )	0,1	
C _{wt} (Bq/m ³ )	100	
k _d ( ²²⁶ Ra) (L/kg)	500	5 x 10 ³
k _d ( ²¹⁰ Pb) L/kg)	100	2 x 10 ⁵
k _d ( ²³⁰ Th) (L/kg)	1 x 10 ⁴	2 x 10 ⁶
k _d ( ²³⁸ U) (L/kg)	50	1 x 10 ³
T _e (s)	3,15 x 10 ⁷	
λ( ²²⁶ Ra) (s ⁻¹ )	1,36 x 10 ⁻¹¹	
λ( ²¹⁰ Pb) (s ⁻¹ )	9,98 x 10 ⁻¹⁰	
λ( ²³⁰ Th) (s ⁻¹ )	2,85 x 10 ⁻¹³	
λ( ²³⁸ U) (s ⁻¹ )	4,92 x 10 ⁻¹⁸	

Tabela 5-14: Valores de entrada para a exploração do modelo no caso dos sedimentos.

Os resultados obtidos encontram-se na Tabela 5-15 para os seguintes parâmetros:

- concentração dos RDN dissolvidos na água, Cws;
- concentração nos sedimentos suspensos, C_{sw};
- concentração nos sedimentos de fundo, C_{sb};
- concentração nos sedimentos de costa, C_{ss}.

Os valores da terceira coluna (3) da seguinte (Tabela 5-15) foram calculados com  $C_{wt}$  = 100 Bq/m³ para cada RDN e com os valores de K_d para a água doce.

Parâmetros	Resultados (1)	Resultados (2)	Resultados (3)
C _{ws} ( ²²⁶ Ra) (Bq/m ³ )	3,31	2,32	95,24
C _{ws} ( ²¹⁰ Pb) (Bq/m ³ )	2,43	0,12	100
C _{ws} ( ²³⁰ Th) (Bq/m ³ )	2 x 10 ⁻³	1,99 x 10 ⁻⁵	50
C _{ws} ( ²³⁸ U) (Bq/m ³ )	4,92	4,49	99,5
C _{sw} ( ²²⁶ Ra) (Bq/m ³ )	1,66	11,60	47,62
C _{sw} ( ²¹⁰ Pb)	0,24	23,30	9,90
C _{sw} ( ²³⁰ Th)	0,02	0,04	500
C _{sw} ( ²³⁸ U)	0,25	4,49	4,98
C _{sb} ( ²²⁶ Ra)	0,17	1,16	4,76
C _{sb} ( ²¹⁰ Pb)	0,02	2,30	0,97
C _{sb} ( ²³⁰ Th)	0,002	0,004	50
C _{sb} ( ²³⁸ U)	0,02	0,45	0,50
C _{ss} ( ²²⁶ Ra)	9,94	69,59	285,65
C _{ss} ( ²¹⁰ Pb)	1,43	137,82	58,48
C _{ss} ( ²³⁰ Th)	0,12	0,24	2999,99
C _{ss} ( ²³⁸ U)	1,47	26,95	29,85

Tabela 5-15: Resultados da exploração do modelo no caso dos sedimentos.

## 5.4.1.6 Biota aquática

Na transferência da actividade para a cadeia alimentar aquática consideramos os peixes como a principal via de transferência. Como dados de entrada vamos ter apenas a concentração na água ( $C_{wt}$ ) que consideramos ser os valores da Tabela 5-13, referente à concentração de cada RDN nos lagos (valores mais elevados de todos os casos considerados) e o factor de bioacumulação nos peixes ( $B_p$ ). Os valores de  $B_p$  foram adoptados da bibliografia (IAEA, 2001). Como resultado, obtemos a concentração em Ra, Pb, Th e U, na biota aquática relativamente aos  $B_p$  adoptados.

Parâmetros	Valores
C _{wt} ( ²²⁶ Ra) (Bq/m ³ )	105,51
C _{wt} ( ²¹⁰ Pb) (Bq/m ³ )	74,06
C _{wt} ( ²³⁰ Th) (Bq/m ³ )	0,12
C _{wt} ( ²³⁸ U) (Bq/m ³ )	149,64
B _p ( ²²⁶ Ra) (L.kg ⁻¹ )/(m ³ .L ⁻¹ )	50
B _p ( ²¹⁰ Pb) (L.kg ⁻¹ )/(m ³ .L ⁻¹ )	300
B _p ( ²³⁰ Th) (L.kg ⁻¹ )/(m ³ .L ⁻¹ )	100
B _p ( ²³⁸ U) (L.kg ⁻¹ )/(m ³ .L ⁻¹ )	10
C _{peixes} ( ²²⁶ Ra) (Bq/kg)	5,28
C _{peixes} ( ²¹⁰ Pb) (Bq/kg)	22,22
C _{peixes} ( ²³⁰ Th) (Bq/kg)	0,01
C _{peixes} ( ²³⁸ U) (Bq/kg)	1,50

Tabela 5-16: Resultados da exploração do modelo de transferência para a biota aquática.

## 5.4.1.7 Discussão dos resultados

Da análise das figuras (Figura 5-3, Figura 5-4, Figura 5-5 e Figura 5-6) deste primeiro caso de exploração podemos dizer que a variação da concentração de RDN em função da distância apresenta o mesmo perfil de variação para os 4 RDN estudados:

- Quando a descarga de efluente contaminado ocorre na margem oposta onde se considera a exposição, a concentração mantém-se constante com o aumento da distância do ponto de exposição ao ponto de descarga. Para chegar à margem oposta, os RDN têm de ser transportados, pelo menos, até metade da largura do rio, e a concentração de RDN será máxima ao longo da linha central da pluma de contaminação em qualquer secção recta do rio. A expressão de cálculo usada neste caso reflecte a concentração de RDN completamente misturada ao longo da secção recta do rio, ou seja na linha central da pluma, por isso é constante.
- Por outro lado, quando a descarga ocorre na mesma margem onde se considera a exposição, e se esta ocorre para distâncias inferiores 3,4 m do ponto de descarga, não há mistura completa na vertical até esta distância e portanto não há diluição, logo a concentração é igual à concentração no ponto de descarga. A partir deste ponto (x = 3,4 m) considera-se que há mistura completa na vertical devendo-se corrigir a mistura lateral (que poderá não ser

completa) pelo factor de correcção, o que justifica a diminuição gradual da concentração com a distância.

- Dos RDN estudados, o Th apresenta valores muito pequenos e por isso não é preocupante. O mesmo não acontece para os restantes RDN cujos valores são bastante mais elevados no ponto de exposição do que no caso do Th. Os valores da concentração são sempre superiores quando a descarga e a exposição ocorrem na mesma margem. No entanto, os valores obtidos ficam aquém dos limites estabelecidos na bibliografia para a água de ingestão no caso do rádio (185 Bq/m³), do tório (555 Bq/m³) e do urânio (1110 Bq/m³) sendo ultrapassado no caso do chumbo Pb (4,07 Bq/m³).
- Em muitos casos adoptam-se os limites da água de ingestão como limites para a água superficial também. No entanto, deve-se ter em atenção que os valores estimados terão uma interpretação mais correcta quando usados para o cálculo de doses, dado que nestes caso há valores limites específicos para cada trajectória de exposição (interna, submersão na água, contacto com os sedimentos, etc.).

No caso dos estuários (Figura 5-7, Figura 5-8, Figura 5-9 e Figura 5-10), a variação da concentração com a distância é semelhante relativamente aos rios, quer quando a descarga quando ocorre na mesma margem quer quando ocorre na margem oposta. No entanto existem algumas diferenças a salientar:

 Verifica-se que quando a distância da exposição ao ponto de descarga deixa de ser inferior a 7.D_r (x = 14 m) ocorre uma diminuição brusca na concentração para esta distância, continuando a decrescer gradualmente com a distância a partir deste ponto. Isto porque até à distância x = 7.D_r não se verifica a mistura completa na vertical, o que origina que a concentração seja constante. Em termos práticos podemos eliminar distâncias de exposição superiores a x > 7.D_r, se os valores obtidos no ponto de viragem forem inferiores aos limites estabelecidos ou admissíveis.

No caso das águas costeiras, a variação da concentração em Ra e em Pb, presentes num efluente descarregado a 50 m da costa (Figura 5-11), decresce exponencialmente até ao ponto de exposição segundo valores muito aproximados para ambos os RDN. O mesmo se passa para a concentração em Th e em U, sendo a concentração deste último muito superior à concentração do primeiro (Figura 5-13). Esta variação da concentração para y = y₀ (50 m) corresponde à variação da

concentração na linha central da pluma, que se vai dissipando segundo uma função exponencial, com o aumento da distância ao ponto de exposição. Isto pode ser explicado em certa medida, pelo facto de a expressão de origem (expressão de advecção-difusão bidimensional) não incluir a dispersão longitudinal e a extensão da mistura ser maior à medida que a pluma de contaminação se dispersa nas águas costeiras (IAEA, 2001) o que significa que o coeficiente de dispersão lateral é uma função da distância longitudinal.

No caso em que a descarga de efluente ocorre na mesma margem da exposição e junto à linha de costa verifica-se um aumento exponencial da concentração com a distância ao ponto de descarga, com valores muito aproximados para o Ra e Pb (Figura 5-12) e valores muito superiores para o U relativamente ao Th (Figura 5-14). No entanto, os valores finais quer para  $y_0 = 50$  m quer para  $y_0 = 0$  são da mesma ordem de grandeza para cada RDN considerado em ambos os casos.

No caso dos lagos a concentração obtida é homogénea e igual em todos os pontos dado que este cálculo se baseia num modelo "compartimento" em que a mistura é homogénea e instantânea. Dos RDN estudados, o Th apresenta o menor valor de concentração (este RDN é praticamente insolúvel), seguindo-se o Pb, o Ra e por fim o U.

Relativamente aos sedimentos a sua concentração é quase sempre inferior à concentração dos RDN dissolvidos na água, à excepção da concentração em rádio nos sedimentos de costa, o que se pode justificar pelo facto da solubilidade do rádio nesta forma ser muito pequena. A concentração de RDN dissolvidos é superior na água doce relativamente à água salgada, para todos os RDN. Podemos concluir que há uma maior dissolução dos RDN na água doce do que na água salgada. Para os restantes parâmetros, ou seja, para os sedimentos (suspensos, de fundo e de costa), a concentração é sempre superior no caso da estimativa com K_d para água salgada. Isto pode ser justificado pelo facto de que se os valores de K_d usados para a água salgada forem superiores aos usados na água doce, revelam que há uma maior partilha dos RDN entre os sedimentos e a água salgada (por adsorção, deposição, etc.).

Relativamente à transferência de RDN para o biótipo aquático, a concentração nos peixes, por exemplo, terá uma interpretação concreta se for a base para a estimativa da dose resultante para os humanos, já que esta vai depender do tipo de organismo aquático, forma, tamanho, etc., bem como do tipo de exposição (interna,
submersão na água e contacto com os sedimentos). Ainda mais porque muitos dos efeitos nos peixes manifestam-se a longo prazo em termos de mutações genéticas, efeitos na reprodução da espécie, etc., e não imediatamente como acontece com descargas de outros tipos de contaminantes.

Os RDN escolhidos têm cada um a sua particularidade como tóxico. O chumbo actua como um veneno cumulativo, tóxico mesmo em pequenas concentrações. O seu nível de acção verifica-se para 15 µg/L. Pode entrar no corpo humano através da ingestão de água e de alimentos contaminados e também pela inalação.

O ²³⁰Th é um produto do decaimento do ²³⁸U e pode ser encontrado em pequenas concentrações nos depósitos de urânio bem como nos estéreis da mineração destes. Contribui para a actividade de partículas  $\alpha$ , sendo um produto do decaimento radioactivo natural do ²³⁴U com emissão deste tipo de radiação. Faz parte da série de decaimento radioactivo do ²³⁸U e dá origem ao ²²⁶Ra por emissão de partículas  $\alpha$ . A sua semi-vida é aproximadamente 80 000 anos e é praticamente insolúvel em água aderindo preferencialmente às partículas do solo. As maiores trajectórias de exposição são a ingestão de alimentos e de água que contenham tório e a inalação de poeiras contaminadas com tório.

O rádio é constantemente produzido pelo decaimento radioactivo do urânio e do tório. Emite radiação por emissão da partícula α quando sofre decaimento radioactivo. A concentração em rádio na maioria das águas naturais é inferior a 185 Bq/m³. Apresenta também uma baixa solubilidade na água. A inalação ou ingestão de rádio pode originar cancro no pulmão. Pode ainda concentrar-se nos peixes e noutros organismos aquáticos e entrar na cadeia alimentar.

O urânio é um carcinogénio e emite radiação através da partícula  $\alpha$  por decaimento natural. Pode aparecer em vários estados de oxidação. Geralmente, os estados mais oxidados são mais solúveis. O ²³⁸U e o ²³⁵U ocorrem no estado natural e contribuem para a maior radioactividade na água. O valor limite recomendado para a sua concentração é de 30 µg/L e na maioria das águas naturais este valor varia de 0,1 a 10 µg/L.

#### 5.4.2 Exploração do modelo para um estudo de caso - Urgeiriça

#### 5.4.2.1 Introdução

Como referido inicialmente, iremos agora tentar aplicar o modelo desenvolvido a um caso concreto. O local escolhido refere-se à envolvente da área mineira da Urgeiriça que se encontra inserida em pleno vale aluvionar da ribeira da Pantanha e apresenta uma ocupação agrícola de pequenas hortas e pastagens nas partes planas do fundo do vale.

A mina da Urgeiriça encontra-se rodeada de pequenas quintas e de casas de campo, podendo considerar-se a utilização da água da ribeira da Pantanha para rega e para ingestão pelos animais de pasto das redondezas. Próximo da mina encontra-se situada uma escombreira de estéreis cujas infiltrações ácidas são recolhidas e juntamente com a água da mina, após neutralização e decantação, são lançadas na ribeira da Pantanha. Esta ribeira atravessa a área da escombreira de rejeitados e termina o seu curso natural no rio Mondego.

O efluente a tratar resulta assim da mistura de águas com origem na mina (poço de St.^a Bárbara) e nas infiltrações ácidas (poço de recolha) provenientes da escombreira de rejeitados. Após o referido tratamento numa bacia de decantação, o efluente é lançado na linha de água.

Existem registos da monitorização periódica efectuada pela Empresa Nacional de Urânio (ENU) na ribeira da Pantanha em diversos pontos, um deles a montante e vários a jusante do ponto de descarga até ao rio Mondego, onde existem também 2 pontos de amostragem. Os pontos de amostragem considerados pela ENU (1998) foram classificados de  $C_1$  a  $C_7$ .

Os pontos de C₁ a C₄ encontram-se situados na ribeira da Pantanha, o ponto C₅ na ribeira da Corujeira, a montante da confluência com a ribeira da Pantanha (pequeno curso de água afluente da ribeira da Pantanha), os pontos C₆ a C₇ estão situados no rio Mondego, a jusante e a montante do ponto de confluência, respectivamente. A localização dos pontos de monitorização encontra-se esquematizada na Figura 5-15 (o desenho não está representado à escala) com as respectivas distâncias relativas representadas na Tabela 5-17.



Figura 5-15: Localização dos pontos de monitorização, adaptado de ENU (1998).

Os registos das análises das amostras colhidas apresentam valores para os elementos radiológicos, entre outros parâmetros químicos, de  226 Ra (Bq/L) e de U₃O₈ (ppm) nestes pontos.

Pontos de exposição	Distância (m)
C ₁ – PD	950
$PD - C_2$	150
$C_1 - C_2$	1100
$C_2 - C_3$	1500
$C_3 - C_4$	1100
$C_4 - PC$	450
$PC - C_6$	200
PC – C ₇	800

Tabela 5-17: Distância entre os pontos de exposição.

O ponto PD representa o local onde é feita a descarga do efluente e o ponto PC representa o ponto de confluência da ribeira da Pantanha com o rio Mondego. Recentemente foram realizadas campanhas de amostragem de águas, sedimentos, solos, ar, etc., na área mineira da Urgeiriça, para a avaliação da contaminação radiológica na envolvente da área mineira. Destes estudos resultaram dois relatórios intitulados: "Estudo Director de Áreas de Minérios Radioactivos - 1ª e 2ª Fase (2003), elaborados pela Exmin – Companhia de Indústria e Serviços Mineiros e Ambientais, SA, e já referidos no capítulo anterior. Na impossibilidade de ter acesso aos dados mais recentes, adoptaram-se os dados fornecidos pela ENU referentes a 1997.

#### 5.4.2.2 Exploração do modelo para um efluente lançado na linha de água

Na exploração do modelo adoptou-se, sempre que possível, valores para os parâmetros de entrada referentes ao local em estudo. Na impossibilidade de os obter localmente, recorreu-se a dados existentes na bibliografia, devidamente referenciados.

Considera-se que o efluente tratado é lançado na ribeira da Pantanha e que os pontos de exposição ao longo do curso da ribeira são identificados por: C₂, C₃, C₄ e PC. No ponto de confluência (PC) da ribeira com o rio Mondego vamos considerar a descarga do efluente com concentração em ²²⁶Ra igual à estimada neste ponto. Os valores de entrada no modelo encontram-se na tabela seguinte.

Parâmetros	Valores	Ref. ^a
Q( ²²⁶ Ra) (Bq/s)	9,1157	(-)
Q _e (m³/s)	¹ 9,5 x 10 ⁻³	(-)
λ( ²²⁶ Ra) (s⁻¹)	1,36 x 10 ⁻¹¹	(-)
κ₁ (C₂) (m)	150	(-)
κ₂ (C₃) (m)	1650	(-)
κ₃ (C₄) (m)	2750	(-)
κ₄ (PC) (m)	3200	(-)
<u>3</u> (m)	21	(USNRC, 1978)
g _r (m³/s)	5	(USNRC, 1978)
q _r (m³/s)	1,67	(USNRC, 1978)
3 (m)	12,55	(USNRC, 1978)
D (m)	0,20	(USNRC, 1978)
J (m/s)	0,67	(USNRC, 1978)

Tabela 5-18: Valores para a exploração do modelo no estudo de caso referente à Urgeiriça.

¹ Relatório do Estudo Director das Áreas de Minérios Radioactivos e igual a 292 250 m³/ano, referente ao ano 2000.

O efluente lançado após tratamento, segundo as análises efectuadas em duas campanhas de amostragem pela EXMIN, apresenta uma concentração em actividade de 0,96 Bq/L na época de Verão (Junho) e 0,26 Bq/L na época do Inverno (Novembro) (Pereira et al., 2004b).

Na Tabela 5-19 representa-se a mistura de águas ácidas que deu origem ao efluente tratado, após neutralização e decantação, com os respectivos valores em ²²⁶Ra. Os resultados analíticos obtidos referem-se a amostras de águas residuais colhidas na área mineira da Urgeiriça, nomeadamente: na mina ( $E_1$  - efluente da mina); numa exsurgência da escombreira ( $E_2$  - efluente da escombreira da barragem velha) e no efluente tratado e lançado na ribeira da Pantanha ( $E_3$ ) (Pereira et al., 2004b).

Tabela 5-19: Resultados	analíticos	obtidos	em a	amostras	de á	águas	residuais	s da	envolv	ente
		mineira (	da U	Jrgeiriça.						

Efluente	Campanha	²²⁶ Ra (Bq/L)	²²⁶ Ra (Bq/m ³ )
E1	Junho	4,45	4450
	Novembro	5,58	5580
E ₂	Junho	0,16	160
	Novembro	0,16	160
E ₃	Junho	0,96	960
	Novembro	0,26	260

^{5.4.2.2.1 1.}º Caso de Exploração

Fez-se a exploração do modelo para o caso do efluente tratado e lançado com a concentração de 960 Bq/m³ referente ao valor obtido na campanha de Junho, sendo este o pior cenário no caso do efluente tratado. Como já foi referido anteriormente, podemos ter presente 3 situações distintas:

- i) Se a exposição acontece na margem oposta onde ocorre a descarga;
- Se a exposição se verifica na mesma margem onde ocorre a descarga e para distâncias inferiores a 1,4 m (x < 7.D_r), não há diluição porque a mistura na vertical não é completa e a concentração neste ponto é igual à concentração do efluente descarregado;
- Se a exposição se verifica na margem oposta e para distâncias superiores a 1,4 m (x > 7.D_r), a mistura na vertical é completa mas na lateral pode não ser, sendo necessário corrigir a mistura pelo factor de correcção, P_{rr}.

Os resultados referentes às três situações possíveis encontram-se representados na Figura 5-16 e os valores da concentração na água superficial em cada ponto de exposição estão representados na Tabela 5-20.



Figura 5-16: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga, para uma concentração de ²²⁶Ra no efluente descarregado na ribeira da Pantanha de  $C_{ee} = 960 \text{ Bq/m}^3$ .

²²⁶ Ra (Bq/m ³ )	X < 1,4	$C_2(x = 150)$	C ₃ (x = 1650)	C ₄ (x = 2750)	PC(x = 3200)
Margem oposta	5,46	5,46	5,46	5,46	5,46
Mesma margem	960	23,08	8,36	5,46	5,46

Tabela 5-20: Concentração em  226 Ra nos pontos de exposição (C_{ee} = 960 Bq/m³).

Para estimar a concentração de ²²⁶Ra nos pontos de exposição C₆ e C₇ a montante (200 m) e a jusante (800 m), respectivamente, do ponto de confluência com o rio Mondego, consideramos que o efluente descarregado tem uma concentração em ²²⁶Ra igual a 5,46 Bq/m³. Uma vez que os pontos de exposição situam-se no rio Mondego há que considerar as suas características na estimativa da concentração de ²²⁶Ra nos pontos identificados, ou seja, a profundidade, a largura e o caudal, que serão sempre de valor superior ao caso da ribeira.

Considerou-se um caudal médio para o rio Mondego igual a 108 m³/s (Rocha, 1998). Seguindo a metodologia anterior, o caudal mínimo verificado nos últimos 30 anos será igual a um terço deste valor. Os restantes parâmetros podem ser calculados

pelas expressões (5-2), (5-3) e (5-4) ou deduzidas pela tabela D-1 do anexo D. Os valores obtidos encontram-se na Tabela 5-21.

Parâmetros	Valor
<u>q</u> , (m ³ /s)	108
q _r (m ³ /s)	36
B _r (m)	51,88
D _r (m)	0,81
U (m/s)	0,86
7.D _r (m)	5,67

Tabela 5-21: Parâmetros referentes às características do rio Mondego.

Da mesma forma, se a exposição se verifica na margem oposta à da descarga, a concentração é constante ao longo do rio e o valor estimado é igual a 0,00144 Bq/m³.

Por outro lado, se a exposição se verifica na mesma margem e para distâncias inferiores a 5,67 m do ponto de descarga (PC), a concentração é igual à do efluente descarregado, ou seja, igual a 5,46 Bq/m³.

Se a exposição se verifica para distâncias superiores a 5,67 m do ponto de descarga, a montante (a 200 m, o que representa o ponto C₆) do ponto de descarga, o ponto de exposição não é afectado pela contaminação, logo a concentração em ²²⁶Ra no ponto C₆ é nula.

Por último, se a exposição ocorre a 800 m ( $C_7$ ) para jusante do ponto de descarga, a concentração estimada é igual a 0,005 Bq/m³ tendendo para 0,003 para distâncias superiores. Os resultados obtidos estão representados na Figura 5-17 e na Tabela 5-22.



Figura 5-17: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga, para uma concentração de ²²⁶Ra no efluente descarregado no rio Mondego de  $C_{ee} = 5,46 \text{ Bq/m}^3$ .

Tabela 5-22: Concentração em  226 Ra no ponto C₇ (C_{ee} = 5,46 Bq/m³).

²²⁶ Ra (Bq/m ³ )	x < 5,67	C ₇ (x = 800)
Margem oposta	0,00144	0,00144
Mesma margem	5,46	0,005

#### 5.4.2.2.2 2.º Caso de Exploração

Fez-se nova exploração do modelo considerando que o efluente é directamente lançado na ribeira sem tratamento ou que o tratamento é ineficiente. Para o pior cenário possível, a concentração do efluente a descarregar será a soma da concentração dos efluentes contaminados: efluente da mina (E₁) e o efluente da escombreira da barragem velha (E₂).

Tabela 5-23: Concentração em  226 Ra no efluente da mina (E₁) e no efluente da escombreira da barragem velha (E₂).

Efluente	Campanha	²²⁶ Ra (Bq/L)	²²⁶ Ra (Bq/m ³ )
E ₁ + E ₂	Junho	4,45 + 0,16 = 4,61	4610
E ₁ + E ₂	Novembro	5,58 + 0,16 = 5,47	5470

Fonte: Pereira et al. (2004b).

A exploração foi feita para o valor mais alto da concentração de ²²⁶Ra e igual a 5470 Bq/m³. A variação da concentração com a distância ao ponto de exposição está representada na Figura 5-18 e os valores estimados para a concentração em rádio nos pontos de exposição considerados, C₂, C₃, C₄ e PC, encontram-se representados na Tabela 5-24.



Figura 5-18: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga, para uma concentração de ²²⁶Ra no efluente descarregado na ribeira da Pantanha de  $C_{ee}$  = 5470 Bq/m³.

Tabela 5-24: Concentração em  226 Ra nos pontos de exposição (C_{ee} = 5470 Bq/m³).

²²⁶ Ra (Bq/m ³ )	x < 1,4	$C_2(x = 150)$	$C_3(x = 1650)$	$C_4 (x = 2750)$	PC (x = 3200)
Margem oposta	31,1	31,1	31,1	31,1	31,1
Mesma margem	5470	131,5	47,6	31,1	31,1

A concentração nos pontos de exposição, situados no rio Mondego, a montante e a jusante do ponto de confluência, respectivamente, C₆ e C₇, resulta da descarga da ribeira da Pantanha neste rio com uma concentração em ²²⁶Ra igual à do ponto C₄ ou seja, igual a 31,1 Bq/m³. A concentração a montante (C₆) e a concentração no ponto C₇, a 800 m a jusante do ponto de descarga (PC) vai ser estimada para as características do rio Mondego referidas na Tabela 5-21.

A variação da concentração com a distância encontra-se representada Figura 5-19. No ponto C₇, x = 800 m, C_{wt} = 0,03 Bq/m³ conforme representado Tabela 5-25.



Figura 5-19: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga, para uma concentração de ²²⁶Ra no efluente descarregado no rio Mondego de  $C_{ee} = 31,1$  Bq/m³.

Tabela 5-25: Concentração em  226 Ra no ponto de exposição C₇ (C_{ee} = 31,1 Bq/m³).

²²⁶ Ra (Bq/m ³ )	x < 5,67	$C_7 (x = 800)$
Margem oposta	0,0082	0,0082
Mesma margem	31,1	0,03

A descontinuidade que se verifica na linha que representa a concentração na mesma margem ocorre devido à mistura completa na vertical.

#### 5.4.2.3 Comparação com alguns resultados analíticos

A Empresa Nacional de Urânio (ENU) efectuava análises periódicas dos efluentes descarregados bem como a monitorização dos locais considerados como pontos de exposição, durante o período em que foi responsável pela monitorização da área mineira da Urgeiriça. Nos dados fornecidos pela ENU, referentes a 1997, o efluente lançado apresentava (anualmente) em média 271 Bq/m³ de actividade em ²²⁶Ra. Os valores que deram origem a esta média encontram-se na Tabela 5-26.

ID	Jan.	Fev.	Mar.	Abr.	Mai.	Jun.	Ago.	Set.	Out.	Nov.	Dez.	Média
E ₁	130	90	220	130	160	90	120	130	100	150	270	144,5
E ₂	90	90	120	100	110	60	310	120	110	120	160	126,4
Total	220	180	340	230	270	150	430	250	210	270	430	270,9

Tabela 5-26: Valores analíticos das análises efectuadas pela ENU ao efluente  $E_1$  e  $E_2$ , referente ao ano de 1997.

Fonte: ENU (1998).

Os valores obtidos para este parâmetro referente ao mesmo ano, nas análises de monitorização efectuadas pela ENU, nos pontos de exposição considerados, encontram-se na tabela seguinte:

Tabela 5-27: Valores analíticos das análises efectuadas pela ENU nos pontos de exposição, referente ao ano de 1997.

ID	Jan.	Fev.	Mar.	Abr.	Mai.	Jun.	Ago.	Set.	Out.	Nov.	Dez.	Média
<b>C</b> ₂	150	80	100	100	70	90	210	100	110	70	60	103,6
<b>C</b> ₃	140	50	70	70	150	80	80	120	140	50	90	94,5
$C_4$	80	50	40	60	60	120	210	160	350	80	60	115,5
<b>C</b> ₇			110			70		140				106,7

Fonte: ENU (1998).

Para os pontos C₂, C₃, C₄ a média mensal resulta da amostragem semanal e para os pontos C₆ e C₇ a média resulta da amostragem trimestral.

Fez-se a exploração do modelo alterando apenas o valor da concentração de rádio no efluente descarregado. Os valores obtidos nos pontos de exposição encontram-se na Tabela 5-28.

Tabela 5-28: Concentração em  226 Ra nos pontos de exposição (C_{ee} = 271 Bq/m³).

²²⁶ Ra (Bq/m ³ )	x < 1,4	$C_2(x = 150)$	$C_3(x = 1650)$	$C_4 (x = 2750)$	PC (x = 3200)
Margem oposta	1,54	1,54	1,54	1,54	1,54
Mesma margem	271,0	6,51	2,36	1,54	1,54

Comparando os valores referentes aos pontos de exposição,  $C_2$ ,  $C_3$  e  $C_4$  obtidos no modelo com os obtidos analiticamente pela ENU, verifica-se que estes são sempre bastante mais elevados do que os obtidos pelo modelo. No entanto, se calcularmos a média dos valores obtidos nestes pontos para ambos os casos, obtemos valores mais coerentes, nomeadamente, para os valores analíticos ( $C_{va}$ ), a

média é igual a C_{va} = 95,4 Bq/m³ e para os valores do modelo (C_{vm}), a média é igual a C_{vm}= 56,6 Bq/m³.

Os valores obtidos para a variação da concentração em  226 Ra com a distância tendo como ponto de partida a concentração no efluente descarregado igual a C_{ee} = 271,0 Bq/m³ encontram-se representados na Figura 5-20.



Figura 5-20: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga, para uma concentração de ²²⁶Ra no efluente descarregado na ribeira da Pantanha de C_{ee} = 271 Bq/m³.

Nos estudos realizados pela Exmin é referido que no ano de 2002 os valores de  226 Ra no efluente lançado foram inferiores a 0,07 Bq/L ou 70 Bq/m³ e a concentração média de rádio na água superficial (ao longo da ribeira da Pantanha) obtida analiticamente apresentou um valor igual a 140 ± 180 Bq/m³ (EXMIN, 2003).

Os valores da actividade em rádio ao longo da ribeira estimados pelo modelo, para este caso encontram-se representados na Tabela 5-29 e na Figura 5-21.

²²⁶ Ra (Bq/m ³ )	x < 1,4	$C_2(x = 150)$	$C_3(x = 1650)$	$C_4 (x = 2750)$	PC (x = 3200)
Margem oposta	0,40	0,40	0,40	0,40	0,40
Mesma margem	70	1,68	0,61	0,40	0,40

Tabela 5-29: Concentração em  226 Ra nos pontos de exposição (C_{ee} = 70 (Bq/m³).



Figura 5-21: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga, para uma concentração de ²²⁶Ra no efluente descarregado na ribeira Pantanha de  $C_{ee}$  = 70 Bq/m³.

Neste caso, não temos valores da concentração correspondentes aos pontos de exposição para podermos comparar. Assim, calculou-se a média dos valores obtidos no modelo para este caso e obteve-se um valor igual a 14,66 Bq/m³. Verifica-se que a média dos valores do modelo é inferior à média dos valores analíticos em uma ordem de grandeza.

Se voltarmos ao 1.º exemplo de exploração, a concentração no efluente usada no modelo tem origem nos dados da EXMIN. A média dos valores obtidos em cada ponto de exposição pelo modelo origina um valor igual a 200,4 Bq/m³ o que se enquadra nos valores analíticos obtidos por EXMIN (2003).

A mesma fonte (EXMIN, 2003), refere que os valores de ²²⁶Ra obtidos nos pontos de amostragem, ao longo da ribeira da Pantanha, estão consistentemente abaixo de 500 Bq/m³. Segundo a legislação americana (EPA, 1983) o valor máximo admissível para águas de rega é igual a 555 Bq/m³. Os valores obtidos pelo modelo também estão abaixo deste limite.

#### 5.4.2.4 Exploração do modelo para os sedimentos aplicado ao estudo de caso

No caso dos sedimentos consideramos os valores obtidos anteriormente para a concentração em rádio na água superficial em função da distância ao ponto descarga. Considerou-se primeiro a descarga do efluente tratado e depois a descarga do efluente sem qualquer tratamento. Também foi feita a exploração para os dados analíticos, obtidos pela ENU (1998) e pela EXMIN (2003), referentes à actividade de ²²⁶Ra na água. Os valores genéricos usados na exploração do modelo encontram-se na tabela seguinte.

Tabela 5-30: Valores de entrada para a exploração do modelo, no caso dos sedimentos, referente ao estudo de caso da Urgeiriça.

Parâmetros ( ²²⁶ Ra)	Valores
C _{su} (kg/m ³ )	0,1 (IAEA, 2001)
k _d (L/kg)	500 (IAEA, 2001)
T _e (s)	3,15 x 10 ⁷
λ (s ⁻¹ )	1,36 x 10 ⁻¹¹

Os resultados obtidos para a concentração de RDN nos sedimentos de fundo  $(C_{sb})$ , nos sedimentos de costa  $(C_{ss})$ , dissolvidos na água  $(C_{ws})$  e nos sedimentos suspensos  $(C_{sw})$ , encontram-se representados na Tabela 5-31 e nas figuras seguintes (Figura 5-22 e Figura 5-23) e referem-se a cada ponto de exposição estimados com a respectiva concentração na água superficial. A designação "mm" refere-se à mesma margem e a designação "mo" refere-se à margem oposta.

Tabela 5-31: Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores obtidos na Figura 5-16 e na Figura 5-17 para C_{wt} (²²⁶Ra).

Dihaira	C _{sb}	Csb	Css	Css	C _{ws}	Cws	Csw	Csw
Ribella	(mo)	(mm)	(mo)	(mm)	(mo)	(mm)	(mo)	(mm)
m	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/m ³	Bq/m ³	Bq/kg	Bq/kg
x < 1,4	0,26	45,70	15,59	2742,27	5,20	914,29	2,60	457,14
C2	0,26	1,10	15,59	65,92	5,20	21,98	2,60	10,99
C ₃	0,26	0,40	15,59	23,89	5,20	7,96	2,60	3,98
C ₄	0,26	0,26	15,59	15,59	5,20	5,20	2,60	2,60
PC	0,26	0,26	15,59	15,59	5,20	5,20	2,60	2,60
Rio								
x < 5,67	6,9 x 10 ⁻⁵	0,26	0,0041	15,60	0,0014	5,20	6,9 x 10 ⁻⁴	2,60
<b>C</b> ₇	6,9 x 10 ⁻⁵	2,7 x 10 ⁻⁴	0,0041	0,0163	0,0014	0,0054	6,9 x 10 ⁻⁴	0,0027



Figura 5-22: Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores obtidos na Figura 5-16 para C_{wt} (²²⁶Ra) na ribeira da Pantanha.



Figura 5-23: Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores obtidos na Figura 5-17 para  $C_{wt}$  (²²⁶Ra) no rio Mondego.

O caso anterior corresponde ao efluente tratado e descarregado na ribeira. A média de todos os resultados obtidos, referentes à mesma margem da ribeira onde se dá a descarga, em função da distância ao ponto de descarga, originou os seguintes valores:  $C_{sb} = 2,5$  Bq/kg,  $C_{ws} = 149,5$  Bq/kg,  $C_{ss} = 49,8$  Bq/m³ e  $C_{sw} = 24,9$  Bq/kg. No caso do rio, os valores obtidos foram os seguintes:  $C_{sb} = 0,05$  Bq/kg,  $C_{ss} = 2,86$  Bq/kg,  $C_{ws} = 0,95$  Bq/m³ e  $C_{sw} = 0,48$  Bq/kg.

Piboira	C _{sb}	C _{sb}	Css	Css	Cws	Cws	Csw	Csw
Ribella	(mo)	(mm)	(mo)	(mm)	(mo)	(mm)	(mo)	(mm)
m	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/m ³	Bq/m ³	Bq/kg	Bq/kg
x < 1,4	1,48	260,42	29,62	5209,52	14,81	2604,76	88,84	15625,22
C ₂	1,48	6,26	29,62	125,24	14,81	62,62	88,84	375,63
C ₃	1,48	2,27	29,62	45,38	14,81	22,69	88,84	136,12
C ₄	1,48	1,48	29,62	29,62	14,81	14,81	88,84	88,84
PC	1,48	1,48	29,62	29,62	14,81	14,81	88,84	88,84
Rio								
x < 5,67	3,91 x 10 ⁻⁴	1,48	0,023	88,84	0,0078	29,62	0,0039	14,81
<b>C</b> ₇	3,91 x 10 ⁻⁴	0,00155	0,023	0,093	0,0078	0,031	0,0039	0,016

Tabela 5-32: Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores obtidos na Figura 5-18 e na Figura 5-19 para C_{wt} (²²⁶Ra).

A representação destes valores encontra-se na Figura 5-24 e na Figura 5-25.



Figura 5-24: Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores obtidos na Figura 5-18 para C_{wt} (²²⁶Ra) na ribeira da Pantanha.



Figura 5-25: Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores obtidos na Figura 5-19 para  $C_{wt}$  (²²⁶Ra) no rio Mondego.

O caso anterior corresponde ao efluente descarregado na ribeira sem tratamento prévio. A média de todos os resultados obtidos, referentes à mesma margem da ribeira onde se dá a descarga, em função da distância ao ponto de descarga originou os seguintes valores:  $C_{sb} = 14.2$  Bq/kg,  $C_{ss} = 283.8$  Bq/kg,  $C_{ws} = 141.9$  Bq/m³ e  $C_{sw} = 851.2$  Bq/kg. No caso do rio, os valores obtidos foram os seguintes:  $C_{sb} = 0.27$  Bq/kg,  $C_{ss} = 16.31$  Bq/kg,  $C_{ws} = 5.44$  Bq/m³ e  $C_{sw} = 2.72$  Bq/kg.

Tabela 5-33: Resultados da exploração do modelo, n	no caso dos sedimentos, com os valores da
Tabela 5-28 para C	C _{wt} ( ²²⁶ Ra).

Piboira	C _{sb}	C _{sb}	Css	Css	Cws	C _{ws}	Csw	Csw
Ribella	(mo)	(mm)	(mo)	(mm)	(mo)	(mm)	(mo)	(mm)
m	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/m ³	Bq/m ³	Bq/kg	Bq/kg
x < 1,4	0,073	12,902	4,4	774,12	1,47	258,10	0,73	129,05
<b>C</b> ₂	0,073	0,31	4,4	18,61	1,47	6,20	0,73	3,10
<b>C</b> ₃	0,073	0,112	4,4	6,74	1,47	2,25	0,73	1,12
<b>C</b> ₄	0,073	0,073	4,4	4,40	1,47	1,47	0,73	0,73
PC	0,073	0,073	4,4	4,40	1,47	1,47	0,73	0,73
Rio								
x < 5,67	1,93 x 10 ⁻⁵	0,073	0,00116	4,40	3,87 x 10 ⁻⁴	1,47	1,93 x 10 ⁻⁴	0,73
<b>C</b> ₇	1,93 x 10 ⁻⁵	7,68 x 10 ⁻⁵	0,00116	0,0046	3,87 x 10 ⁻⁴	0,0015	1,93 x 10 ⁻⁴	7,68 x 10 ⁻⁴







Figura 5-27: Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores obtidos no Tabela 5-28 para C_{wt} (²²⁶Ra) no rio Mondego.

O caso anterior corresponde à exploração do modelo com os valores analíticos obtidos pela ENU no processo de monitorização das linhas de água da envolvente mineira da Urgeiriça (1997). A média de todos os resultados obtidos, referentes à mesma margem da ribeira onde se dá a descarga, em função da distância ao ponto de descarga, originou os seguintes valores:  $C_{sb} = 0,70$  Bq/kg,  $C_{ss} = 42,17$  Bq/kg,  $C_{ws} = 14,06$  Bq/m³ e  $C_{sw} = 7,03$  Bq/kg. No caso do rio, os valores obtidos foram os seguintes:  $C_{sb} = 0,01$  Bq/kg,  $C_{ss} = 0,81$  Bq/kg,  $C_{ws} = 0,27$  Bq/m³ e  $C_{sw} = 0,13$  Bq/kg.

Biboira	C _{sb}	C _{sb}	Css	Css	Cws	C _{ws}	Csw	Csw
Ribella	(mo)	(mm)	(mo)	(mm)	(mo)	(mm)	(mo)	(mm)
m	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/m ³	Bq/m ³	Bq/kg	Bq/kg
x < 1,4	0,0189	3,3326	1,137	199,957	0,379	66,667	0,190	33,333
C2	0,0189	0,0801	1,137	4,807	0,379	1,603	0,190	0,801
C3	0,0189	0,0290	1,137	1,742	0,379	0,581	0,190	0,290
C4	0,0189	0,0189	1,137	1,137	0,379	0,379	0,190	0,190
PC	0,0189	0,0189	1,137	1,137	0,379	0,379	0,190	0,190
Rio								
x < 5,67	5,02 x 10 ⁻⁶	1,90 x 10 ⁻²	3,0 x 10 ⁻⁴	1,14	0,0001	0,38	5,02 x 10 ⁻⁵	0,19
C7	5,02 x 10 ⁻⁶	1,99 x 10 ⁻⁵	3,0 x 10 ⁻⁴	0,0012	0,0001	3,99 x 10 ⁻⁴	5,02 x 10 ⁻⁵	1,99 x 10 ⁻⁴

Tabela 5-34: Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores da Tabela 5-29 para  $C_{wt}$  (²²⁶Ra).



Figura 5-28: Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores da Tabela 5-29 para  $C_{wt}$  (²²⁶Ra) para a ribeira da Pantanha.



Figura 5-29: Resultados da exploração do modelo, no caso dos sedimentos, com os valores da Tabela 5-29 para C_{wt} (²²⁶Ra) para o rio Mondego.

O caso anterior corresponde à exploração do modelo com os valores analíticos obtidos pela EXMIN (2003). A média de todos os resultados obtidos, referentes à mesma margem da ribeira onde se dá a descarga, em função da distância ao ponto de descarga originou os seguintes valores:  $C_{sb} = 0,182$  Bq/kg;  $C_{ss} = 10,89$  Bq/kg;  $C_{ws} = 3,63$  Bq/m³ e  $C_{sw} = 1,82$  Bq/kg. No caso do rio, os valores obtidos foram os seguintes:  $C_{sb} = 0,003$  Bq/kg;  $C_{ss} = 0,210$  Bq/kg;  $C_{ws} = 0,070$  Bq/m³ e  $C_{sw} = 0,035$  Bq/kg.

Fez-se ainda a média dos valores obtidos para a concentração nos sedimentos  $(C_{sb}, C_{ss}, C_{ws}, C_{sw})$  em cada ponto de exposição (x < 1,4; C₂; C₃; C₄; PC; x < 5,67 e C₇), distintamente para a ribeira da Pantanha e para o rio Mondego. Os resultados obtidos para os 4 casos estudados encontram-se na tabela seguinte.

1. Caso – Efluente tratado	<b>C</b> _{sb} (Bq/kg)	<b>C</b> _{ss} (Bq/kg)	$\mathbf{C}_{ws}$ (Bq/m ³ )	$\mathbf{C}_{sw}\left(Bq/kg ight)$
Ribeira da Pantanha	9,54	572,65	190,9	95,46
Rio Mondego	0,13	7,8	2,6	1,3
2. Caso – Efluente não tratado				
Ribeira da Pantanha	54,38	1087,88	543,9	3262,9
Rio Mondego	0,74	44,47	14,83	7,41
3. Caso – Dados ENU 1997				
Ribeira da Pantanha	2,69	161,66	53,90	26,95
Rio Mondego	0,04	2,2	0,73	0,37
4. Caso – Dados EXMIN 2003				
Ribeira da Pantanha	0,7	41,76	13,92	6,96
Rio Mondego	0,01	0,57	0,19	0,1

Tabela 5-35: Média dos valores obtidos para a concentração nos sedimentos ( $C_{sb}$ ,  $C_{ss}$ ,  $C_{ws}$ ,  $C_{sw}$ ) em cada ponto de exposição (x < 1,4;  $C_2$ ;  $C_3$ ;  $C_4$ ; PC; x < 5,67 e  $C_7$ ).

Os resultados analíticos obtidos pela EXMIN para a concentração em rádio nos sedimentos da ribeira da Pantanha, segundo Pereira et al. (2004b) apresentam média e desvio padrão igual a 282 ± 200 Bq/kg. Este valor resultou de uma campanha de amostragem, realizada em época seca, de 9 amostras colhidas ao longo do curso da ribeira e também em alguns pontos do rio Mondego. Segundo o autor, a concentração de rádio nos sedimentos, ou o teor de rádio, em função da distância à área mineira, segue o padrão aproximado apresentado na Tabela 5-36.

Tabela 5-36: Concentração de ²²⁶Ra nos sedimentos em função da distância à área mineira da Urgeiriça segundo Pereira et al. (2004b).

x	²²⁶ Ra (Bq/kg)
250	210
500	370
1250	600
1900	425
3000	190
3750	100

Estes resultados demonstram uma clara evidência da contaminação devido à actividade mineira desenvolvida na região e verifica-se que os valores mais elevados para a concentração em rádio ocorrem a uma distância compreendida entre 1500 e 2000 m da área mineira, estendo-se a influência ainda para além de 3000 m de distância (Pereira et al., 2004b).

Bettencourt et al. (1988), num estudo efectuado na ribeira da Pantanha que consistiu na amostragem dos sedimentos em 4 pontos da ribeira, obteve os valores médios representados na Tabela 5-37 para a concentração em rádio nos sedimentos.

Tabela 5-37: Concentração de ²²⁶Ra nos sedimentos em função da distância à área mineira da Urgeiriça segundo Bettencourt et al. (1988).

Ponto de exposição	X	²²⁶ Ra (Bq/kg)
P ₁	3300	160 ± 10
P ₂	300	700 ± 200
M ₁	200	160 ± 120
$M_2$	800	180 ± 30

Os pontos P₁ e P₂ referem-se aos sedimentos da ribeira da Pantanha, a montante e a jusante, respectivamente, do ponto de descarga do efluente. Os pontos M₁ e M₂ referem-se aos sedimentos do rio Mondego a montante e a jusante, respectivamente, do ponto de confluência da ribeira com o rio. O ponto de exposição identificado na exploração por C₂ é o que se localiza mais próximo do P₂ e o ponto M₁ e M₂ correspondem aos pontos de exposição C₆ e C₇, respectivamente.

Os resultados obtidos por este autor revelam a existência de contaminação radiológica na ribeira da Pantanha em que a contaminação a jusante do ponto de descarga é bastante superior relativamente à contaminação a montante deste ponto.

Os valores obtidos para a concentração de rádio nos sedimentos do rio Mondego a jusante do ponto de confluência não diferem muito dos valores obtidos para este parâmetro, a jusante do mesmo ponto, o que pode ser explicado pelo facto de que grande parte dos RDN presentes no efluente descarregado na ribeira ficam retidos ao longo da mesma, devido à sedimentação e por conseguinte, a contaminação não chega a afectar o rio. Por outro lado, a junção destes sedimentos aos que são transportados pelo rio, mais volumosos, também pode ser um contributo para a redução da concentração de rádio nos sedimentos do rio.

Fez-se ainda a exploração do modelo da estimativa da concentração de RDN nos sedimentos tendo como *inputs* directos os valores analíticos para a concentração de ²²⁶Ra na água superficial. Assim, adoptou-se o valor de 140 ± 180 Bq/m³ para a concentração média em rádio na água da ribeira da Pantanha a que corresponde o valor médio (determinado analiticamente) de 282 ± 200 Bq/kg para a concentração em rádio nos sedimentos (Pereira et al., 2004b). O valor obtido, pelo modelo, para a concentração em rádio nos sedimentos foi de 400 Bq/kg.

Por outro lado, aplicando a modelagem inversa para se obter os valores da Tabela 5-36 e da Tabela 5-37 com a simulação do modelo, seriam necessárias as seguintes concentrações em rádio na água superficial:

Tabela 5-38: Concentração em ²²⁶Ra na água superficial obtida a partir da exploração do modelo com os valores da Tabela 5-35.

x	²²⁶ Ra (Bq/m ³ )	²²⁶ Ra (Bq/kg)
250	75	210
500	130	370
1250	210	600
1900	149	425
3000	67	190
3750	35	100

Tabela 5-39: Concentração em ²²⁶Ra na água superficial obtida a partir da exploração do modelo com os valores da Tabela 5-36.

Ponto de exposição	x	²²⁶ Ra (Bq/m ³ )	²²⁶ Ra (Bq/kg)
P ₁	3300	56 ± 4	160 ± 10
P ₂	300	245 ± 70	700 ± 200
<b>M</b> ₁	200	56 ± 42	160 ± 120
M ₂	800	63 ± 11	180 ± 30

#### 5.4.2.5 Estimativa da transferência para a biota aquática no estudo de caso

Na transferência da actividade para o biótipo aquático consideramos os peixes, ou a ingestão de peixes contaminados, como a principal via de transferência. No curso de água considerado como receptor do efluente contaminado (ribeira da Pantanha) não há peixes. Assim, a contaminação através da cadeia alimentar aquática apenas poderá ocorrer no rio Mondego, já a alguns km afastado da zona mineira (Bettencourt et al., 1988).

Como dados de entrada vamos ter a concentração na água do rio (C_{wt}) que consideramos ser o valor mais elevado obtido para este parâmetro, e o factor de bioacumulação nos peixes (B_p) adoptados da bibliografia (IAEA, 2001). Os pontos de exposição na ribeira da Pantanha não foram considerados dado que na ribeira não há peixes: apenas consideramos os pontos de exposição no rio Mondego. Como resultado, obtemos a concentração em rádio nos peixes de acordo com o valor de B_p adoptado. Os valores encontram-se representados na Tabela 5-40.

Parâmetros ²²⁶ Ra	Unidades	Valores
C _{wt} x < 5,7 m	(Bq/m ³ )	31,10
C _{wt} x = 800 m	(Bq/m ³ )	0,03
B _p	(L.kg ⁻¹ )/(m ³ .L ⁻¹ )	50
$C_{peixes} x < 5,7 m$	(Bq/kg)	1,56
$C_{peixes} x = 800 m$	(Bq/kg)	0,002

Tabela 5-40: Resultados da exploração do modelo de transferência para a biota aquática referente ao estudo de caso da Urgeiriça.

### 5.5 Discussão dos resultados e conclusões

Nos resultados obtidos pelo modelo, os valores da concentração em rádio na água superficial vão diminuindo com a distância do ponto de descarga ao ponto de exposição. Da observação da Figura 5-16 e da Figura 5-17 verifica-se uma descida acentuada logo após alguns metros do ponto de descarga do efluente, a que corresponde o ponto de "viragem" igual a 7 vezes a profundidade do ribeiro e no qual se supõe que a mistura na vertical passa a ser completa. Isto significa que há diluição o que provoca a diminuição brusca da concentração neste ponto, seguindo-se uma diminuição gradual a partir deste até atingir um valor a partir do qual se mantém constante. Este valor constante corresponde ao valor da linha central da pluma de contaminação.

Da comparação dos valores obtidos no modelo com os valores analíticos fornecidos pela ENU (1998) verifica-se uma tendência diferente, na medida em que há inicialmente uma diminuição da concentração com a distância ao ponto de descarga, nomeadamente de  $C_2$  para  $C_3$  mas depois verifica-se um aumento de  $C_3$  para  $C_4$ , voltando outra vez a diminuir de  $C_4$  para  $C_7$ . Isto pode ser devido à ocorrência da drenagem de outras infiltrações ácidas na área envolvente da barragem até este ponto pela fracturação existente, ou então pela existência de solos contaminados pelas mesmas drenagens no leito da ribeira (Bettencourt et al., 1988) o que significa que existem outras contribuições de rádio para a ribeira, além do efluente descarregado. Isto pode ainda ser reforçado pelo facto dos valores analíticos serem sempre muito superiores aos obtidos no modelo de forma geral, pois neste apenas se considera a contaminação originada pelo efluente lançado na ribeira.

Da comparação do valor indicado por Pereira e al. (2004b) referente à concentração média de rádio ao longo da ribeira (0,140 ± 0,180 Bq/L), com a média

dos valores obtidos, em cada ponto de exposição na simulação do modelo em cada caso de exploração, nomeadamente:  $1.^{\circ}$  caso  $- C_{wt} = 200,5$  Bq/m³;  $2.^{\circ}$  caso  $- C_{wt} = 1142,3$  Bq/m³;  $3.^{\circ}$  caso  $- C_{wt} = 56,6$  Bq/m³;  $4.^{\circ}$  caso  $- C_{wt} = 14,6$  Bq/m³, apenas no  $2.^{\circ}$  caso de exploração, a que corresponde a descarga de um efluente não tratado, o valor é exageradamente elevado, como seria de esperar.

Considerou-se que a concentração em rádio no ponto  $C_6$  é nula dado que não se verifica o efeito da maré para impulsionar a contaminação para montante do ponto de descarga. Neste caso, a velocidade da corrente transporta a contaminação para jusante, não atingindo assim o ponto  $C_6$ , a montante do ponto de descarga. No ponto  $C_7$  a contaminação na água superficial tenderá a desaparecer por diluição no rio Mondego.

O caudal de efluente descarregado na ribeira da Pantanha no ano de 2000 foi aproximadamente 300 000 m³ (EXMIN, 2003). Deve-se referir que em 2000 a mina estava parada bem como a oficina de tratamento químico. Estima-se que em 1997, e nos anos anteriores, o caudal de efluente lançado na ribeira fosse muito superior ao valor adoptado na simulação, pois segundo a ENU (1998), entre 1950 a 1991, a oficina de tratamento químico tratou anualmente cerca de 125 000 ton de U₃O₈. Prevê-se que seria necessário um caudal anual da ordem de 4700 L (4 700 000 m³) para se obter valores no modelo de exploração semelhantes aos valores analíticos apresentados pela ENU referentes a 1997, em cada ponto de monitorização considerado.

A variação da concentração nos sedimentos segue a mesma tendência de concentração na água superficial, isto é, mantém-se constante até ao ponto de "viragem", originado pela mistura vertical completa e pela diluição neste ponto, diminuindo bruscamente neste ponto e gradualmente a partir deste até atingir a correspondente concentração da linha central da pluma de contaminação, mantendo-se igual e constante, a partir daqui. O mesmo não se verifica para os resultados obtidos analiticamente para os sedimentos cujos valores mais elevados ocorrem, não na vizinhança imediata da área mineira, mas para distâncias entre 1500 a 2000 m desta (Pereira et al., 2004b). Esta tendência está de acordo com o que se verifica na água superficial, em que há um aumento da concentração do ponto C₃, situado a 1650 m a jusante do ponto de descarga, para o ponto C₄, situado a 2750 m do ponto de descarga, o que revela a clara influência da concentração de rádio na água com a consequente concentração nos sedimentos. Ressalvamos mais uma vez que o modelo de exploração só contempla a variação da contaminação com a distância, resultante

do efluente descarregado. Isto é importante ter em atenção porque o aumento da concentração de rádio nos sedimentos, poderá ter também outra origem que não o efluente descarregado, nomeadamente pode resultar da irrigação dos solos vizinhos com água contaminada, mas estará directamente dependente da concentração de rádio na água superficial.

Não temos disponíveis valores analíticos da concentração nos sedimentos, em cada ponto de exposição, para se poder comparar com os valores obtidos no modelo. Podemos, no entanto comparar com os valores de dois pontos localizados nos sedimentos da ribeira com origem em outra fonte bibliográfica, Bettencourt et al. (1988). Os pontos referenciados por este autor ao longo da ribeira da Pantanha, P₂ e M₂, aproximam-se da localização dos pontos identificados no modelo por C₂ e C₇, respectivamente. Os valores analíticos da concentração em rádio nos sedimentos para estes dois pontos são:  $C_{ss}$  (P₂) = 700 ± 200 Bq/kg e  $C_{ss}$  (M₂) = 180 ± 30 Bq/kg (Bettencourt et al, 1988). Os valores obtidos no modelo, para a concentração em rádio nos sedimentos nos sedimentos nestes dois pontos, são os seguintes:

- 1.° caso de exploração:  $C_{ss}$  ( $C_2$ ) = 65,92 Bq/kg e  $C_{ss}$  ( $M_2$ ) = 0,0163 Bq/kg;
- 2.º caso de exploração: C_{ss} (C₂) = 125,24 Bq/kg e C_{ss} (M₂) = 0,093 Bq/kg;
- 3.º caso de exploração: C_{ss} (C₂) = 18,61 Bq/kg e C_{ss} (M₂) = 0,0046 Bq/kg;
- 4.º caso de exploração: C_{ss} (C₂) = 4,8 Bq/kg e C_{ss} (M₂) = 0,0012 Bq/kg.

De forma geral, os valores estimados são muito inferiores aos valores analíticos.

Tentamos ainda fazer uma comparação do valor referido por Pereira e al. (2004b) para a concentração média de rádio nos sedimentos ao longo da ribeira, igual a 282 ± 200 Bq/kg, com a média dos valores obtidos em cada ponto, segundo cada caso de exploração. Desta forma, os valores obtidos para cada um dos casos são os seguintes:

- 1.º caso de exploração, C_{ss} = 572,65 Bq/kg;
- 2.º caso de exploração, C_{ss} = 1087,88 Bq/kg;
- 3.º caso de exploração, C_{ss} = 161,66 Bq/kg;
- 4.º caso de exploração,  $C_{ss} = 41,76$  Bq/kg.

Apenas o terceiro caso encontra-se dentro do intervalo do valor analítico obtido.

Por outro lado, se na exploração do modelo para os sedimentos, forem usados como dados de entrada os valores analíticos para a concentração em rádio na água superficial, a concentração nos sedimentos é da mesma ordem de grandeza dos valores obtidos analiticamente para os sedimentos, o que vem reforçar a dependência directa da determinação da concentração de rádio na água superficial.

De forma genérica, podemos referir que quando analisamos a concentração pontualmente, referente a cada ponto de exposição, quer para a água superficial, quer para os sedimentos, os valores estimados afastam-se muito dos valores analíticos que constam nos dados de monitorização efectuada pela ENU (1988). Por outro lado, quando analisamos a média dos valores estimados para cada ponto de exposição, quer para a água superficial quer para os sedimentos, os valores estimados aproximam-se bastante da média dos valores analíticos obtidos pela EXMIN para este parâmetro.

Podemos ainda referir que na exploração do modelo identificamos alguns parâmetros muito sensíveis e críticos, nomeadamente o caudal do efluente descarregado, a concentração de rádio no efluente e o facto de não se contemplar outras contribuições para a contaminação da água superficial para além do efluente, que só é considerado no modelo aplicado aos lagos.

No anexo E encontram-se representadas as várias simulações do modelo para as diferentes situações consideradas no caso de exploração teórico e no estudo de caso da Urgeiriça.

# Modelos Fenomenológicos de Distribuição Intercompartimental de Substâncias Radioactivas

Maria de Lurdes Proença de Amorim Dinis



Departamento de Engenharia de Minas Faculdade de Engenharia da Universidade do Porto

## Volume II

Dissertação para obtenção do grau de Doutor em Engenharia do Ambiente Sob a orientação científica do Professor Doutor António Manuel Antunes Fiúza

Junho 2007

Copyright © 2007 Maria de Lurdes Dinis (<u>mldinis@fe.up.pt</u>) Reservados todos os direitos de publicação, tradução e adaptação. Interdita a reprodução parcial ou integral sem prévia autorização da autora.

# Índice

## Volume II

Capítulo	6 - Modelo de transferência para a vegetação	353
6.1	Introdução	355
6.2	O solo e a vegetação – conceitos e generalidades	356
6.2.1	Composição e propriedades do solo	356
6.2.2	Os metais tóxicos no solo	358
6.2.3	Nutrientes vegetais	359
6.2.4	Transporte e absorção dos nutrientes no solo	359
6.2.5	Estrutura e crescimento das plantas	360
6.3	A fito-reabilitação	369
6.3.1	Fito-estabilização	370
6.3.2	Fito-extracção	371
6.3.3	Rizofiltração	372
6.3.4	Fito-volatilização	373
6.3.5	Fito-degradação	374
6.3.6	A aplicabilidade da fito-remediação	375
6.4	Absorção e translocação dos metais nas plantas	376
6.5	As contaminações radioactivas e a fito-remediação	377
6.6	O caso particular do urânio no solo	379
6.7	Factores de transferência solo-planta	383
6.7.1	Factores que afectam a transferência solo-planta	383
6.7.2	A estimativa dos factores de transferência	385
6.7.3	O coeficiente de distribuição, K _d	390
6.7.4	Factores de transferência solo-planta para o rádio, urânio e chumbo	393
6.8	O caso da Urgeiriça	399
6.9	O modelo de transferência para a vegetação	408
6.9.1	O modelo conceptual de transferência para a vegetação	409
6.9.2	Os parâmetros envolvidos no modelo de transferência para a vegetaçã	áo 410
6.9.3	Descrição matemática do modelo de transferência para a vegetação	417
6.9.4	O transporte ambiental dos RDN	422
6.9.5	Transferência dos RDN para a vegetação (deposição e irrigação)	425
6.10	Exploração do modelo de transferência para a vegetação	430
6.10.	1 Exploração do modelo para um caso teórico	431

6.10	.2 Cálculo dos factores de transferência	439
6.10	.3 Cálculo do FT a partir da concentração no resíduo estimada teoricamente.	. 442
6.10	.4 Cálculo do FT a partir da concentração no resíduo determinada	
	experimentalmente	. 447
6.10	.5 Exploração do modelo para a vegetação existente sobre o local de deposiç	ão de
	resíduos radioactivos	460
6.10	.6 Cálculo da actividade na área envolvente à da deposição do resíduo	468
6.11	Discussão dos resultados e conclusões	. 478
Capítulo	7 - Modelo de transferência na cadeia alimentar	485
7.1	Introdução	. 487
7.2	Os radionuclídeos principais	. 489
7.3	Descrição do modelo	. 493
7.3.1	O modelo conceptual	. 493
7.3.2	Pressupostos e simplificações	. 499
7.3.3	B Descrição do modelo matemático	. 500
7.3.4	Conclusões	. 511
7.4	Exploração do modelo	. 512
7.4.1	Parâmetros independentes dos radionuclídeos	. 512
7.4.2	Parâmetros dependentes dos radionuclídeos	. 513
7.4.3	8 Exploração do modelo para o rádio ( ²²⁶ Ra)	. 515
7.4.4	Exploração do modelo para o urânio ( ²³⁵ U e ²³⁸ U)	. 542
7.4.5	Exploração do modelo para o chumbo ( ²¹⁰ Pb)	. 561
7.4.6	Exploração do modelo para o polónio ( ²¹⁰ Po)	. 573
7.4.7	Exploração do modelo para o tório ( ²³² Th, ²³⁴ Th e ²³⁰ Th)	. 594
Capítulo	8 - Conclusões	. 613
8.1	Conclusões	. 615
8.2	Perspectivas futuras	. 629
Capítulo	9 - Bibliografia	. 631
Anexos		649
Anexo A:	Medições efectuadas no local em estudo (dados cedidos pela EXMIN)	651
Anexo B:	Dedução do factor de correcção para o transporte subterrâneo	663
Anexo C:	Libertação contínua e variável no tempo	671
Anexo D:	Tabelas de apoio ao modelo de transporte de RDN na água superficial	697

Representação da exploração do modelo de transporte e transferência no	
meio aquático em diferentes condições	703
Classificação e definição dos tecidos vegetais	711
O modelo matemático da transferência solo/planta	717
Transferência dos RDN para a vegetação (alguns conceitos)	725
Transferência dos RDN para a vegetação pela deposição (caso particular	
dos actinídeos)	743
Artigos publicados no âmbito deste trabalho	761
	Representação da exploração do modelo de transporte e transferência no meio aquático em diferentes condições Classificação e definição dos tecidos vegetais O modelo matemático da transferência solo/planta Transferência dos RDN para a vegetação (alguns conceitos) Transferência dos RDN para a vegetação pela deposição (caso particular dos actinídeos) Artigos publicados no âmbito deste trabalho

"Só a imaginação nos torna capazes de vermos as coisas segundo a sua perspectiva própria, de sermos suficientemente fortes para pormos aquilo que está demasiado perto a certa distância (...), ver e compreender as coisas que estão demasiado longe de nós como se fossem caso nosso. Sem essa espécie de imaginação, que é na realidade a nossa própria compreensão, jamais seríamos capazes de nos situar no mundo. É a única bússola interior de que dispomos."

Hannah Arendt in "Essays in Understanding" (1930-1957).
# Capítulo 6

## Modelo de transferência para a vegetação

## Resumo

O modelo de transferência para a vegetação é constituído pelos vários processos que traduzem e quantificam matematicamente os mecanismos de transferência, de transporte, de absorção e de translocação dos radionuclídeos na vegetação. Foi desenvolvido um submodelo para cada uma das possíveis trajectórias de contaminação: absorção pelas raízes, deposição e ressuspensão considerando que a transferência dos radionuclídeos pode ter origem quer na deposição quer na irrigação com água contaminada proveniente de um poço. O modelo conceptual contempla assim cada um dos processos ou trajectórias de transferência que pode ter origem em dois compartimentos diferentes: o ar e o solo. No primeiro caso, a transferência envolve a deposição (caracterizada pela velocidade de deposição), a intercepção (descrita pela fracção da actividade que se deposita e é captada pela vegetação) e a retenção (traduzida pela constante de semi-vida da meteoração). No segundo caso, o comportamento dos radionuclídeos no solo e a sua posterior remoção reflecte as características físico-químicas do radionuclídeo, as propriedades do solo, o tipo de vegetação, a hidrologia e a geologia do local. Por último, os diferentes processos são combinados num modelo global para simular a transferência dos radionuclídeos segundo cada trajectória de contaminação e estimar a concentração total combinando a contaminação interna com a externa. Foram feitas várias simulações do modelo guer para um caso teórico, quer para um cenário real, nomeadamente a barragem velha de rejeitados da mina da Urgeiriça. Os resultados deste modelo vão ter seguimento no capítulo seguinte com a descrição do modelo que simula a transferência dos radionuclídeos na cadeia alimentar através da trajectória de ingestão da vegetação contaminada pelos animais de pasto.

## 6.1 Introdução

O risco da contaminação da cadeia alimentar através do solo contaminado depende directamente da disponibilidade dos metais no solo, isto é, a sua disponibilidade para serem transferidos para a solução do solo (fito-disponibilidade). Contrariamente à água e ao ar, a contaminação dos solos é bastante mais complexa,

na medida em que ocorrem fortes interacções entre os contaminantes e os componentes do solo bem como entre os próprios contaminantes.

De uma forma geral, as plantas (ou vegetais) podem reagir à presença dos metais no solo de diversas formas de acordo com a sua espécie e a variedade: actuam ao nível da transferência dos metais no solo, podendo alterar a sua forma química bem como o seu estado no sistema solo-planta-água-ar.

A transferência dos contaminantes do solo para as plantas ocorre através de fluxos que deverão ser minimizados para reduzir a sua exposição na cadeia alimentar, ou maximizados na tentativa de remediar o solo contaminado, através das técnicas de fito-reabilitação. Neste caso, pretende-se que os contaminantes sejam efectivamente transferidos para a flora. O risco da contaminação da cadeia alimentar é menor se as plantas actuarem preferencialmente nos metais com maior mobilidade (fito-disponíveis).

A interface solo-raiz é caracterizada por grandes deslocamentos na solubilidade dos elementos o que pode ser usado e até manipulado, para realçar a capacidade das plantas para remover ou imobilizar os metais em solos contaminados. A capacidade de remoção do contaminante do solo pela planta pode ser quantificada pelo quociente entre a concentração do contaminante na planta e a concentração do contaminante no solo e traduz o factor de transferência solo-planta (FT).

## 6.2 O solo e a vegetação – conceitos e generalidades

## 6.2.1 Composição e propriedades do solo

Para que o solo possa servir de suporte para todos os seres vivos, possui uma constituição onde predominam a matéria mineral, a matéria orgânica, a água e o ar. Os solos são constituídos por três fases: sólida (matriz), líquida (solução do solo) e gasosa (atmosfera do solo). A matriz é constituída pelas substâncias minerais e pela matéria orgânica.

A matéria mineral presente no solo divide-se em minerais primários, que resultam da meteoração química das rochas, tais como o quartzo, a mica, entre outros e, minerais secundários como a argila, os óxidos e dióxidos de ferro e o alumínio, resultantes da meteoração química dos minerais primários.

A quantidade de matéria orgânica depende da velocidade a que esta é degradada, encontrando-se principalmente à superfície o que vai influenciar bastante a fertilidade do solo.

O ar existente no solo é uma combinação dos gases atmosféricos com os gases libertados pelas plantas, formando assim a atmosfera do solo. A atmosfera do solo tem teores mais baixos de oxigénio e teores mais altos de vapor de água e de dióxido de carbono, por comparação com a atmosfera.

A água existente no solo contém partículas nutrientes essenciais às plantas, formando a solução do solo. A solução do solo contém vários elementos na forma de iões livres, ou de complexos e quelatos formados com ligandos minerais e orgânicos. Os quelatos são composto nos quais um ião metálico é anexado por ligações covalentes a dois ou mais átomos não metálicos na mesma molécula. Os agentes quelantes são usados para remover metais da fracção insolúvel do solo e mantê-los em solução.

Cada tipo de solo apresenta determinadas características, dependendo da sua composição. As características podem ser a cor, a textura, a estrutura, o pH, a porosidade e a permeabilidade.

A cor do solo depende da sua composição química. Solos escuros são ricos em óxidos de ferro hidratados. Solos avermelhados possuem óxidos de ferro não hidratados e certos compostos de manganês. Solos cinzentos-claros ou esbranquiçados possuem quartzo, feldspato, carbonatos de cálcio e magnésio, não possuindo óxidos.

A textura do solo depende das dimensões das partículas que o constituem. A medição dos grãos e a sua proporção identificam a textura do solo. Podem ser classificados em solos arenosos quando constituídos essencialmente por areia grossas ( $0,2 \le \phi \le 2$  mm), e/ou fina ( $0,02 \le \phi \le 0,2$  mm), solos limosos, quando constituídos por limo ( $0,02 \le \phi \le 0,002$  mm), solos argilosos, quando constituídos por argila ( $\phi \le 0,002$  mm) e solos francos, quando constituídos por relativamente a mesma quantidade de areia, argila e limo (Costa, 1999).

A estrutura do solo depende da sua textura, do arranjo, da forma das suas partículas e também do espaço existente entre as partículas. Cada tipo de solo, dependendo da sua textura e estrutura, possui determinada porosidade e permeabilidade a qual define a capacidade do solo para reter água. Em solos muito

permeáveis pode ocorrer a lixiviação em que a água, e todos os nutrientes dissolvidos, são transportados para as camadas inferiores. Cada nutriente é absorvido pelas plantas com determinado pH que depende não só da constituição do solo, mas também das reacções químicas que ocorrem nas plantas presentes e condiciona o crescimento vegetal, a actividade dos microrganismos e a disponibilidade de nutrientes. A maioria dos nutrientes é absorvida a pH = 7. Em solos ácidos podem ocorrer toxicidades de alumínio e de manganésio enquanto que os níveis de cálcio, magnésio, fósforo e molibdénio em solução são baixos. Nos solos alcalinos, em particular nos calcários, surgem deficiências de fósforo e dos micronutrientes ferro, zinco, manganésio e boro (Varennes, 2003).

#### 6.2.2 Os metais tóxicos no solo

Os metais pesados são definidos como elementos com propriedades metálicas (ductibilidade, condutividade, catiões estáveis, etc.) e com número atómico superior a 20. Os metais pesados contaminantes mais comuns são: Cd, Cr, Cu, Hg, Pb e Zn.

No solo, os metais podem estar associados a várias fracções: i) na solução do solo na forma de iões metálicos livres e complexos metálicos solúveis, ii) adsorvidos aos constituintes inorgânicos do solo, iii) ligados à matéria orgânica do solo, iv) precipitados como óxidos, hidróxidos, carbonatos e v) encaixados na estrutura dos silicatos.

As interacções químicas dos metais com a matriz do solo vão condicionar a biodisponibilidade dos metais dependente da solubilidade do metal na solução do solo. Apenas os metais associados com as fracções i) e ii) estão na forma disponível para serem absorvidos pelas plantas.

Geralmente, a sorção pelas partículas do solo reduz a actividade dos metais. Desta forma, quanto maior a capacidade de troca iónica do solo, maior a sorção e imobilização dos metais. Em solos ácidos, a desorção dos metais para a solução é estimulada devido à competição com o ião H⁺: o pH do solo afecta não só a biodisponibilidade, mas também o processo de absorção dos metais pelas raízes, sendo este efeito específico de cada metal.

## 6.2.3 Nutrientes vegetais

As plantas são capazes de sintetizar todas as moléculas orgânicas de que necessitam a partir da água, do dióxido de carbono atmosférico e de elementos minerais, utilizando a radiação solar como fonte de energia. Absorvem os elementos presentes na solução do solo, mesmo que deles não necessitem. Os elementos essenciais para as plantas, são designados por nutrientes vegetais.

Os nutrientes podem ser classificados de acordo com critérios fisiológicos ou quantitativos. No primeiro caso, são divididos em quatro grupos conforme as funções desempenhadas nas plantas. Segundo o critério quantitativo, o carbono, o oxigénio, o hidrogénio, o azoto, o fósforo, o potássio, o cálcio, o magnésio e o enxofre são designados por macronutrientes, por serem necessários em quantidades mais elevadas, enquanto que o ferro, o manganês, o zinco, o cobre, o níquel, o boro, o molibdénio e o cloro são designados por micronutrientes. O sódio, o silício e o cobalto são designados por elementos benéficos porque estimulam o crescimento de algumas plantas, não sendo essenciais, ou são essenciais apenas para algumas espécies.

#### 6.2.4 Transporte e absorção dos nutrientes no solo

Os nutrientes deslocam-se na solução do solo em direcção às raízes quer por movimento convectivo na massa de água que está a ser absorvida pelas plantas, processo designado por fluxo de massa, quer por difusão dos locais de maior para os de menor concentração.

A velocidade do transporte depende do teor de água no solo, da concentração do nutriente na água, da temperatura, e das características do solo que influenciam a tortuosidade do percurso e a adsorção dos elementos na matriz. A velocidade de transporte é grande para o azoto, considerado como nutriente móvel, pequena para o fósforo, considerado como nutriente imóvel no solo, e intermédia para o potássio.

A absorção de água e dos nutrientes está dependente da formação de um sistema radicular com um comprimento adequado à espécie vegetal (a difusão é proporcional à área). O crescimento das raízes depende de características genéticas, mas também é influenciado por factores ambientais como a temperatura, o arejamento do solo, o pH, o teor de água e de nutrientes, e a compactação do solo.

A velocidade de absorção dos nutrientes depende da sua abundância à superfície radicular, do tamanho do catião, da carga do anião, do pH, da temperatura e do arejamento do solo. O balanço entre catiões e aniões absorvidos vai influenciar o pH da rizosfera (volume de solo sob a influência das raízes) bem como a concentração de ácidos orgânicos nas plantas, cuja síntese ou degradação constitui um processo usado para regular o pH celular.

#### 6.2.5 Estrutura e crescimento das plantas

Quase todas as plantas terrestres têm uma estrutura básica idêntica consistindo em raízes, caule e folhas. As funções destes órgãos são idênticas para todas as espécies.

As raízes constituem a parte subterrânea da planta, responsável pela fixação ao substrato, pelo armazenamento de substâncias e pela absorção de água e de minerais do solo. O caule é o eixo da planta mais ou menos ramificado que sustenta as estruturas fotossintéticas. Contém um sistema condutor de água e de minerais para as folhas e retira destas os produtos finais da fotossíntese. As folhas constituem as estruturas fotossintéticas da planta, captam a luz solar e originam os órgãos reprodutores (flor).

O movimento de solutos e de água para as plantas é feito através da osmose e da difusão, segundo os gradientes de concentração.

Os vegetais apresentam um sistema duplo de transporte de substâncias através do qual se realiza o movimento de água e de solutos, orgânicos e inorgânicos, e que se denomina por translocação. Dispõem de sistemas internos condutivos para a água, o xilema (tecido de transporte de água e de sais minerais através do corpo das plantas) e de sistemas de assimilação no floema (tecido complexo de transporte de soluções orgânicas). Ver definição no anexo F.

No xilema, a seiva bruta é movimentada da raiz para todas as partes aéreas da planta, enquanto que no floema se desloca a seiva elaborada, em especial das folhas para outros órgãos das plantas (Figura 6-1).

A seiva bruta é constituída por água e sais minerais com pH ligeiramente ácido, entre 5,4 e 6,5, e a seiva elaborada é constituída por água, solutos orgânicos (geralmente sacarose entre 10 e 30 %, aminoácidos, hormonas, etc.) e solutos inorgânicos com pH ligeiramente básico, entre 7,5 e 8,5.



Figura 6-1: Estrutura genérica das plantas.

## 6.2.5.1 O conceito de contínuo solo-planta-água-atmosfera

No conceito de sistema contínuo solo-planta-água-atmosfera, o movimento da água através do solo para o interior das raízes, o movimento no interior das plantas e a sua saída para o exterior na forma de vapor, são processos fortemente interligados. Neste sistema contínuo desde o solo até a atmosfera, o movimento da água pode ser tratado como um sistema análogo ao do fluxo eléctrico num sistema condutor, podendo portanto ser descrito de uma forma análoga à lei de Ohm (Costa, 2001):

$$I = \frac{V}{R}$$
(6-1)

em que I é o fluxo eléctrico que ocorre devido à diferença de potencial, V, através de um condutor que apresenta a resistência R. Adaptando para o caso das plantas, a expressão anterior passa a ter a forma:

$$J_{H_2O} = \frac{\Delta \psi}{r}$$
(6-2)

O fluxo de água através da parte do sistema considerado é dado por  $J_{H2O}$ ,  $\Delta \Psi$  é a diferença de potencial hídrico entre os dois pontos do sistema em que se estuda o movimento, e r é a sua resistência (Costa, 2001).

O movimento da água neste sistema, e segundo este conceito, pode ser dividido em quatro etapas:

- Trajecto de água no solo até à rizoderme (epiderme sem cutícula);
- Trajecto radial radicular desde a rizoderme até ao xilema;
- Trajecto ascensional do xilema da raiz até às células das folhas;
- Trajecto do vapor de água da câmara estomática até à atmosfera.

Se considerarmos que o fluxo de água ocorre em estado estacionário através da planta, podemos representá-lo por (Costa, 2001):

$$J_{H_2O} = \frac{\psi_{solo} - \psi_{rizoderme}}{r_{solo} \rightarrow r_{rizoderme}} = \frac{\psi_{rizoderme} - \psi_{xilema}}{r_{raíz}} = \frac{\psi_{xilema} - \psi_{células do mesófilo}}{r_{xilema \rightarrow células do mesófilo}} = \frac{C_{folha} - C_{ar}}{r_{folha} - r_{ar}}$$
(6-3)

Este conceito de sistema solo-planta-água-atmosfera proporciona uma teoria unificadora na qual o movimento da água através do solo, das raízes, dos caules e das folhas e a sua evaporação para o ar pode ser estudado em termos de forças motrizes e resistências a operar em cada segmento. No entanto, há que ter em atenção que o conceito é uma simplificação extrema do que se passa nas plantas podendo ser alvo de algumas críticas (Costa, 2001):

- Assume condições constantes ao longo do trajecto da água que raramente existem nas plantas;
- Dentro da planta o fluxo é variável entre segmentos equivalentes do trajecto;
- Na fase líquida a água movimenta-se em função de gradientes de potencial hídrico e na fase gasosa em função de gradientes de pressão.

#### 6.2.5.2 Absorção de água e solutos minerais

A grande maioria da água e solutos são absorvidos pelas raízes, num transporte a curta distância, ou lateral, feito célula a célula. A água representa cerca de 85-95 % do peso das plantas pelo que as suas necessidades diárias desse líquido são imensas. Este facto resulta de 90 % da água captada apenas transitar pelo corpo da planta, sendo libertada para a atmosfera sob a forma de vapor. A eficiência na captação de água deve-se à presença de pêlos radiculares (zona pilosa da raiz), que aumentam grandemente a área das células da raiz em contacto com o solo.

A água tende a deslocar-se de zonas hipotónicas (menos concentradas) para zonas hipertónicas (mais concentradas), ou seja, de zonas com elevado potencial hídrico para zonas de baixo potencial hídrico, através de uma membrana selectiva, que actua como um filtro controlador do débito respiratório. Isto é, a planta pode retirar água do solo desde que o potencial hídrico das suas raízes mais finas seja mais negativo que o da solução do solo na rizosfera. A taxa de entrada de água na planta pode ser descrita pela seguinte expressão (Costa, 2001):

$$W_{abs} = A \frac{\psi_{solo} - \psi_{raiz}}{\sum r}$$
(6-4)

em que  $W_{abs}$  é a quantidade de água que as raízes absorvem por unidade de tempo e é proporcional à área de absorção (A) ou área cativa, ao gradiente de potencial hídrico entre a raiz e o solo ( $\Psi_{solo}$ - $\Psi_{raiz}$ ) e é inversamente proporcional ao somatório das resistências ao movimento da água no solo e à passagem do solo para o interior da raiz ( $\Sigma_r$ ) (Costa, 2001).

Nas células da raiz, a solução citoplasmática é hipertónica (menor potencial hídrico) o que leva a que haja uma deslocação passiva – osmose e difusão – da água, arrastando alguns solutos mais concentrados no solo, para as células do córtex radicular (camada mais externa da raiz de estrutura mais ou menos concêntrica) e daí até ao xilema. A solução do solo é geralmente muito diluída mas as raízes podem acumular iões em concentrações muito elevadas, pelo que este movimento contra o gradiente de concentração é feito por transporte activo. Este transporte origina que a solução interna seja ainda mais hipertónica, diminuindo o potencial hídrico e causando a entrada de água por osmose. O transporte activo continua pelo interior da planta até ao xilema, originando um gradiente osmótico que passa a água do córtex para o xilema.

A água absorvida é conduzida a todas as partes do corpo da planta através de um sistema especial – os feixes vasculares, tendo também a participação de outros tecidos existentes no corpo da planta entre as raízes e as folhas. A água move-se sempre segundo um gradiente decrescente de potencial hídrico (do menos negativo para o mais negativo) desde o solo húmido até à atmosfera. Este gradiente permite o movimento da condução vertical da água e também o movimento lateral dentro do corpo da planta.

O percurso seguido pelos solutos e água absorvidos pelas raízes até ao xilema ainda não é completamente conhecido, mas considera-se que existem duas vias possíveis: via simplasto, deslocação pelo interior dos citoplasmas das células do córtex, e via apoplasto, deslocação através da matriz das paredes celulares e espaços intercelulares. Através do sistema apoplástico o transporte da água e das respectivas substâncias dissolvidas dá-se no sentido ascendente. Embora as paredes celulares sejam porosas permitindo a passagem dos iões, possuem cargas negativas que adsorvem catiões por atracção electrostática. Considera-se que este deva ser o percurso preferencial, dada a rapidez registada no movimento de água no interior da raiz. No entanto, a nível da endoderme, a deslocação é obrigatoriamente via simplasto, devido aos espessamentos impermeáveis que este tecido apresenta, o que permite uma selecção dos materiais que atingem o xilema. A endoderme evita igualmente o retrocesso da água, do xilema para o córtex (Rocha, 2003).

Poderá haver uma terceira via, via transcelular, que representa a passagem de célula para célula e em que é necessário atravessar duas membranas plasmáticas por camada de células. A via transcelular é desprezável para solutos e difícil de distinguir da via simplasto em termos experimentais (Costa, 2001).

## 6.2.5.3 Translocação da seiva bruta

A deslocação da seiva bruta, das células da epiderme da raiz até ao cilindro central é feita na horizontal. O deslocamento da seiva bruta na vertical não está ainda muito bem compreendido, ainda mais que ocorre contra a gravidade, até alturas bastante elevadas (por vezes até 100 m de altura), sem a ajuda de bombas de qualquer tipo.

O transporte na vertical ou de longa distância ocorre ao longo do eixo longitudinal das plantas vasculares, num sistema específico de tecidos que constituem os feixes vasculares. Esta condução de água pode ocorrer quer num feixe vascular completo, consistindo de xilema e de floema, quer num incompleto, em que um destes tecidos falta ou não está completamente desenvolvido. Quando a direcção do movimento é essencialmente para baixo, no floema, e os solutos transportados são na sua maioria fotoassimilados, então o fluxo é de assimilação. Quando o movimento é essencialmente ascensional, no xilema, e os solutos são na sua maioria sais inorgânicos, então o fluxo é transpiracional (Costa, 2001).

Existem duas teorias que pretendem explicar os movimentos na vertical ou a longa distância:

- a) Teoria da pressão radicular: deve-se ao transporte activo de iões para o interior da raiz, o que causa uma diminuição do potencial hídrico e a entrada de água, originando uma certa pressão (por vezes até 3 atm), nas células do xilema e que faz subir o nível da seiva bruta nas plantas.
- b) Teoria da tensão-coesão-adesão: alguns autores concluíram que existe uma relação directa entre a transpiração e a ascensão da água no xilema, sendo a primeira o motor essencial à ascensão da seiva bruta.

A energia solar é a responsável pela transpiração, que ocorre a nível das células do mesófilo, sendo o vapor de água libertado pelos estomas, devido às paredes húmidas das células do mesófilo. Este fenómeno causa uma deficiência de água nas folhas, o que diminui o seu potencial hídrico pois a concentração de solutos aumenta – **tensão**. Como as células do mesófilo estão hipertónicas em relação ao xilema, a água desloca-se para a folha.

As moléculas de água são polares, pelo que estabelecem pontes de hidrogénio entre si, formando uma coluna mais ou menos contínua de água no interior dos vasos xilémicos – **coesão**. A polaridade da molécula de água explica igualmente a sua enorme capacidade de adesão a outras substâncias, nomeadamente às paredes dos vasos xilémicos.

Deste modo, a evaporação ao nível da folha causa o movimento de toda a coluna de água, tanto mais rapidamente quanto maior for a taxa de transpiração. Esta ascensão cria um défice de água no xilema da raiz, fazendo com que mais água passe do solo para o córtex e deste para o cilindro central, numa corrente de transpiração, que parece explicar a subida de água a alturas muito elevadas. O xilema, pelas suas características, traduz a eficácia deste processo, nomeadamente pela ausência de conteúdo celular que não cria obstáculos ao movimento da coluna de água, pela

parede lenhificada que impede o colapso e pelo diâmetro reduzido dos elementos dos vasos que facilita a adesão e a coesão.

#### 6.2.5.4 Controlo da transpiração

As folhas perdem diariamente o seu peso em água através da transpiração. Da água que penetra nas raízes, apenas uma pequena parte é retida nas células, a maior parte passa a vapor, enchendo os espaços intercelulares do mesófilo. A água evapora principalmente através dos estomas (orifício microscópico e cavidade existente nas partes verdes das plantas, especialmente nas folhas, através do qual se efectuam trocas gasosas) tanto das folhas como dos caules herbáceos, embora exista uma pequena percentagem de perdas através da cutícula (epiderme das plantas novas), cerca de 10 %, dado que esta não é completamente impermeável aos gases. Esta evaporação pode ser controlada, pois os estomas abrem e fecham, sob o controlo da planta, no entanto, o processo exacto ainda não é conhecido.

A abertura e fecho dos estomas podem ter origem em diversos factores: a concentração de iões (a variação de K⁺ está relacionado com pigmentos sensíveis à luz), a luz, concentração de  $CO_2$  e o pH (influenciam a acção de enzimas que actuam na fotossíntese).

Os produtos assimilados nas folhas são transportados para os centros de consumo (todas as partes em crescimento na planta, zonas de armazenamento e frutos) pelo floema. O sistema condutivo do floema alcança todas as partes da planta e é constituído por células vivas (o simplasto), geralmente localizadas no cilindro central.

Diversos factores ambientais afectam a taxa de transpiração mas a luz tem, sem dúvida, um papel fundamental, dado que estes factores ambientais só podem actuar com os estomas abertos. Os outros factores são a temperatura do ar, a humidade atmosférica, o vento e a água no solo.

## 6.2.5.5 Relação entre a transpiração e a absorção

Alguns compostos, em particular os seus iões, são absorvidos pelas plantas como se fossem nutrientes. No sistema solo-planta-água-atmosfera, e para a grande parte dos nutrientes, o transporte é feito através do fluxo de transpiração.

O movimento dos iões no solo pode ser descrito quantitativamente pela equação de convecção-dispersão com um termo adicional, M_i(z,t), que descreve a absorção dos iões pelas raízes (Novák & Vidovic, 2002):

$$\frac{\partial \mathbf{c}_{i}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left[ \mathbf{D}_{a} \left( \frac{\partial \mathbf{c}_{i}}{\partial z} \right) \right] - \frac{\partial (\mathbf{v} \cdot \mathbf{c}_{i})}{\partial z} - \mathbf{M}_{i}(z, t)$$
(6-5)

C_i: concentração média do ião i no soluto do solo, (M.M⁻¹)

 $\upsilon$ : velocidade do fluxo do soluto, (L.T⁻¹)

- Z: coordenada vertical, (L)
- t: tempo, (T)

D_a: coeficiente de dispersão hidrodinâmica, (L².T⁻¹)

 $M_i(z,t)$ : absorção do ião i pelas raízes,  $(T^{-1})$ .

A hipótese mais simples traduzida por esta expressão é que a absorção do ião i é proporcional à absorção de água. Desta forma admite-se que a água é um transportador de substâncias químicas do solo para as plantas. Este pressuposto pode ser expresso pela seguinte expressão (Novák & Vidovic, 2002):

$$\mathbf{M}_{i}(t) = \mathbf{n}_{i}(t) \cdot \mathbf{E}_{t}(t)$$
(6-6)

em que,  $n_i(t)$  é um coeficiente que caracteriza a interacção entre os iões específicos e as propriedades do sistema solo-planta-atmosfera e  $E_t(t)$  o fluxo de transpiração expresso em unidades (kg.m⁻².d⁻¹).

#### 6.2.5.6 Translocação da seiva elaborada

A seiva elaborada desloca-se através do floema para todos os órgãos da planta. A velocidade de deslocação da seiva elaborada é inferior à da seiva bruta. O sentido da deslocação da seiva elaborada varia consoante as necessidades metabólicas da planta, podendo ser de uma folha para uma raiz modificada para armazenar reservas ou da raiz para um fruto em desenvolvimento. O floema distribui os produtos assimilados nas folhas pelos diversos locais de consumo (todas as partes em crescimento da planta, zonas de armazenamento e frutos).

O transporte no floema depende do carregamento de açúcares e outras substâncias, que são acompanhadas pela entrada de água e do fluxo em direcção aos locais onde se dá a remoção. As folhas expandidas são o principal local de carregamento, e os destinos são as raízes, os ápices vegetativos e os órgãos

reprodutivos. Os nutrientes apresentam diferente mobilidade no floema, sendo o cálcio, o manganésio e o boro os nutrientes menos móveis e os macronutrientes, com excepção do cálcio, os mais móveis (Varennes, 2003).

A deslocação dos materiais no floema tem sido explicada pela teoria do fluxo de massa de Munch (Rocha, 2003). Esta teoria considera que os movimentos se devem à existência de um gradiente de concentração de sacarose que se estabelece entre um órgão produtor de açúcar e um local de consumo desse mesmo açúcar.

A glicose elaborada nos órgãos fotossintéticos, como as folhas, é convertida em sacarose e transferida do mesófilo para os elementos dos tubos crivosos das células vizinhas, cuja taxa respiratória é muito elevada. O aumento da concentração de açúcar no floema causa a entrada de água, vinda do xilema e das células vizinhas, o que provoca a deslocação da seiva elaborada através das placas crivosas para onde a pressão seja menor.

Nos locais de consumo a sacarose é retirada, possivelmente por transporte activo, principalmente dos órgãos de reserva. A saída dos açúcares torna as células floémicas hipotónicas e a água tem tendência a sair para as células vizinhas, principalmente para o xilema. A passagem de açúcares a todas as células será feita, posteriormente, através do transporte de citoplasma para citoplasma.

Esta teoria foi criticada por ter algumas lacunas, nomeadamente pelo facto de o papel dos tubos crivosos ser relativamente passivo, por não explicar as deslocações simultâneas de seiva elaborada no mesmo tubo floémico, em sentidos opostos, nem o facto de as placas crivosas constituírem um obstáculo importante e que seria necessário uma pressão floémica bem mais elevada do que a considerada para serem ultrapassadas.

Face a estas incompreensões na teoria de Munch, alguns autores defendem existir um transporte activo no interior dos tubos crivosos. No entanto, os estudos realizados não permitiram, até agora, descobrir um mecanismo que permita explicar melhor o processo de translocação no floema (Rocha, 2003).

No que se refere ao processo de transferência dos contaminantes (metais e radionuclídeos) do solo para a flora, ou a fito-extracção, pode ser descrito por duas fases: a absorção e a translocação.

Na absorção pelas raízes, a força motora para transportar os metais na direcção das raízes é o elevado gradiente de potencial electroquímico estabelecido

pela membrana plasmática que varia entre – 100 a – 200 mV (Luo et al., 2000). A maioria dos metais são transportados rapidamente do solo para as raízes, contudo, a translocação dos metais adsorvidos para as folhas constitui uma limitação à acumulação nestas devido a um vasto número de processos fisiológicos envolvidos na translocação, nomeadamente, o descarregamento dos contaminantes a partir da solução no xilema da raiz, o transporte a longas distâncias (ao longo dos vasos xilémicos) e a reabsorção dos contaminantes pelo xilema das células mesofílicas das folhas (parte central das folhas) (Luo et al., 2000).

O modelo geral para descrever o descarregamento dos metais no xilema envolve a absorção dos metais da solução do solo para o simplasto da raiz sendo posteriormente descarregados das células parenquimatosas (variante de células do xilema) para os vasos xilémicos. A translocação dos contaminantes é bastante mais lenta comparada com a absorção dos mesmos. A maioria dos contaminantes metálicos encontra-se na forma de catiões divalentes. Quando os contaminantes são transferidos para as células das raízes, estes podem ser precipitados ou formar quelatos com compostos orgânicos. Para que o transporte a longas distâncias ocorra é mesmo necessário a formação de quelatos entre os contaminantes e os agentes quelantes disponíveis no interior das células da raiz (Luo et al., 2000).

## 6.3 A fito-reabilitação

A fito-reabilitação é o conjunto de tecnologias que utilizam plantas para remover, conter ou transformar contaminantes numa forma ambientalmente inócua. A definição engloba todo o conjunto de processos biológicos, físicos e químicos que são influenciados pelas plantas e que têm uma acção regenerativa na contaminação. As plantas podem ser utilizadas para promover a mineralização e a imobilização dos compostos tóxicos na zona das raízes, podendo estes vir a acumular-se e a concentrar-se, posteriormente, no caule e nas folhas (Fiúza, 2003). Constitui assim uma abordagem multidisciplinar integrada para limpeza e/ou regeneração de solos contaminados, através de plantas acumuladoras que combinam a sua fisiologia com a química e a microbiologia do solo.

A fito-remediação constitui um termo genérico de várias potenciais tecnologias para o tratamento de solos que engloba as seguintes vertentes (Morel, 2002a):

- Fito-estabilização: cobertura de solos contaminados com plantas adaptadas.
   Ajuda a estabilização da superfície do solo, reduz o transporte para os cursos de água de poluentes adsorvidos na fase sólida fina e o seu movimento para o perfil do solo;
- ii) Fito-extracção: plantas hiperacumuladoras, ou seja, uma classe de plantas especializada com capacidade para acumular metais até altas concentrações (até cerca de 1 % por peso seco) nos seus tecidos;
- iii) Fito-volatilização: alguns elementos (selénio Se, e mercúrio Hg) podem ser transformados em componentes voláteis pelos microorganismos e plantas sendo libertados na atmosfera, sobre uma forma inócua;
- iv) Fito-degradação: os poluentes orgânicos podem ser degradados a um ritmo mais rápido em presença das plantas.

## 6.3.1 Fito-estabilização

A fito-estabilização tem por objectivo limitar a mobilidade e a disponibilidade biológica de metais no solo imobilizando-os por sorção, precipitação, complexação ou redução. As plantas ideais devem ser tolerantes a elevadas concentrações e estabilizar a matriz do solo, minimizando a erosão e a migração dos sedimentos.

Esta técnica implica muitas vezes o uso de aditivos (*amendments*) (Mench et al., 2002) ao solo combinados com a revegetação e/ou a manipulação de microorganismos. Na presença dos aditivos, os metais podem sofrer transformações ou reacções de sorção no solo o que diminui a sua mobilidade. Desta forma, os metais permanecem no local e o objectivo é diminuir a exposição do solo aos elementos não essenciais, sem induzir a deficiência em nutrientes. Trata-se, portanto, mais de uma tecnologia de contenção do que de reabilitação (Mench et al., 2002).

Alguns materiais orgânicos e inorgânicos têm sido usados como aditivos para reduzir a solubilidade e a biodisponibilidade dos elementos traço no solo em combinação com o objectivo de evitar alterações drásticas nas propriedades químicas e físicas do solo. Dos materiais testados destacam-se a cal, os zeólitos, compostos de fosfatos, óxidos de metais e outros minerais, etc. (Mench et al., 2002).

A fito-estabilização tem tido alguns casos de sucesso, especialmente na Europa, tendo sido um destes casos de sucesso implementado na Bélgica (Lommel-Maatheide) em 1990. Outros 5 locais foram alvo de experiências de fito-estabilização:

Louis Farge (França), Jales (Portugal), Overpelt (Bélgica), Pyhasalmi (Finlândia) e Reppel (Bélgica), ao abrigo do programa Europeu Fitoreab (The European Phytorehab Project) (Mench et al., 2002).

Dentro dos metais aos quais se poderá aplicar as técnicas de fito-estabilização destacam-se: o arsénio (As), na forma de arsenato, semelhante aos nutrientes de fosfato para as plantas; o cádmio (Cd), semelhante aos nutrientes com Ca e Zn; o crómio (Cr), o mercúrio (Hg), com potencial para a fito-remediação, mas ainda pouco estudado, o chumbo (Pb) e o zinco (Zn), para os quais existem alguns estudos de estabilização de resíduos mineiros com a aplicação de ervas (EPA, 2000c). O arsénio existe primariamente na forma oxidada (arsenato) na atmosfera e nas águas superficiais e na forma reduzida (arsenito) nos sedimentos.

## 6.3.2 Fito-extracção

A fito-extracção é a transferência dos contaminantes do solo para os tecidos vegetais que são periodicamente colhidos e tratados. Utilizam-se plantas denominadas hiperacumuladoras. Estas são definidas como plantas com mais de 0,1 % de Ni, Co, Cu, Cr ou mais de 1 % de Zn e Mn nas suas folhas, numa base seca. As plantas acumuladoras são normalmente endémicas de solos com elevadas concentrações em metais, tendo-se adaptado a esse ambiente externo. Depois de colhidas, a matéria vegetal é queimada constituindo as cinzas biominérios. A utilização de arbustos de grande porte e de árvores não tem sido encorajadora e apresenta alguns inconvenientes: tratamentos mais longos e problemas ambientais gerados pela queda das folhas. Algumas relvas podem acumular concentrações muito elevadas de metais nas suas folhas sem exibir efeitos tóxicos (Fiúza, 2003).

A absorção pelas plantas de elementos normalmente presentes em concentrações traço é conhecida desde 1850, quando foi descoberta a 1.ª planta acumuladora de zinco. O conhecimento comum da concentração anormal de outros elementos é mais recente: por exemplo, a acumulação do selénio (Se) é conhecida desde 1930, do níquel (Ni) desde 1940, do cobalto (Co) e do cobre (Cu) desde 1960, do arsénio (As) e do manganês (Mn) desde 1970. O termo hiperacumulador foi introduzido em 1976 e tem sido utilizado para descrever espécies que vão de encontro a um critério particular, no que respeita à concentração de elementos na planta. Até aos dias de hoje, foram descritas mais de 440 espécies hiperacumuladoras, sendo cerca de 75 % acumuladoras de Ni (Reeves, 2002). A primeira experiência de fito-

extracção implementada no campo foi conduzida em 1991-93, em Woburn, Inglaterra (Lombi et al., 2002).

A hiperacumulação dos metais é um fenómeno que envolve vários aspectos da fisiologia das plantas, nomeadamente, processos específicos que ainda não estão completamente compreendidos: a remoção dos metais ao nível das raízes, o transporte pelo xilema, a complexação dos metais e finalmente a compartimentação dos metais (Lombi & Zhao, 2002).

Alguns metais a que pode ser aplicada a fito-extracção: prata (Ag), cádmio (Cd), crómio (Cr), cobre (Cu), mercúrio (Hg), manganês (Mn), molibdénio (Mo), níquel (Ni), chumbo (Pb), zinco (Zn), os metalóides arsénio (As) e selénio (Se), e o nãometálico boro (B). Alguns RDN: estrôncio (⁹⁰Sr), césio (¹³⁷Cs), plutónio (²³⁹Pu), e urânio (²³⁸U, ²³⁴U). Relativamente aos contaminantes orgânicos, a sua acumulação e remoção de biomassa não tem sido estudada como estratégia de remediação (EPA, 2000c).

## 6.3.3 Rizofiltração

A rizofiltração consiste na utilização das plantas para absorver, concentrar e precipitar metais de efluentes. Algumas variantes utilizam plantas terrestres por possuírem sistemas radiculares com áreas superficiais bastante mais elevadas do que as plantas aquáticas. Outras variantes, mais desenvolvidas, utilizam canaviais (*red beds*) para o tratamento de águas residuais (Fiúza, 2003).

As raízes das plantas podem transformar o seu ambiente no solo através de determinados processos que incluem a absorção de água e de elementos e a libertação de compostos orgânicos, isto é "exsudatos" que estimulam a microflora e induzem alterações na estrutura do solo assim como na mobilidade dos iões inorgânicos, podendo mesmo originar a precipitação de alguns metais. Desta forma, as plantas podem alterar a transferência dos poluentes no solo contaminado. A libertação dos exsudatos modifica a química e física do solo e pode, subsequentemente aumentar ou diminuir a mobilidade dos metais. Os processos como a exsudação, a transpiração das raízes (absorção de O₂ e libertação de CO₂), a libertação de protões e de outros iões minerais, e a absorção da água e de solutos controlam a solubilidade dos metais na rizosfera (Morel, 2002b). Exsudato é um termo genérico para descrever um conjunto aleatório de compostos de vários pesos moleculares (inclui compostos de baixo e de elevado peso molecular).

Os contaminantes aos quais é potencialmente possível aplicar esta técnica incluem os metais: chumbo ( $Pb^{2+}$ ), cádmio ( $Cd^{2+}$ ), cobre ( $Cu^{2+}$ ), níquel ( $Ni^{2+}$ ), zinco ( $Zn^{2+}$ ), crómio ( $Cr^{6+}$ ), e os RDN: césio (Cs), estrôncio (Sr) e o urânio (U). Existem alguns estudos, em sistemas à escala-piloto, da absorção do urânio por girassóis (EPA, 2000c). Esta técnica não foi ainda avaliada para uso com nutrientes ou contaminantes orgânicos.

#### 6.3.4 Fito-volatilização

A fito-volatilização é a absorção e a transpiração de um contaminante pelas plantas, com a sua posterior libertação, ou de uma forma modificada, para a atmosfera através da absorção do contaminante pela planta, do metabolismo da planta e da transpiração da planta. Tem sido fundamentalmente aplicada em águas subterrâneas, mas também tem aplicação no solo, nos sedimentos e lamas. Os contaminantes são libertados numa forma menos tóxica e ao serem libertados podem ser sujeitos a processos naturais de biodegradação (como por exemplo a fotodegradação). No entanto, esta técnica pode levar à libertação de outros contaminantes (bastante mais tóxicos) para a atmosfera ou a acumular-se na vegetação passando a contaminação para os produtos subsequentes, como por exemplo, para os frutos (EPA, 2000c).

Esta técnica tem sido largamente estudada no caso de remoção do Se, elemento de elevada complexidade bioquímica, bem como os seus efeitos tóxicos, devido à sua estrutura química (semelhante à do enxofre) e à sua estabilidade ambiental nos vários estados de oxidação possíveis (-II, 0, +IV, +VI). Existem alguns estudos realizados em plantas da espécie *Astragalus* (insuficiente produção de biomassa), *Brassica juncea* (apenas conseguem ser acumuladoras secundárias de Se), Stanley pinnata (*perennial Brassicácea*, parece ser capaz de grandes produções de biomassa). No entanto, a fito-extracção de Se implica que este seja absorvido na forma de selenato, a forma mais solúvel, face à competitiva inibição pelo sulfato, um dos componentes maioritários da salinidade em alguns solos dos E.U.A. onde foram realizados estes estudos (Parker, 2002).

Existem muitos obstáculos à implementação da fito-remediação do Se, não só no que se refere ao desafio de se conseguir agronomicamente melhores características para os acumuladores de Se, mas também no que se prende com uma avaliação cuidada do risco ecológico associado com a mobilização de grandes quantidades de Se para as partes aéreas de plantas terrestres (Parker, 2002). Esta

técnica também poderá ser aplicada a compostos orgânicos (solventes cloretados e tetracloreto de carbono) e a contaminantes inorgânicos (além do Se, Hg e As) (EPA, 2000c).

#### 6.3.5 Fito-degradação

A fito-degradação é a destruição dos contaminantes absorvidos pelas plantas, através dos processos metabólicos no interior das plantas ou a destruição externamente às plantas através dos efeitos dos compostos (enzimas) produzidas pelas plantas. O mecanismo principal é a absorção pela planta e o metabolismo. Adicionalmente pode ocorrer degradação no exterior da planta devido à libertação das enzimas que vão provocar a transformação. A técnica é utilizada no tratamento de solos, sedimentos, lamas e águas subterrâneas (EPA, 2000c).

Para que a fito-degradação ocorra no interior da planta é necessário que os compostos sejam absorvidos. A absorção é dependente da hidrofobicidade, da solubilidade e da polaridade dos elementos presentes. Os compostos orgânicos moderadamente hidrofóbicos são mais rapidamente absorvidos e translocados dentro das plantas. Os compostos muito solúveis (baixa sorção) não serão sorvidos pelas raízes nem translocados dentro das plantas (EPA, 2000c).

Existem alguns estudos do metabolismo no interior das plantas para um diverso grupo de compostos orgânicos, nomeadamente para os herbicidas, solventes cloretados e TNT (trinitrotolueno). Algumas enzimas produzidas pelas plantas foram identificadas com potencial utilização na degradação de contaminantes, tais como herbicidas e solventes cloretados (EPA, 2000c).

Esta técnica tem aplicação essencialmente para contaminantes orgânicos: normalmente, nos compostos orgânicos com um coeficiente de partilha octanol-água (K_{ow}) entre 0,5 e 0,3 pode ocorrer a fito-degradação no interior da planta. Os nutrientes inorgânicos também podem ser removidos através da absorção das plantas e do metabolismo. A fito-degradação no exterior das plantas não depende do K_{ow} nem da absorção das plantas. Dentro dos compostos orgânicos a técnica pode ser aplicada aos solventes cloretados, aos herbicidas, aos insecticidas, às munições e aos fenóis. Nos compostos inorgânicos pode ter aplicação nos nutrientes, nomeadamente o nitrato que ao ser absorvido pelas plantas é transformado em proteínas e em gás nitrogénio (EPA, 2000c).

#### 6.3.6 A aplicabilidade da fito-remediação

Desta breve descrição da fito-remediação, podemos concluir que todos os organismos vivos têm mecanismos de regulação da assimilação dos metais. Os mecanismos metabólicos e de absorção das plantas são selectivos podendo escolher, dentro de uma certa gama, os metais absorvidos. Por outro lado, as plantas desenvolvem adaptações genéticas para manipular níveis potencialmente tóxicos de metais e de outros contaminantes que ocorrem no seu ambiente.

Em algumas espécies (*Thlaspi caerulescens*) os genes regulam a quantidade de metais removidos do solo para as plantas bem como a sua deposição no interior da planta. Estes genes controlam processos que podem aumentar a solubilidade dos metais na envolvente das raízes, bem como o transporte de proteínas que mobilizam os metais para o interior das raízes. Das raízes, os metais entram no sistema vascular das plantas para posterior transporte até às outras partes e por fim serem depositados nas células das folhas.

Sabe-se que no caso particular de solos contaminados com urânio, a adição de ácido cítrico como aditivo (*amendment*) para aumentar o potencial da fito-estabilização ao solo aumenta grandemente quer a sua solubilidade quer a sua biodisponibilidade para a absorção pelas plantas e a translocação, através da sua ligação ao urânio insolúvel existente no solo.

Os mecanismos de prevenção da toxicidade das plantas encontram-se principalmente no sistema radicular. Este dispõe de uma enorme área superficial que absorve e acumula a água e os nutrientes essenciais ao crescimento existindo uma interacção activa entre as raízes e a rizosfera. Os produtos orgânicos e inorgânicos libertados pelas raízes podem afectar os microorganismos que vivem na sua envolvente, a agregação e a estabilidade das partículas do solo na envolvente da raiz e ainda a disponibilidade dos elementos (Fiúza, 2003).

Com efeito, os compostos expelidos podem aumentar (mobilizar) ou diminuir (imobilizar) directa ou indirectamente, a disponibilidades dos elementos na rizosfera podendo ter origem, essencialmente, em quatro causas distintas (Fiúza, 2003):

- i) alterações do pH do solo;
- ii) libertação de agentes complexantes;
- iii) alterações do potencial redox;
- iv) aumento da actividade microbiana.

O metal absorvido e translocado na planta, é removido e tratado sendo a biomassa posteriormente processada para recuperar o metal, ou para posterior concentração (através de tratamento térmico, microbiológico ou químico) para facilitar a sua deposição (Vandehove, 2002). Existem, no entanto, uma série de requisitos básicos que são necessários para que teoricamente ocorra a fito-reabilitação (Vandehove, 2002):

- é necessário que o metal alvo esteja na forma disponível para as raízes das plantas;
- que seja absorvido pelas raízes;
- que seja translocado das raízes para as outras partes da planta;
- que haja uma produção substancial de biomassa.

## 6.4 Absorção e translocação dos metais nas plantas

As plantas necessitam dos macronutrientes (O, N, P, K, S, Ca e Mg) e dos micronutrientes (Fe, Zn, Mn, Ni, Cu e Mo) para o seu ciclo de vida. Muitos dos micronutrientes essenciais apenas são absorvidos nas quantidades necessárias para o metabolismo das plantas (< 10 ppm). Em contraste, as plantas hiperacumuladoras de metais, podem absorver excepcionalmente elevadas quantidades de metais (milhares de ppm). As plantas hiperacumuladoras não só acumulam elevadas quantidades dos micronutrientes essenciais, mas também podem acumular elevadas quantidades de metais não essenciais, nomeadamente o Cd. O mecanismo de acumulação de Cd ainda não é bem conhecido, mas é possível que a absorção deste elemento pelas raízes ocorra através do mesmo sistema envolvido no transporte de outro micronutriente divalente essencial, possivelmente o Zn²⁺. O Cd é o elemento químico análogo para o Zn, e as plantas podem não diferenciar entre os dois iões.

Devido à sua carga, os iões metálicos não podem atravessar livremente as membranas celulares. Assim, o transporte de iões para as células tem de ser mediado por membranas com funções de transporte, denominadas de transportadores. Os transportadores possuem uma zona de ligação extracelular aos quais os iões aderem pouco antes do transporte ocorrer, e uma estrutura trans-membrana que faz a ligação entre o meio extracelular e o meio intracelular. O domínio da ligação é receptivo apenas a iões específicos sendo responsável pelo transporte específico. A estrutura trans-membrana facilita a transferência dos iões do meio extracelular através do meio hidrofóbico até às células.

Os transportadores são caracterizados por parâmetros cinéticos tais como a capacidade de transporte ( $V_{máx}$ ) e afinidade para o ião K_m. O parâmetro  $V_{máx}$  mede o débito máximo do transporte de iões através das membranas celulares e o parâmetro K_m mede a afinidade do transportador para um ião específico e representa a concentração do ião na solução externa a que corresponde um débito de transporte de iões são transportados para as células até atingir uma baixa concentração externa de iões (Barak & Spalding, 2000) (ver descrição deste processo no anexo G).

Da totalidade de iões associados com as raízes apenas uma parte é absorvida pelas células. Uma fracção significativa é adsorvida nas paredes das células das raízes que não pode ser translocada para as folhas e por isso não pode ser removida. A complexação dos metais e o seu aprisionamento em estruturas celulares (ex. vacúolo) vai impedir a sua translocação para as folhas. Algumas plantas, possuem mecanismos especializados para restringir a absorção dos metais mas estes mecanismos ainda não são conhecidos (Barak & Spalding, 2000).

O movimento dos metais desde a raiz até às folhas, a translocação, é inicialmente controlado por dois processos: a pressão das raízes e a transpiração das folhas. Após a translocação para as folhas, os metais podem ser reabsorvidos.

A absorção e acumulação dos metais nas plantas podem ser resumida em cinco etapas:

- 1. Uma parte do metal é sorvida à superfície das raízes;
- 2. O metal biodisponível move-se através da membrana celular;
- 3. Uma fracção do metal absorvido pelas raízes é imobilizada no vacúolo;
- A fracção de metal móvel intracelularmente atravessa a membrana celular até ao xilema;
- 5. O metal é translocado da raiz até aos tecidos aéreos (caule e folhas).

## 6.5 As contaminações radioactivas e a fito-remediação

Em alguns países da Europa, a exploração do urânio no passado foi muito pronunciada, nomeadamente na Alemanha, na França, na Espanha, na Bulgária, na Hungria, na Roménia e na República Checa. A maioria das explorações existentes em Espanha e em França foram encerradas, tendo sido o local objecto de reabilitação ou encontrando-se em fase de reabilitação. No entanto, nos países da Europa de Leste,

existem vários locais abandonados que colocam sérios riscos, no que se refere à preservação e protecção do ambiente, que foram negligenciados e agravados pelo facto de estes locais se situarem, muitas vezes, próximos de agregados populacionais (Vandehove, 2002).

A remediação deste tipo de locais, em presença de material muito fino e de reduzida estabilidade geomecânica, geralmente, tem por solução mais viável a estabilização *in-situ* através do encapsulamento e solidificação dos resíduos com a posterior cobertura da superfície com vegetação (fito-estabilização). A cobertura também vai ter um papel importante na redução da exalação de radão. Esta é, provavelmente, a única alternativa de remediação (mais de contenção do que de remediação) para áreas contaminadas com elementos radioactivos (Vandehove, 2002).

A fito-extracção por definição traduz a capacidade das plantas para remover os contaminantes do solo e da água e acumulá-los nos seus tecidos. As plantas "carregadas" com os metais podem ser removidas, resultando numa gradual exportação dos contaminantes do solo. A fito-extracção para um local contaminado por elementos radioactivos é apenas discutida numa base teórica. O potencial da aplicação desta técnica a solos contaminados com radionuclídeos é limitada e talvez apenas tenha aplicação para contaminações pontuais, o que se deve em grande parte aos baixos factores de transferência para a maioria dos RDN (com excepção do Sr) em que menos de 1 % da contaminação do solo é potencialmente extraída anualmente (Vandehove, 2002).

Contrariamente ao que se passa na investigação da fito-remediação para metais pesados, a abordagem aplicada a radionuclídeos é relativamente nova. Mais ainda, a maioria das experiências efectuadas na abordagem dos RDN foram realizadas em sistemas de cultura sem solo, isto é, em sistemas hidropónicos (Vasudev et al., 1996), (Ensley et al., 1997). O termo hidroponia aplica-se, de forma restrita, a culturas cujas raízes se desenvolvem directamente numa solução nutriente, em ausência de qualquer tipo de substrato. Numa interpretação menos restritiva, a hidroponia é também quando se empregam substratos inertes, cuja constituição não fornece qualquer nutrição à planta, tendo apenas função de suporte e de armazenar alguma quantidade de solução nutritiva. Num sentido mais amplo denomina-se por hidroponia cultivar sem solo, em que os substratos não são inertes, tendo alguma actividade química e biológica que altera a solução.

Neste contexto, é necessário ter em atenção a interpretação dos valores referentes aos factores de concentração, **FC** (líquido-planta) (Bq/g de planta para Bq/ml líquido) obtidos nos sistemas hidropónicos, ou em sistemas de cultivo semelhantes, com os factores de transferência **FT** solo-planta (Bq/g de planta para Bq por g de solo) obtidos em experiências laboratoriais (cultivo com solo) ou em condições experimentais reais. Isto porque nos sistemas hidropónicos, os RDN já estão disponíveis, enquanto que no sistema com solo, os RDN poderão estar adsorvidos ou fixos nos constituintes do solo, o que significa que estarão apenas parcialmente disponíveis.

A maioria das experiências efectuadas para determinar os FT solo-planta para elementos radioactivos, foram realizadas para os RDN, em particular para o Cs e para o Sr, que resultaram do acidente nuclear que até hoje libertou a maior quantidade de radioactividade, o acidente no reactor de Chernobyl, na Ucrânia, em 1986.

Em algumas experiências efectuadas em sistemas hidropónicos com girassóis, obtiveram-se elevados valores de remoção para o Cs e Sr resultando numa extracção de cerca de 95 % da concentração destes RDN, após 24 h do crescimento das plantas (Vasudev et al., 1996). A interpretação errada destes resultados e a sua extrapolação para a descontaminação de solos levou à conclusão de que a fito-remediação dos solos contaminados de Chernobyl representava uma opção económica, muito fácil de atingir, devido aos elevados FT obtidos no sistema hidropónico. Contudo, com base nos factores de transferência das raízes dos girassóis (valor mais alto - 2,8 g/g) e com uma pressuposta produção de 5 t/ha, o que já é uma elevada biomassa para as raízes dos girassóis, apenas é possível extrair anualmente cerca de 0,36 % destes RDN (Vandehove, 2002).

## 6.6 O caso particular do urânio no solo

A complexa especiação do urânio no solo, dependente do pH, torna a sua absorção pelas plantas muito difícil. O urânio é um metal termodinamicamente instável no solo relativamente a formas mais oxidadas. As formas U(IV) e U(VI) podem reagir formando óxidos quando entram em contacto com a atmosfera. O produto de oxidação primário origina óxidos na forma UO_{2+x}.

O urânio existente no solo, cerca de 80 – 90 %, encontra-se no estado de oxidação VI, na forma do catião uranilo  $UO_2^{2+}$  (Vandehove, 2002), (Allen et al., 1994),

(Ebbs, 1997), sendo a espécie dominante, em condições ácidas. Ebbs (1987) demonstrou que o  $UO_2^{2^+}$  na forma livre é a espécie mais facilmente removida e translocada pelas plantas. Esta forma do urânio só se encontra em ambientes ácidos com pH  $\leq$  5,5. O catião uranilo também pode estabelecer ligações com a fracção sólida do solo e com a matéria orgânica, reduzindo a extensão da absorção pelas plantas (Sheppard et al., 1989, 1984). As plantas podem modificar o pH da rizosfera através da exsudação¹ de H⁺ e de OH⁻, ou em menor extensão através de compostos orgânicos, para manter o balanço de cargas durante a absorção dos catiões e dos aniões dos nutrientes. Estas alterações na rizosfera vão afectar a biodisponibilidade do urânio devido à solubilização e à complexação do catião uranilo, e por sua vez, a disponibilidade e a absorção do urânio. Sabe-se, no entanto, que as plantas têm uma limitada absorção de urânio e não são geralmente afectadas por elevadas concentrações deste RDN no solo (Vandehove, 2002).

Em condições quase neutras, formam-se carbonatos complexos (Vandehove, 2002). Geralmente, a quantidade de  $UO_2^{2+}$  presente na forma solúvel e trocável é desprezável, devido ao elevado coeficiente de distribuição sólido-líquido do urânio (K_d = 620 mL/g) definido como o quociente entre a concentração de RDN na fracção sólida do solo e a concentração do RDN na solução do solo (Bq.g⁻¹/Bq.mL⁻¹) (Baes, 1982).

Apesar da exaustiva investigação que tem sido feita acerca solubilidade do U no solo, existe, comparativamente, muito pouca informação relativamente à remoção e à translocação do U pelas plantas, em função das propriedades do solo. A maior parte dos estudos nesta área basearam-se essencialmente na análise do teor de U em plantas nativas que cresceram espontaneamente em ambientes contaminados por urânio (Whicker & Ibrahim, 1984), (Ibrahim & Whicker, 1988, 1992) ou, mais importante, na absorção do urânio por vegetais de importância alimentar para os animais e humanos (Frissel & Brejeijck, 1989), (Sheppard et al., 1985, 1989).

Em alguns estudos, realizados em pinheiros (Thiry & Schmidt, 2004), (no contexto da fito-estabilização), observou-se que o urânio era facilmente transportado para as folhas através dos fluxos de transpiração. Verificou-se ainda que os talos e as raízes acumulam cerca de 100 vezes mais urânio do que as partes superiores e a quantidade de urânio associada com a sua mobilização para a produção de nova biomassa é extremamente baixa.

¹ Segregar em forma de gotas ou de suor (definição de exsudação).

## 6.7 Factores de transferência solo-planta

O fluxo de um elemento do solo para as plantas, ou seja, a remoção desse elemento, vai ser quantificado pelo factor de transferência solo-planta (FT). Este parâmetro descreve a transferência dos RDN do solo para a planta, no caso em que a absorção pelas raízes das plantas é o único processo que afecta a transferência, não havendo a intercepção da actividade depositada ou a translocação da actividade interceptada para outras partes da planta. O FT de um dado elemento pode ser definido pelo quociente entre a concentração na planta ( $C_P$ ) e a concentração no solo ( $C_S$ ) em Bq/kg (peso seco):

$$FT = \frac{C_{P} (Bq \cdot kg^{-1})}{C_{S} (Bq \cdot kg^{-1})}$$
(6-7)

A definição de FT pressupõe que a concentração de um dado RDN (nomeadamente: alguns elementos traço, U, Cs e Sr) nas plantas seja proporcional à sua concentração no solo na zona das raízes, sendo a constante de proporcionalidade o próprio factor de transferência FT. Contudo, a grande variabilidade dos factores de transferência documentados na bibliografia evidenciam que a concentração do RDN no solo não é único factor que influencia a absorção pelas plantas.

O factor de transferência também pode ser definido com base na contaminação superficial e denomina-se por factor de transferência agregado (FT_{ag}) e é definido por (Vandehove, 2002):

$$FT_{ag} = \frac{C_{P} \left(Bq \cdot kg^{-1}\right)}{C_{S} \left(Bq \cdot m^{-2}\right)}$$
(6-8)

A remoção de um contaminante do solo, em termos de biomassa  $C_R$  (Bq/ha), pode ser expressa pelo produto entre a produção da biomassa, Y (kg/ha) e a concentração na planta,  $C_P$  (Bq/kg), (Vandehove, 2002):

$$\mathbf{C}_{\mathsf{R}} = \mathbf{Y} \cdot \mathbf{C}_{\mathsf{P}} \tag{6-9}$$

A partir da expressão (6-8) e da expressão (6-9) é possível calcular a redução anual na actividade do solo:

$$R_{an}(\%) = \frac{FT \cdot Y}{W_{s}} \cdot 100$$
(6-10)

Página 381

em que W_S representa o peso da camada de solo contaminada (kg/ha).

A fito-extracção é um processo temporalmente dependente e geralmente são necessários muitos anos para a remoção dos contaminantes. A tendência a longo prazo da variação da concentração dos RDN no solo pode ser estimada de acordo com a seguinte expressão (Vandehove, 2002):

$$\mathbf{C}_{\mathbf{S},\mathbf{t}} = \mathbf{C}_{\mathbf{S}_{t=0}} \cdot \mathbf{e}^{\left[\left(\frac{\mathbf{FT}\cdot\mathbf{Y}}{\mathbf{W}_{\mathbf{S}}} + \frac{\mathbf{0},\mathbf{69}}{\mathbf{t}_{1/2}}\right)^{\mathbf{t}}\right]}$$
(6-11)

O segundo termo na exponencial da expressão anterior quantifica o decaimento radioactivo do radionuclídeo considerado. O período de semi-vida ( $t_{1/2}$ ) do ²³⁸U é cerca de 4,5 x 10⁹ anos, logo esta componente não vai afectar significativamente o potencial da fito-extracção (0,69 / 4,5 x 10⁹ = 0,15 x 10⁻⁹).

Para o ¹³⁷Cs e para o ⁹⁰Sr, como o período de semi-vida é de 30 anos, o potencial da fito-extracção vai ser afectado (0,69 / 30 = 0,0233) em 2,33 % de perda anual da actividade apenas devido ao decaimento radioactivo. Seguindo o mesmo raciocínio para o rádio (²²⁶Ra) e para o chumbo (²¹⁰Pb e ²¹⁴Pb) obtemos respectivamente: 0,043 %; 3,09 %; e 1,46 %. Na expressão (6-11) pressupõe-se que o parâmetro da biodisponibilidade do contaminante (FT) seja constante.

Uma outra abordagem para a determinação do FT consiste no seu cálculo consoante o fenótipo da planta e as suas características de transporte (Baes et al., 1984). Nesta perspectiva, foram definidos 7 grupos de plantas para os quais foram estimados os respectivos FT: i) vegetais com folhas; ii) produtos expostos (feijões, tomates, maçãs, etc.); iii) produtos protegidos (batatas, amendoins, citrinos, etc.); iv) grãos; v) pasto; vi) feno; vii) silagem (milho e sorgo).

A silagem é a forragem (erva ou palha) conservada por meio de um processo de fermentação anaeróbica. É um alimento volumoso que pode substituir o pasto na época seca sendo guardado em silos. Ao processo de cortar a forragem, colocá-la no silo, compactá-la e protegê-la com a vedação do silo para que haja a fermentação, chama-se ensilagem. O sorgo é uma planta anual com caule de dois ou três metros de altura. Os grãos são avermelhados, esbranquiçados ou amarelos e servem para fazer pão e alimentos para as aves e as plantas inteiras são usadas para pasto.

As partes comestíveis dos vegetais com folhas estão relacionadas com o crescimento vegetativo (folhas e caule). As partes comestíveis dos produtos expostos estão relacionadas com funções reprodutivas (frutos e sementes). Os produtos

protegidos são assim classificados porque o seu crescimento ocorre no subsolo ou quando ocorre acima do solo, estão revestidos por uma cobertura protectora (casca). As partes comestíveis, protegidas pela cobertura, estão relacionadas com órgãos reprodutivos ou de armazenamento.

Para o cálculo dos factores de transferência, consoante a parte da planta envolvida, é necessário conhecer os parâmetros que descrevem o processo de absorção solo-planta para o crescimento vegetativo (B_v - bioacumulação vegetativa: folhas, caule, etc.) e para o crescimento não-vegetativo (B_r - bioacumualção reprodutiva: frutos, sementes, tubérculos, etc.), quantificados pelo quociente entre a concentração do RDN na respectiva parte da planta e a concentração no solo (Baes et al., 1984).

$$\mathsf{B}_{\mathsf{V}} = \frac{\mathsf{C}_{\mathsf{V}}}{\mathsf{C}_{\mathsf{S}}} \tag{6-12}$$

$$B_{r} = \frac{C_{r}}{C_{s}}$$
(6-13)

- B_v: coeficiente de transferência para as partes vegetativas
- B_r: coeficiente de transferência para as partes não vegetativas
- C_v: concentração nas partes vegetativas, peso seco
- Cr: concentração nas partes não vegetativas (reprodutoras), peso seco
- C_s: concentração na zona das raízes do solo, peso seco.

Numa definição mais completa, o parâmetro B_r representa o quociente da concentração da actividade nas partes da planta (peso seco), habitualmente associadas com funções de reprodução ou de armazenamento, com a concentração da actividade no solo (peso seco), na zona das raízes, na altura em que são colhidas. O parâmetro B_v tem a mesma definição, adaptando o primeiro termo para a concentração da actividade nas partes da planta (peso seco), habitualmente associadas com funções vegetativas.

### 6.7.1 Factores que afectam a transferência solo-planta

O factor de transferência depende do RDN, do tipo de vegetação, do tipo de solo, das características do solo, das condições do clima e do tipo de contaminação.

Desta forma, a adopção de valores de FT da bibliografia devem ser usados com alguma reserva nas avaliações radiológicas.

Uma vez que a maioria dos FT foram estudados no contexto de cálculo de dose por ingestão, os FT mencionados na bibliografia referem-se a tipo de produtos usados vulgarmente na alimentação dos humanos e/ou dos animais. Para a análise dos factores de transferência, os produtos mencionados foram classificados nos seguintes grupos (Vandehove, 2002): cereais, tubérculos, vegetais verdes com folhas, leguminosas, raízes dos vegetais, legumes, cebolas e ervas. A forma como os FT variam entre estes grupos depende do RDN estudado.

A profundidade das raízes, a remoção de água e os exsudatos são algumas das características das plantas que afectam a absorção.

O tipo de solo, frequentemente classificado em areia, limo, argila e orgânico, e as suas características físicas e químicas podem afectar a transferência dos RDN para as plantas directa ou indirectamente. Não existe praticamente nenhuma abordagem empírica de modelagem que permita prever a concentração na vegetação com base nas propriedades do solo (Vandehove, 2002). Uma excepção é o modelo descrito por Absalom et al. (1999) que estima a concentração de Cs em algumas plantas (ervas, cereais e alguns vegetais), em função do pH, da matéria orgânica, % de argila e de siltos e a quantidade de Ca e K na fase trocável. Isto porque a similaridade do Cs com estes nutrientes das plantas, Ca e K, permite a sua entrada facilmente na cadeia alimentar.

Diferenças regionais de clima podem afectar o período de crescimento e a produção de biomassa. A precipitação e a temperatura são os factores que têm mais influência na agricultura.

O tipo de contaminação vai afectar a transferência dos contaminantes para as plantas. A forma química de um RDN vai determinar a sua disponibilidade.

Não existem modelos empíricos para estimar a transferência dos RDN do solo para as plantas. Consequentemente, os factores de transferência têm de ser estimados com base em dados experimentais laboratoriais e de campo (Vandehove, 2002). Até à data, a maior compilação de factores de transferência foi processada pela *International Union of Radioecology*, (IUR, 1992).

## 6.7.2 A estimativa dos factores de transferência

O facto do coeficiente de transferência variar consoante a parte da planta envolvida levou à definição de dois tipos de FT. A diferenciação teve por base uma avaliação das referências bibliográficas existentes para a absorção pelas raízes e para a distribuição dos elementos nas plantas. Tais referências descrevem a observação de uma distribuição não uniforme dos elementos absorvidos, consoante o tipo de planta. Normalmente, a ordem de concentração na flora de elementos não nutricionais é a seguinte: raízes > folhas  $\geq$  caule > tubérculo  $\geq$  frutos  $\geq$  sementes. A variação na distribuição relativa dos elementos entre as partes das plantas ocorre com a espécie, com a variedade, com as condições de crescimento, mas de forma geral, para a maioria dos elementos,  $C_v \geq C_r$ .

As estimativas de  $B_v$  e de  $B_r$  descritas por Baes et al. (1984) resultaram da combinação de várias fontes de informação: análise de várias referências da literatura, correlação com outros parâmetros, comparação entre os valores observados e os previstos para a concentração do elemento em causa.

A análise das referências exigiu uma avaliação subjectiva das técnicas experimentais, da fiabilidade dos dados publicados e uma adequação dos mesmos dados aos parâmetros (Baes et al., 1984). Nos parágrafos seguintes descreve-se alguns dos obstáculos associados com a abordagem de combinação de várias fontes de informação para estimar B_v e B_r.

Ocasionalmente, os dados disponíveis não permitiram um cálculo directo de  $B_v$ ou de  $B_r$  segundo as expressões (6-12) e (6-13), por falta de informação tal como a densidade do solo, a concentração de fundo, a produção de biomassa, etc. Nestes casos, os dados necessários foram estimados para o cálculo indirecto de  $B_v$  e  $B_r$ . A aceitação ou rejeição deste tipo de referências para a estimativa do FT foi feita em função da quantidade e da qualidade de outras referências disponíveis e na comparação das estimativas indirectas com estimativas directas de fontes fiáveis.

Em muitas referências, os dados publicados apresentam-se na forma gráfica, o que aumenta a probabilidade de erro na estimativa dos parâmetros resultante da interpretação visual das figuras.

Apesar das estimativas dos parâmetros de absorção pelas plantas terem sido baseadas no pressuposto estado de equilíbrio, verificou-se experimentalmente através de medições repetidas em plantas, que o factor de concentração para os RDN é temporalmente variável (Baes et al., 1984). Na maioria das referências, a concentração no solo refere-se ao início da experiência e a concentração nas plantas é habitualmente medida algumas semanas ou meses mais tarde, quando são colhidas.

No caso das referências consideradas adequadas, a análise dos valores disponíveis foi feita da seguinte forma: todos os valores foram agrupados segundo as partes de crescimento vegetativo (folhas, caule e palha) ou de crescimento não vegetativo (reprodutor e de armazenamento, tais como frutos, sementes e tubérculos). A concentração na planta, consoante o caso, foi usada para calcular B_v e B_r. Também, no caso de existirem valores disponíveis para os parâmetros C_v e C_r, para a mesma planta, foi calculado o quociente entre estes dois parâmetros.

Para cada referência foi calculada a média geométrica de todos os valores de  $B_v$ ,  $B_r$  ou do quociente  $C_r/C_v$ . Em algumas referências, apesar de ser possível estimar o quociente  $C_r/C_v$ , não foi possível calcular os parâmetros  $B_v$  e  $B_r$  porque os valores disponíveis de  $C_r$  e  $C_v$  resultaram de medições em sistemas hidropónicos, logo o parâmetro  $C_s$  não fazia sentido neste contexto.

Finalmente, a média geométrica dos valores de cada referência foi usada para construir a distribuição para  $B_v \in B_r$  ou para calcular o quociente  $C_r/C_v$ . A média geométrica desta distribuição foi considerada como sendo a melhor estimativa para estes parâmetros.

Para os elementos raros ou elementos com pouca informação disponível, os autores utilizaram linhas de tendência sistemáticas para obter as melhores estimativas no caso em que não foi possível utilizar outro método. Isto é, a relação estabelecida entre os factores de concentração para um elemento e factores de concentração para outros elementos do mesmo período ou adjacente, ou mesmo grupo, foram analisadas por linhas de tendência. Tais linhas de tendência foram extrapoladas para o elemento em causa com o pressuposto de que elementos quimicamente similares actuam, também, de forma similar no ambiente solo-planta (Baes et al., 1984). Em muitos casos foram usadas linhas de tendência sistemáticas do quociente Cr/Cv para estimar Br a partir de Bv, no caso de dados insuficientes para calcular este último parâmetro, mas fiáveis para o primeiro.

$$\frac{B_r}{B_v} = \frac{C_r / C_s}{C_r / C_s} = \frac{C_r}{C_v}$$
(6-14)

$$\mathsf{B}_{\mathsf{r}} = \mathsf{B}_{\mathsf{v}} \cdot \left[\frac{\mathsf{C}_{\mathsf{r}}}{\mathsf{C}_{\mathsf{v}}}\right] \tag{6-15}$$

Na figura seguinte estão representadas as linhas de tendência para os elementos do grupo I e II A dos elementos da tabela periódica, no qual se inclui o rádio.





Os pontos referem-se à média geométrica e as barras de erro referem-se ao desvio padrão determinado para as referências consideradas.

Da mesma forma é possível representar os elementos do grupo dos actinídeos e do grupo IV A nos quais se incluem, respectivamente o urânio (U) e o chumbo (Pb). A figura seguinte representa a linha de tendência para grupo dos actinídeos, do qual se destaca o urânio.



Figura 6-3: Linhas de tendência para os elementos do grupo dos actinídeos. Fonte: Baes et al. (1984).

Por último, a figura seguinte representa a linha de tendência para o grupo IV A no qual se destaca o chumbo.



Figura 6-4: Linhas de tendência para os elementos do grupo IV A. Fonte: Baes et al. (1984).

As diversas referências publicadas e aceites como adequadas, para os factores de concentração solo-planta, no caso do rádio, são muito variáveis. No entanto, segundo Baes et al. (1984), não foi possível rejeitar nenhuma das referências por insuficiência de critérios. A Tabela 6-1 apresenta alguns desses valores publicados em várias referências.

B _v	B _r	(C _r /C _v )
0,71	0,10	0,95
	⁺ 5,0 x 10 ⁻⁴	
* 0,045	⁺ 3,2 x 10 ⁻³	
* 0,060		1,8
*0,012		
* 0,020		
*0,0024	⁺ 8,2 x 10 ⁻⁴	

Tabela 6-1: Valores de B_v, B_r e C_r/C_v para o rádio (Baes et al., 1984).

Os valores apresentados na tabela são o resultado da média geométrica dos vários valores publicados em cada referência.

Em Baes et al. (1984) é referido o valor de 0,09 como factor de concentração para o rádio para a erva de pasto e um valor de 0,02 para os vegetais, frutos e grãos. O valor final do  $B_v$  para o rádio é igual a 0,017 tendo sido arredondado para 0,015 e resultou da média geométrica dos valores apresentados nas últimas 5 referências (*) da Tabela 6-1. No caso do  $B_r$  o valor resultante da média geométrica das três primeiras referências (+) é igual a 0,0011.

Do grupo de elementos IV A da tabela periódica, o Pb é o elemento mais bem documentado na bibliografia, no que diz respeito ao  $B_v e B_r$ . O valor apresentado (0,045) deriva da média geométrica dos valores indicados por nove referências (Baes et al., 1984). O quociente  $B_r/B_v$  é igual a 2, com base nos valores indicados por cinco referências, e origina um valor igual a 0,009 para  $B_r$ . A Tabela 6-2 mostra que a estimativa destes valores (valores previstos) para o  $B_v e$  o  $B_r$  encontram-se dentro do intervalo de valores medidos para a concentração do Pb nos vegetais (valores observados).

relativamente ao chumbo (Baes et al., 1984).				
	Elemento	Pb		

Tabela 6-2: Comparação dos valores observados e previstos para os parâmetros C_v e C_r,

Elemento	Pb	
Cs	10	
C _v (obs.)	0,13 a 9,0	
C _v (prev.)	0,45	
C _r (obs.)	0,015 a 1,0	
C _r (prev.)	0,090	

O valor de B_v para o urânio foi determinado a partir da média geométrica dos valores apresentados em algumas referências (Baes et al., 1984). O quociente entre B_r

e  $B_v$ , indicado na bibliografia é igual a 0,5 e teve na base da estimativa de  $B_r$  que é igual a 0,004. A comparação dos resultados previstos e estimados suportam estes valores apesar da concentração típica do urânio nas partes vegetativas não ser conhecida.

Tabela 6-3: Comparação dos valores observados e previstos para os parâmetros C_v e C_r, relativamente ao urânio (Baes et al., 1984).

Elemento	U	
Cs	1,0	
C _v (obs.)		
C _v (prev.)	8,5 x 10 ⁻³	
C _r (obs.)	3,8 x 10 ⁻⁴ a 0,020	
C _r (prev.)	4,0 x 10 ⁻³	

Na Tabela 6-4 estão representadas as melhores estimativas para os elementos que interessam a este estudo: o rádio, o urânio e o chumbo, e que estiveram na base da representação gráfica das linhas de tendência da Figura 6-2, Figura 6-3 e da Figura 6-4. Os elementos seleccionados tiveram por base a sua relevância na via de transferência considerada, ou seja, a absorção pelas plantas.

Tabela 6-4: Melhores estimativas dos parâmetros B	B _v e B _r para Ra, U e Pb (Baes et al., 198
---------------------------------------------------	-------------------------------------------------------------------

Elemento	B _v	B _r
Ra	0,015	0,0011
U	8,5 x 10 ⁻³	4,0 x 10 ⁻³
Pb	0,045	9,0 x 10 ⁻³

## 6.7.3 O coeficiente de distribuição, K_d

O coeficiente de distribuição  $K_d$  (quociente entre a concentração de um elemento no solo e a concentração desse elemento na água, no equilíbrio) é medido em termos de gramas de peso de solo e milímetros de volume de água. Os valores apresentados por Baes et al. (1984) para o urânio (450 mL/g) e para o chumbo (900 mL/g), resultaram de uma revisão da literatura para este parâmetro. No caso do rádio, o valor de  $K_d$  (450 mL/g) foi estimado através da correlação de  $K_d$  com o  $B_v$ . A determinação de  $K_d$  pode estar associada a elevadas variabilidades resultantes de vários factores:

 Métodos laboratoriais: diferentes técnicas podem estar na origem de diferentes valores de K_d para o mesmo elemento;
- A variação ou a imprecisão nas medições de K_d em consequência do parâmetro ser o resultado de um quociente entre duas concentrações;
- A variação de K_d com o tipo de solo: solos com diferente pH, teor de argila, teor de matéria orgânica, teor em ferro livre ou em óxidos de manganésio ou a distribuição do tamanho das partículas vai certamente originar valores diferentes de K_d;
- O factor tempo envolvido na sua determinação pode também induzir a variação no K_d. Algumas determinações de K_d são feitas ao longo de algumas horas até o equilíbrio ser atingido. Se o equilíbrio não ocorre ao fim deste período é introduzido algum erro na determinação.

Perante a elevada variabilidade do  $K_d$  torna-se necessário definir uma distribuição adequada deste parâmetro para os vários elementos. Baes et al. (1984) apresenta uma análise feita neste sentido aos vários valores de  $K_d$  publicados.

Uma vez que o K_d varia com o pH, foi definido um intervalo de variação do pH para solos agrícolas, entre 4,5 e 9. O critério adoptado foi rejeitar os valores de K_d aferidos em solos com pH fora do intervalo estipulado. Dos valores apresentados destacam-se o K_d (U) = 450 mL/g e K_d (Pb) = 400 mL/g e resultaram da média geométrica dos vários valores publicados na bibliografia referentes a estes elementos (Baes et al., 1984).

Para o rádio, bem como para outros elementos da tabela periódica, não existem referências para o valor de  $K_d$  nestas condições. Para estabelecer um valor por defeito para estes elementos foi necessário um método alternativo.

Em 1979, Van Dorp, Eleveld & Frisse, (Baes et al., 1984) propuseram um modelo para a estimativa do factor de concentração solo-planta. A sua abordagem foi calcular a solubilidade do nuclídeo na água do solo, a sua capacidade de transferência através das membranas das raízes e o seu movimento ascendente através do fluxo transpiratório. Na perspectiva desta abordagem, os valores medidos do coeficiente de distribuição (K_d) o coeficiente de selectividade das raízes (S) e o coeficiente de transpiração, iriam permitir a estimativa do factor de concentração solo-planta a partir da concentração do RDN no solo. Este modelo não foi aceite para base da estimativa de doses, mas a implícita dependência de B_v e K_d serviu de base para a estimativa do parâmetro K_d.

Baes et al. (1984) apresenta uma abordagem para as estimativas de  $K_d$  e de  $B_v$  abrangendo uma grande diversidade de solos e de plantas, o que significa que

diferentes tipos de solos, de plantas e de condições experimentais são generalizadas num só valor de  $K_d$  e de  $B_v$ . Desta forma, qualquer relação observada entre  $K_d$  e  $B_v$  pode ser usada para prever uma estimativa genérica de  $K_d$  a partir dos valores por defeito de  $B_v$ .

Na Figura 6-5 estão representados os valores de B_v e de K_d, atribuindo o eixo dos x ao B_v e o eixo do Y ao K_d, para os elementos da tabela periódica que foi possível determinar a média geométrica em função dos vários valores publicados na literatura, nomeadamente os valores de B_v(U) = 8,5 x 10⁻³ e B_v(Pb) = 0,045. Os elementos representados são: Mg, K, Ca, Mn, Fe, Co, Cu, Zn, Sr, Y, Mo, Tc, Ru, Cd, Cs, Ce, Pb, Po, Th, U, Np, Am, Cm. Os valores seleccionados para o K_d representam a média geométrica dos vários valores deste parâmetro para o mesmo elemento, determinados em solos com pH entre 4,5 e 9,0 para o urânio e para o chumbo: K_d(U) = 450 mL/g e K_d(Pb) = 400 mL/g.



Figura 6-5: Média geométrica dos valores de B_v e K_d publicados na literatura.

Da representação gráfica dos valores de  $B_v$  e de  $K_d$ , foi possível ajustar uma recta cuja expressão representa a correlação entre estes dois parâmetros.

$$Ln(K_d) = 2,38 - 0,89 Ln(B_v)$$
 (6-16)

o que é equivalente a:

$$K_{d} = 10,80 B_{v}^{-0.89}$$
 (6-17)

Esta foi a expressão usada para estimar os valores de K_d para os elementos aos quais não foi possível aplicar o método anterior (calcular a média geométrica dos vários valores publicados de K_d), nomeadamente para o rádio. Assim, aplicando a expressão de correlação ao rádio para  $B_v(Ra) = 0,015$ , obtém-se o valor de K_d(Ra) = 450 mL/g.

# 6.7.4 Factores de transferência solo-planta para o rádio, urânio e chumbo

Apesar de os RDN presentes no resíduo da mineração e no tratamento do minério de urânio não se incluírem o ¹³⁷Cs nem o ⁹⁰Sr, os valores do FT referentes a estes RDN serão mencionados nas tabelas seguintes apenas a título comparativo. Os factores de transferência (FT) descritos por Vandehove (2002), para os 4 elementos considerados, encontram-se representados na Tabela 6-5.

RDN	Intervalo de	Valores	Limite	Condições em que se	
	Variação	Recomendados	Superior	verifica o limite superior	
Cs	0,00025 - 7,5	0,0038 - 0,29	7,5	Leguminosas, solo orgânico	
Sr	0,0051 - 22	0,017 - 3,2	22	Vegetais verdes, solo arenoso	
U	0,000006 - 21,13	0,00075 - 0,02	21,13	Tubérculo, solo arenoso	
Ra	0,00029 - 0,21	0,003 - 0,12	0,21	Erva, solo arenoso	

Tabela 6-5: Factores de transferência para o Cs, Sr, U e Ra.

Fonte: Vandehove (2002).

A Tabela 6-6 mostra a % de remoção anual da contaminação para as diferentes produções de biomassa e diferentes valores do factor de transferência (FT).

% Redução anual por fito-extracção						
Produção (t/ha) 5 10 15 20						
FT (g/g)						
0,01	0,0033	0,0067	0,01	0,0133	0,02	
0,1	0,033	0,067	0,1	0,133	0,2	
1	0,33	0,67	1,00	1,33	2,00	
2	0,67	1,33	2,00	2,67	4,00	
5	1,67	3,33	5,00	6,67	10,00	
10	3,33	6,67	10,00	13,33	20,00	

Tabela 6-6: Redução anual da contaminação no solo por fito-extracção.

Fonte: Vandehove (2002).

A Tabela 6-7 representa a remoção anual considerando o decaimento radioactivo.

% Redução anual por fito-extracção								
Produção (t/ha) 5 10 15 20								
FT (g/g)								
0,01	2,3333	2,3367	2,34	2,3433	2,35			
0,1	2,363	2,397	2,43	2,463	2,53			
1	2,66	3	3,33	3,66	4,33			
2	3	3,66	4,33	5	6,33			
5	4	5,66	7,33	9	12,33			
10	5,66	9	12,33	15,66	22,33			

Tabela 6-7: Redução anual da contaminação no solo por fito-extracção considerando o decaimento radioactivo.

Fonte: Vandehove (2002).

## b) O rádio (Ra)

O rádio é o último membro dos metais terrosos alcalinos, um grupo de metais, cujos membros mais baixos (Ca e Mg) desempenham um papel muito importante no crescimento e nutrição das plantas. Como o rádio é altamente electropositivo, reage rapidamente com outros agentes na sua maioria insolúveis. Também co-precipita com o bário e o estrôncio para formar sulfatos insolúveis. Devido ao seu carácter básico não é facilmente complexado sendo os mais estáveis formados com o ácido EDTA (etilnodiaminotetracético) (Kopp et al., 2006).

Na tabela seguinte estão representadas as melhores estimativas dos factores de transferência para o rádio apresentadas por Sweeck et al. (1998) e os valores recomendados de acordo com a compilação da *International Union of Radiecology* (IUR, 1989) com 95 % do intervalo de confiança. As melhores estimativas foram obtidas para combinações de solos e plantas específicas com o cálculo da média geométrica e do desvio padrão.

Apesar do Sr e do Ra serem radionuclídeos bivalentes, o que poderia levar a esperar um comportamento semelhante, o FT do Ra é cerca de 10 a 100 vezes inferior ao FT do Sr.

Grupo	Tipo de solo	FT (Sweeck et al., 1998)	FT (IUR, 1989)
		Melhor estimativa	Valor recomendado
	Areia	0,01	0,00104
Cereais	Limo	0,005	
(milho)	Argila	0,003	
	Orgânico		
	Areia	0,01	0,00097
Tubérculo	Limo	0,01	
(batatas)	Argila	0,01	0,00358
	Orgânico	0,01	
	Areia	0,005	0,00458
Leguminosa	Limo	0,005	
(feijão)	Argila	0,005	0,0210
	Orgânico	0,005	
	Areia	0,05	0,00676
Raízes de vegetais	Limo	0,05	
(cenoura)	Argila	0,05	0,0379
	Orgânico	0,05	
	Areia	0,12	0,12
Erva	Limo	0,062	0,0617
	Argila	0,033	0,0330
	Orgânico		

Tabela 6-8: Melhor estimativa do FT para o rádio (Bq.kg⁻¹ planta por Bq.kg⁻¹ solo).

Fonte: Vandehove (2002).

# a) O urânio (U)

Os factores de transferência (FT) solo-planta para o U variam com o compartimento e a espécie da planta. As raízes incorporam muito mais urânio do que o caule, as folhas ou as sementes (Netten & Morley, 1982), (Apps et al., 1988), (Lakshmanan e Venkateswarlu, 1988), (Ebbs et al., 1998). Os vegetais com folhas geralmente apresentam valores superiores de FT para o urânio, seguindo-se as raízes, frutos e grãos. Na Tabela 6-9 estão representadas as melhores estimativas dos factores de transferência para o rádio apresentadas por Sweeck et al. (1998) e os valores recomendados de acordo com a compilação da *International Union of Radioecology* (IUR, 1989) com 95 % do intervalo de confiança (Vandehove, 2002).

Grupo	Tipo de solo	FT (Sweeck et al., 1998)	FT (IUR, 1989)
		Melhor estimativa	Valor recomendado
Cereais	Areia	0,00075	
(milho)	Limo	0,00075	0,00075
	Argila	0,00075	
-	Orgânico	0,00075	
Tubérculo	Areia	0,011	0,01149
(batatas)	Limo	0,053	0,05339
	Argila	0,053	
	Orgânico		
Leguminosa	Areia	0,001	
(feijão)	Limo	0,001	
	Argila	0,001	
	Orgânico	0,001	
Raízes de vegetais	Areia	0,0078	0,00782
(cenoura)	Limo	0,02	0,0204
	Argila	0,02	
	Orgânico		
Erva	Areia	0,051	0,0515
	Limo	0,013	0,0126
	Argila	0,028	0,0283
	Orgânico		

Tabela 6-9: Melhor estimativa do FT para o urânio (Bq.kg⁻¹ planta por Bq.kg⁻¹ solo).

Fonte: Vandehove (2002).

Ibrahim & Whicker (1988) descrevem um estudo realizado na área de um complexo mineiro de urânio para determinar a acumulação deste RDN numa mistura de diferentes espécies. Neste estudo, os autores verificaram que as plantas que cresceram no resíduo expostos (baixo pH) apresentaram um FT próximo da unidade, enquanto que para as plantas que cresceram nas proximidades do resíduo, os valores do FT variaram desde < 0,1 a aproximadamente 0,4 dependendo da distância ao local de deposição do resíduo e da direcção do vento.

Algumas destas espécies são sensíveis ao pH e não crescem a valores de pH inferiores a 4. As plantas que têm sido estudadas neste contexto raramente apresentaram um valor superior a 0,1 para o FT, excepto no caso de plantas que cresceram em ambientes altamente contaminados, como o caso dos resíduos expostos representados na Tabela 6-10 (Vandehove, 2002).

Grupo	ET	Condiçãos experimentais
Userstação retural em logoio do evaloreção do uvênio		Condições experimentais
Vegetação natural em locais de exploração do uranio	(Bq.kg pianta)/	
(Whicker & Ibranim, 1984) (Ibranim & Whicker, 1992)	(Bq.kg solo)	
Artemisia	0,12	Valor de fundo
	0,90	Bacia de decantação
Mistura de ervas	0,07	Valor de fundo
	0,07	Bacia de decantação
	0,69	Resíduos expostos
Ervas (daninhas, qualquer planta	0,16	Valor de fundo
Herbácea de folha larga	0,08	Bacia de decantação
	1,1	Resíduos expostos
Ervas (Frissel & Brejeijck, 1989)	0,003-0,18	Solo limo-arenoso
Vegetais		
Vegetais com folhas		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
(Frissel & Brejeijck, 1989) (Thibault et al., 1990)		
(Sweeck et al., 1998)		
Alface	0.025	Limo. pH = 7
Espinafre	0.033	Limo. $pH = 7$
Nabo verde	0.0058	Sedimentos arenosos, pH 4.
	0,0000	matéria orgânica = $1.5$ %
Mostarda indiana	0.007	$\lim_{n \to \infty} nH = 77$
(indian mustard-brassica iuncea)	0,007	matéria orgânica = $4.2\%$
(indian mastara brassica janota) Cenouras	0.0057	Limo-arenoso $nH = 7$
Defree (Friend & Brainlick (1090)	0,0037	
Raizes (FIISSEI & DIEJEIJUK, 1909)		
(Lakshmanan & venkateswanu, 1900)	2.040	
Batata	0,019	Limo, pH = 7,3
Batata	0,002	Areia, $pH = 4,9$
Batata	0,009-0,0009	Areias, pH = 8,1
Beterraba açücareira	0,01-0,06	Areias ou limo-arenoso, pH 7
Beterraba vermelha	0.0024	Limo pH = [5,1-7,0]
Raízes de nabo	0.00099	Sedimentos arenosos, pH 4
	-,	matéria orgânica = 1,5 %
Frutos vegetais (Frissel & Breieijck, 1989)		,
Tomate	0.0005	Limo-arenoso, pH = 7
Pepino	0,0009	Limo-arenoso, $pH = 7$
Carajas (Frissel & Brejejick 1989) (Mortvedt 1994)	0,0000	
	0.0010	Ordimentes granges pH 4
гејјао	0,0018	Sedimentos arenosos, $p = 4$ , matéria orgânica = 1,5 %
Arroz	0,0005	Limo, pH = 7,3
Cevada	0.0021	Limo, pH = 7,3
Milho	0.00021	Limo, pH = 7,3
Milho	0.00021	Sedimentos, $pH = 4$
	-,	matéria orgânica = 1,5 %
Milho	0.006-0.01	Não especificado

Tabela 6-10: Valor do FT para o urânio específico para vegetação natural e produtos hortícolas.

Fonte: Vandehove (2002).

Alguns autores estudaram a influência da acidificação e dos agentes quelantes na solubilização do urânio (Ebbs et al., 1998), (Huang et al., 1998), uma vez que a acumulação do urânio pelas plantas é afectada pela sua especiação: a espécie mais rapidamente absorvida pelas plantas é na forma uranilo e essa forma existe a pH  $\leq$  5,5 (Ebbs et al., 1998). Alguns compostos (ácidos orgânicos) podem actuar como agentes quelantes aumentando a solubilidade do urânio. Existe na bibliografia referência a algumas experiências realizadas com diversos ácidos orgânicos: acético, cítrico, oxálico e máltico, para aumentar a solubilidade do urânio no solo (Vandehove, 2002).

A rizofiltração tem sido objecto de estudo na remoção de RDN de sistemas aquosos (ribeiros, águas subterrâneas e águas residuais). Esta vertente da fitoreabilitação já foi descrita anteriormente como sendo o uso das plantas para acumular compostos, de soluções aquosas, através da adsorção nas raízes (ou a assimilação através das raízes) e eventual translocação para a biomassa.

A remoção de RDN de um sistema aquoso pode ser quantificado através da produção de biomassa seca da planta e do factor de concentração FC (Bq.g⁻¹ planta)/ (Bq.ml⁻¹) água definido como o quociente entre a concentração de RDN na planta e a concentração de RDN na solução do solo. Uma vez que a absorção na água (residual) por volume é inferior à remoção no solo, o FT é mais elevado do que o FC e a relação entre os dois parâmetros pode ser descrita por:

$$FT = \frac{FC}{K_d}$$
(6-18)

FC: factor de concentração, (Bq.g⁻¹ planta por Bq.ml⁻¹ água)

K_d: coeficiente de distribuição sólido líquido, (ml.g⁻¹).

O coeficiente de distribuição (K_d) é o coeficiente de partilha do soluto entre a fase sólida e a fase líquida ou seja, o quociente entre a concentração do RDN na fase sólida e na solução do solo. Este parâmetro pode ser deduzido através do quociente da concentração solo/planta. De acordo com alguns autores (Yu et al., 1993) existe uma forte correlação entre o quociente da concentração no solo e a concentração na planta (FC) e o coeficiente de distribuição na zona contaminada, descrita pela seguinte expressão:

$$ln(K_d) = a + b \cdot ln(FC)$$
(6-19)

em que a e b são constantes. O valor do coeficiente a depende do tipo de solo:

- i) solo arenoso a = 2,1;
- ii) solo limoso a = 3,36;
- iii) solo argiloso a = 4,62

e o coeficiente **b**, é obtido a partir de dados experimentais, é igual a 0,56 segundo Yu et al. (1993).

O parâmetro representado por FC não é mais do que um factor de transferência, FT, e vem expresso, nesta expressão, em peso húmido do solo por peso seco da planta.

O K_d (média geométrica) para o urânio pode variar, entre diferentes grupos de solos, de 35 a 1600 ml/g (Thibault et al., 1990) e para o rádio, o valor médio de K_d por grupo de solo varia entre 490 e 36 000 ml/g (IAEA, 1994).

Em geral, o  $K_d$  para os RDN em estudo é superior à unidade, logo, o FC é superior ao FT para o mesmo factor, o que leva a concluir que a rizofiltração é mais eficiente do que a fito-extracção do solo.

Dependendo da espécie da planta e das condições ambientais, os FT para o urânio podem variar de 10⁻⁶ até 20 ml/g.

#### b) O chumbo (Pb)

Não há registo de plantas naturalmente predisponíveis para hiperacumular chumbo em concentrações significativas. Alguns estudos de culturas hidropónicas demonstraram que a acumulação de Pb aumenta dramaticamente à medida que os níveis de chumbo solúvel aumentam. Contudo, na maioria dos casos, o chumbo na solução do solo é inferior a 0,1 %.

Existem alguns estudos do uso de aditivos no solo (quelatos sintéticos) para aumentar a desorção do Pb no solo para a solução e posterior acumulação pelas plantas. Dos aditivos frequentemente testados, o EDTA revela ser o mais eficaz em aumentar a concentração de Pb no solo o que está directamente relacionado com o aumento do Pb no fluxo do xilema, a translocação das raízes para as folhas e a acumulação na planta. Os resultados sugerem que os quelatos podem eliminar os dois maiores factores limitativos da fito-extracção do Pb: baixa biodisponibilidade do Pb e a fraca translocação deste elemento (Luo et al., 2000).

# 6.8 O caso da Urgeiriça

Um programa de monitorização ambiental tem vindo a ser desenvolvido pelo Departamento de Protecção Radiológica e Segurança Nuclear (DPRSN) do Instituto Tecnológico e Nuclear (ITN), desde 1975, na região de Viseu (Urgeiriça) e Guarda. O programa abrange as minas da Urgeiriça, Freixiosa, e Pinhal do Souto (região de Viseu) e a mina da Bica (Guarda) (Carvalho et al., 2001). O programa desenvolvido na

zona de influência destas minas incidiu principalmente sobre a avaliação da contaminação em ²²⁶Ra dos produtos da cadeia alimentar em que foram colhidos e analisados vegetais de hortas existentes na vizinhança destas minas (Carvalho et al., 2001). Os resultados obtidos neste estudo permitiram concluir que os vegetais estão fortemente contaminados em ²²⁶Ra, devido à irrigação com água contaminada, à transferência do solo para a raiz e da deposição foliar de poeiras atmosféricas contendo este RDN.

O consumo de vegetais de horta da zona das minas, nomeadamente a couve, constituirá uma forte via de exposição, representando a via crítica para a ingestão de ²²⁶Ra na vizinhança das minas. Carvalho et al. (2001) refere que a exposição neste local deve-se, principalmente, às escombreiras e aos resíduos de tratamento químico de urânio, contrariamente ao que acontece em outros locais, em que se concluiu que a exposição na zona de antigas minas, está em geral, relacionada com o consumo de vegetais de hortas ou de água de poços e fontes.

Um dos locais inserido neste estudo, a zona do Barracão (Guarda), teve como alvo principal uma pequena horta com um poço cuja água era utilizada para rega, situada na vizinhança da antiga fábrica de preparação de sais de rádio, mais precisamente na área adjacente às ruínas da fábrica. Foram efectuadas análises em amostras de águas, solos e vegetais, para determinar a concentração em rádio, tendo-se verificado um aumento da actividade junto às ruínas da fábrica do Barracão, sendo significativo o decréscimo da actividade com o aumento da distância ao local. Quanto aos vegetais analisados, a contaminação era evidente na horta mais próxima, nomeadamente nas couves, notando-se uma diminuição do ²²⁶Ra com o aumento da distância às ruínas da fábrica (Carvalho et al., 2001).

Na zona mais contaminada, ou seja, a área das ruínas da fábrica, foram analisadas amostras de solos nesta zona a várias distâncias tendo sido determinada a actividade em ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb. Também foi determinada a actividade em ²²⁶Ra nos vegetais, principalmente nas couves que cresciam nesses solos. Os factores de concentração ou de transferência (relação entre a concentração do RDN na planta Bq.kg⁻¹ e a concentração do RDN no solo Bq.kg⁻¹) para a couve variaram entre 0,007 e 0,07 para o ²²⁶Ra e entre 0,001 e 0,02 para o ²¹⁰Pb (Carvalho et al., 2001).

No caso particular da escombreira da mina Urgeiriça, foram plantados eucaliptos e pinheiros para minimizar a dispersão dos resíduos radioactivos depositados, apresentando ainda, em algumas zonas, uma cobertura de giestas que

nasceram espontaneamente (Carvalho et al., 2001). Neste local, foram efectuadas análises em amostras de resíduos e plantas (raízes e folhas) nas diferentes zonas da escombreira da mina da Urgeiriça, para determinar a actividade em ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb por espectrometria gama, a concentração em catiões permutáveis (K, Ca, Mg), a percentagem de rádio trocável nos solos e a concentração total em K, Ca e Mg nas plantas. Também foram analisadas amostras de solos e de plantas das proximidades da escombreira (distantes de 1 km) que serviram de referência.

Os resultados obtidos referem-se aos factores de transferência do resíduo para a vegetação, nomeadamente, resíduo/raiz e resíduo/folhas, para as três espécies de vegetação analisadas: pinheiro, eucalipto e giesta, calculados com base no rádio total, numa primeira fase, e na fracção trocável ou disponível numa segunda fase.

A correlação obtida nos estudos do ITN, entre o logaritmo da concentração de ²²⁶Ra na planta e o logaritmo da concentração de ²²⁶Ra no solo é traduzida pela seguinte expressão para o caso dos pinheiros (Madruga et al., 2001):

$$C_p = a \cdot C_s^b$$
 ou  $\log C_p = \log a + b \cdot \log C_s$  (6-20)

Os parâmetros a e b foram estimados pelo ajuste dos dados à expressão anterior.

a = 0,074 
$$\pm$$
 0,025 e b = 0,675  $\pm$  0,098 (r = 0,77) para as raízes

$$a = 0,036 \pm 0,009$$
 e  $b = 0,365 \pm 0,088$  (r = 0,57) para as agulhas

Os FT do solo para os pinheiros (raízes e agulhas) foram estimados a partir do quociente  $C_p/C_s$ . Os resultados obtidos permitiram ajustar uma nova função para a estimativa da transferência do ²²⁶Ra (total) para os pinheiros (Madruga et al., 2001):

$$FT(raizes) = 0,074 \cdot C_s^{-0.32}$$
 (6-21)

$$FT(agulhas) = 0,036 \cdot C_s^{-0,64}$$
 (6-22)

Os valores de FT calculados com estas expressões encontram-se na Figura 6-6.



Figura 6-6: FT_{resíduo/pinheiro} vs concentração de rádio no resíduo.

A mesma abordagem foi adoptada para a restante vegetação em estudo: eucaliptos (folhas) e giestas (raízes e partes aéreas). A expressão obtida para os eucaliptos foi a seguinte (Madruga et al., 2001):

$$FT(folhas) = 0.12 \cdot C_s^{-0.66}$$
 (6-23)

Os valores de FT estimados com esta expressão estão representados na Figura 6-7.



Figura 6-7: FT_{resíduo/eucalipto} vs concentração de rádio no resíduo.

De igual modo para os arbustos (giesta) (Madruga et al., 2001):

$$FT(raízes) = 0.12 \cdot C_s^{0.24}$$
 (6-24)

 $FT(partes a \acute{e} reas) = 0,06 \cdot C_s^{-0,56}$ 

(6-25)



Na Figura 6-8 estão representados os FT estimados com as expressões anteriores.

Figura 6-8: FT_{resíduo/giestas} vs concentração de rádio no resíduo.

A amostragem de material contaminado (resíduo) e de vegetação foi realizada em 8 zonas da escombreira da mina da Urgeiriça apresentando diferente concentração em rádio (D₁, D₂, D₃, D₅, D₇, D₈).

As figuras seguintes ilustram os valores médios dos FT obtidos para os pinheiros (raízes e agulhas), para os arbustos (raízes e partes aéreas) e para os eucaliptos (folhas) nos diferentes locais de amostragem.



Figura 6-9: FT médios do rádio total para os pinheiros (raízes e agulhas) vs o local de amostragem ( $D_1$  a  $D_8$  e local de referência).



Figura 6-10: FT médios do rádio total para as giestas (raízes e partes aéreas) vs local de amostragem ( $D_1$  a  $D_8$  e local de referência).



Figura 6-11: FT médios do rádio total para os eucaliptos (folhas) vs local de amostragem (D₁ a  $D_8$  e local de referência).

Os resultados apresentados tiveram por base a concentração total de ²²⁶ Ra no solo.

O mecanismo de absorção dos RDN pelas plantas depende da fracção de RDN disponível solubilizada na solução do solo ou da fracção trocável para esta solução em certas condições particulares.

Madruga et al. (2001) efectuou ainda estudos comparativos da extracção do rádio com soluções de acetato de amónia e de cloreto de cálcio nas amostras do resíduo e dos solos de referência. Os resultados obtidos são bastante similares para ambas as soluções, tendo-se extraído do resíduo cerca de  $16,0 \pm 8,3 \%$  (média) de rádio com acetato de amónia e cerca de  $12,9 \pm 8,9 \%$  (média) com a solução de cloreto de cálcio. As figuras seguintes representam o cálculo de FT com base na fracção trocável de ²²⁶Ra, segundo cada um dos locais estudados e por tipo de vegetação considerada: pinheiros, arbustos e eucaliptos.



Figura 6-12: FT médios do rádio trocável para os pinheiros (raízes e agulhas) vs local de amostragem ( $D_1$  a  $D_8$  e local de referência).



Figura 6-13: FT médios do rádio trocável para as giestas (raízes e partes aéreas) vs local de amostragem (D₁ a D₈ e local de referência).



Figura 6-14: FT médios do rádio trocável para os eucaliptos (folhas) vs local de amostragem  $(D_1 a D_8 e \text{ local de referência}).$ 

Os valores médios dos FT que serviram de base para a representação gráfica encontram-se na Tabela 6-11.

FT - Ra _{total}	<b>D</b> ₁	D ₂	$D_3$	D ₅	<b>D</b> ₇	D ₈	Ref. ^a
Pinheiro (agulhas)	0,01	0,025	0,015	0,015	0,035	0,035	0,01
Pinheiro (raízes)	0,04	0,03	0,04	0,03	0,06	0,07	0,065
Giesta (partes aéreas)	0	0,2	0,14	0	0,07	0	0,08
Giesta (raízes)	0	0,2	0,12	0	0,07	0	0,07
Eucalipto (folhas)	0,03	0,07	0,03	0,01	0,08	0	0,18
FT – Ra _{trocável}							
Pinheiro (agulhas)	0,05	0,2	0,15	0,25	0,25	0,25	0,35
Pinheiro (raízes)	0,6	0,3	0,5	0,4	0,15	0,25	0,5
Giesta (partes aéreas)	0	1,3	1	0	0,35	0,45	0
Giesta (raízes)	0	1,5	1	0	0,3	0,7	0
Eucalipto (folhas)	0,2	0,25	0,8	0,02	0,2	0	1,8

Tabela 6-11: FT médios para o Ra total e para o Ra trocável (Madruga et al., 2001).

Da análise dos dados e dos resultados obtidos podemos resumir o seguinte:

- Os FT para o eucalipto e para o pinheiro diminuem para baixas concentrações de rádio no resíduo e mantêm-se relativamente constantes para elevadas concentrações (Figura 6-6, Figura 6-7 e Figura 6-8).
- Para as giestas, os FT aumentam para valores mais elevados de concentração de rádio nos resíduos, aproximando-se de um patamar de saturação, provavelmente devido ao diferente metabolismo das espécies anteriores (Figura 6-8, raízes).
- 3. Os valores médios de FT variam entre 0,01 e 0,18 e estão de acordo com os valores documentados na literatura: 7 x 10⁻⁵ a 0,75 (Carvalho et al., 2001). Para vegetais cultivados em locais de elevada radioactividade natural Vasconcelos et al. (1987) refere valores de 0,001 a 0,06 e Bettencourt et al. (1988) refere valores de 0,01 a 0,07. Para a vegetação selvagem os valores apresentados na bibliografia consultada são inferiores a 0,38 (Martinez & Periánez, 1998), (Carvalho et al., 2001).
- A comparação dos FT_{resíduo/raízes} com os FT_{resíduo/agulhas} para o pinheiro, no mesmo local considerado, indica que não há diferença entre a transferência do rádio para as raízes e para as agulhas, dentro do mesmo local contaminado (Figura 6-9).
- 5. Por outro lado, a comparação entre os diferentes locais contaminados revela diferenças significativas para os FT_{resíduo/pinheiros}. Isto pode ser explicado pela

diferente concentração de rádio em cada um dos locais considerados. No entanto, se os processos de absorção são os mesmos, concentrações superiores de rádio deviam implicar FT inferiores (Carvalho et al., 2001).

- 6. No caso dos arbustos, o cenário é semelhante: os FT_(resíduo/partes aéreas) e os FT_(resíduo/raízes) não variam significativamente dentro do mesmo local, mas variam significativamente de local para local. Contudo e de uma forma genérica, os FT_(planta/resíduo) e os FT_(raízes/resíduo) para a mesma espécie são da mesma ordem de grandeza, o que significa que o rádio absorvido pelas raízes é idêntico ao translocado para as partes aéreas da planta (Carvalho et al., 2001) (Figura 6-10).
- 7. Finalmente, no caso dos eucaliptos (folhas), verifica-se uma semelhança da transferência do rádio do resíduo para as folhas para todos os locais contaminados. No entanto, verifica-se também uma grande diferença entre os locais contaminados e os solos de referência (Figura 6-11).
- 8. Para os diferentes grupos de plantas era esperada uma grande diferença ente os FT solos de referência/vegetação e os FT resíduo/vegetação. Contudo, apenas se verificaram ligeiras variações, à excepção do caso dos eucaliptos, em que se verifica uma grande diferença entre um dos locais contaminados (D₇) e os solos de referência. Isto pode ser explicado pela camada de cascalho, de cerca de 2 m, existente sobre este local levando a que as raízes não estejam em contacto com o resíduo e por isso a absorção não seja influenciada pela contaminação (Carvalho et al., 2001). Verifica-se assim que os restantes FT são da mesma ordem de grandeza para os três grupos de vegetação.
- 9. A quantidade de rádio disponível para absorção (< 20 %) revela que uma grande fracção do rádio não trocável (ou seja, não disponível) encontra-se sorvido em outras fases sólidas do substrato, principalmente nos óxidos de ferro-manganésio e na matéria orgânica (Carvalho et al., 2001). Isto parece estar de acordo com os resultados obtidos experimentalmente por Madruga et al. (2001): 16,0 ± 8,3 % de rádio trocável obtido com acetato de amónia; por Vasconcelos et al. (1987): 2,3 a 34,5 % e por Sam & Erickson (1995): 7,1 a 27,8 % de rádio trocável para solos agrícolas.</p>
- 10. A estimativa dos FT com base no rádio trocável indica não haver diferença entre o FT das raízes e o FT das agulhas dos pinheiros para locais contaminados diferentes. O mesmo se verifica para os arbustos (giesta – raízes e partes aéreas) e para os eucaliptos (folhas) (Figura 6-12, Figura 6-13 e Figura 6-14).

- 11. Os FT estimados com base no rádio trocável são cerca de uma ordem de grandeza superior aos FT estimados com base no rádio total.
- 12. A extracção sequencial do rádio (fase trocável, fase ligada a carbonatos, fase ligada a óxidos de ferro e manganésio, fase ligada à matéria orgânica e fracção residual), levaram a concluir que a maior percentagem de rádio (> 50 %) está associada à forma fixa (não trocável) e deste modo, não disponível à absorção e transferência para as plantas (Carvalho et al., 2001), (Madruga et al., 2001).

# 6.9 O modelo de transferência para a vegetação

O modelo básico para estimar a entrada dos contaminantes para a cadeia alimentar poderá ter duas componentes essenciais consoante a sua origem: a vegetação e/ou os animais. No caso da vegetação ou das plantas, o modelo deverá quantificar a absorção dos contaminantes do solo, a transferência pela água e a deposição do ar. No caso dos animais, o modelo deverá quantificar a transferência directa dos RDN através da ingestão das plantas contaminadas e a transferência indirecta para os humanos através da ingestão de produtos dos animais contaminados. Os produtos potencialmente contaminados e transferidos através da ingestão podem ser agrupados genericamente em 4 categorias: carne, leite, vegetais com folhas e vegetais sem folhas. Não se pretende contemplar todos os tipos de produtos alimentares potencialmente expostos, mas é possível introduzir algumas modificações para adaptar o modelo a outro tipo de produtos.

Duma forma geral, para simular a transferência de RDN na cadeia alimentar, podem ser aplicados dois tipos de modelos: modelos dinâmicos e modelos em estado estacionário. Os modelos dinâmicos separam os componentes do sistema em compartimentos (ar, solo, água, plantas, etc.) e descrevem a variação do nível de contaminantes, pela sua transferência dentro e fora dos compartimentos, através de equações diferenciais lineares. Os modelos em estado estacionário pressupõem equilíbrio entre os vários compartimentos e apesar de serem modelos relativamente simples, incluem os parâmetros primários que controlam a absorção e a transferência dos contaminantes entre os compartimentos. Apesar de existirem diferentes abordagens da transferência dos contaminantes para a cadeia alimentar descritas na bibliografia, as equações básicas e os princípios são bastante similares. A primeira parte do modelo de transferência para a cadeia alimentar pretende estimar a concentração de RDN nas plantas. Numa primeira fase simula-se a transferência dos contaminantes para as partes da planta que vão ser ingeridas pelos animais e pelos humanos, pressupondo que não há irrigação com água contaminada. As trajectórias de exposição associadas com esta contaminação das plantas são a absorção pelas raízes, a deposição e a ressuspensão do solo. Posteriormente, numa 2.ª fase, também é estimada a transferência da contaminação através da irrigação, nas mesmas trajectórias de exposição, apenas diferindo o meio de origem da transferência que passa a ser a água de irrigação em vez do solo contaminado.

# 6.9.1 O modelo conceptual de transferência para a vegetação

As plantas podem ser expostas à contaminação através da deposição directa na sua superfície (por deposição seca, por deposição húmida e por ressuspensão), através da absorção pelas raízes e da irrigação com água contaminada. A ressuspensão é constituída pelos contaminantes depositados no solo, ressuspensos no ar pelo vento, pela chuva, ou por mecanismos mecânicos e que são subsequentemente depositados na superfície das plantas.

O modelo geral pode ser aplicado tanto às plantas ingeridas pelos humanos como às plantas que vão servir de alimento aos animais, variando, no entanto, os valores dos parâmetros consoante o tipo de planta.

Os modelos mais simples não incluem a deposição por via seca nem por via húmida ou a irrigação e a concentração na planta é estimada multiplicando a concentração medida no solo por um factor de biotransferência específico do contaminante e da planta. Esta abordagem é especialmente adequada quando a fonte de contaminação é apenas o solo contaminado.

Outros modelos mais detalhados podem incluir a deposição húmida ou seca e a translocação dos contaminantes para as partes comestíveis das plantas. Se a absorção pelas raízes é a trajectória principal para determinado contaminante, os modelos simples (sem considerar a deposição e a irrigação) são geralmente adequados. Contudo, para contaminantes com um baixo factor de transferência ou quando a deposição é contínua, a ressuspensão e a subsequente deposição podem constituir trajectórias de exposição primárias sendo necessário modelos mais detalhados que contemplem estas trajectórias. A *Environmental Protection Agency* (EPA, 1989) sugere que apenas seja considerada a modelação da deposição se esta for a principal fonte de contaminação, sendo neste caso, desprezável a contribuição da contaminação pela água de irrigação.

O modelo que a seguir se descreve inclui a deposição e a translocação em adição à absorção pelas raízes, mas pode ser adaptado a condições específicas de um local particular, bastando para isso, definir as condições locais e as trajectórias principais desprezando as desnecessárias.

# 6.9.2 Os parâmetros envolvidos no modelo de transferência para a vegetação

Na Tabela 6-12 encontram-se representados os parâmetros necessários ao modelo de exposição das plantas, bem como a descrição do seu significado e a indicação de alguns valores por defeito recomendados na bibliografia, na ausência de dados específicos do local que se pretende estudar em particular (DOE, 1999). As referências bibliográficas de onde foram retirados os valores são diversas pelo que referimos apenas as mais relevantes na selecção dos valores: (Baes et al., 1984), (Baker et al., 1976), (DOE, 1995), (Hinton, 1992), (Hoffman et al., 1984), (IAEA, 1994), (McKone, 1994), (Miller, 1980), (NCR, 1977), (NCRP, 1984, 1989), (Peterson, 1983), (Pinder & McLeod, 1989), (Whelan et al., 1987), (Wilson, 1995). No anexo H é apresentada uma descrição em pormenor destes parâmetros bem como a origem de alguns dos valores indicados.

Parâmetro		Variação
Factor de transferência solo-planta: FT _{solo/planta} (kg solo /kg planta),	²	
d _d , fluxo de deposição, (Bq.m ⁻² d ⁻¹ )	Calculado	
V _d , Velocidade de deposição, (m.d ⁻¹ )	1000	17-2333
f _{ar,} f _{ag} , fracção de retenção, (-)		
Pasto	0,42	0,02-0,82
Vegetais com folhas	0,42	0,06-1,2
Vegetais sem folhas	0,42	0,06-1,2
Água de irrigação	0,25	0,23-0,38
T _r , factor de translocação, (-)		
Pasto	1,0	
Vegetais com folhas	1,0	
Vegetais sem folhas	0,1	
Y, biomassa, (kg.m ⁻² )		
Pasto (peso seco)	0,168	0,112-0,224
Valor geral (peso húmido)	2	
Vegetais com folhas (peso húmido)	0,62	
$\lambda_e$ , constante remoção - planta, (d ⁻¹ )	Calculado	
t _w , vida média da meteoração, (d)	14	2,8-34
t _{e,} tempo de exposição, (d)		
Pasto	30	
Vegetais	60	
M _{LF} , factor de deposição de massa (kg _{solo} /kg _{planta} )		
Pasto	0,25	< 0,001-0,5
Vegetais com folhas	0,26	
Vegetais sem folhas	0,11	0,008-0,21
IR _r , fluxo de irrigação, (L.m ⁻² .d ⁻¹ )		
Pasto	0	
Vegetais	3,62	
I _p , período de irrigação, (-)	0,25	
$\rho_e,$ densidade efectiva do solo na zona das raízes, (kg.m $^{\text{-}2})$	240	170-267
$\lambda_b$ , constante de remoção do solo, (d ⁻¹ ) (valor calculado ³ )	$0,000027 + \lambda_{d}$	
$\lambda_d$ , constante de decaimento radioactivo, (d ⁻¹ )	0,693 / t _{1/2}	
t _b , tempo de acumulação, (d)	10 950	

Tabela 6-12: Parâmetros envolvidos no modelo de transferência para a vegetação.

² Específico da planta e do contaminante.
 ³ Resulta da soma das perdas de RDN por outros processos (que não seja o decaimento radioactivo) com as perdas de RDN pelo decaimento radioactivo.

# a) Os coeficientes de transferência solo-planta

Os coeficientes de transferência publicados na literatura especializada apresentam uma grande variação resultante dos diferentes tipos de solo, bem como os diferentes tipos de plantas e das condições ambientais envolvidas na sua estimativa (IAEA, 1994). Na ausência de dados experimentais podemos utilizar os valores que figuram na compilação *International Union of Radioecology* (IAEA, 1994) que resultaram da homogeneização tanto quanto possível das condições experimentais, da estimativa dos factores relativamente a um elemento e planta específicos. Os valores foram padronizados para uma camada de solo com 20 cm, homogeneamente contaminada, para os vegetais e para uma camada de solo de 10 cm para a erva de pasto, bem como para os valores de pH do solo, nomeadamente: pH = 6 para a argila, pH = 5 para areias e pH = 4 para solos orgânicos.

Para valores de pH superiores verifica-se a diminuição da absorção. No caso das plantas ou vegetais ingeridos pelos humanos, os valores referem-se apenas à parte comestível da planta, enquanto que nas plantas que vão ser ingeridas pelos animais, o coeficiente refere-se à planta como um todo e são apresentados numa base de peso seco da planta (IAEA, 1994).

## b) Fluxo de deposição, d_d e velocidade de deposição, V_d

O fluxo de deposição é uma medida da massa de material depositado transferido do ar, por deposição, para uma área unitária de solo por unidade de tempo. Pode ser obtido pela multiplicação da concentração no ar (Bq/m³) pela velocidade de deposição (m/s) (NCRP, 1984).

A concentração no ar pode ser medida à altura da vegetação ou a uma altura de referência, geralmente a 1 m, ou pode ser determinada pela definição do factor de carregamento de massa no ar, *air mass loading factor*,  $M_{LF}$  (Healy, 1980). Segundo este conceito, a concentração de contaminante no ar (a 1 m de altura) é o resultado do produto entre a concentração do contaminante no solo e a concentração nas partículas de solo no ar. Um valor razoável, segundo a bibliografia consultada (EPA, 1977), (Healy, 1980), (Anspaugh et al., 1975) para este factor é de 100 µg/m³ mas não inclui a componente da ressuspensão de origem mecânica. Neste caso, o valor genérico a considerar deve ser de 200 µg/m³, sendo no entanto, um valor bastante conservativo comparativamente aos dados de amostragem, segundo os mesmos autores.

A velocidade de deposição relaciona a concentração existente na superfície com a concentração que se deposita na mesma superfície (ressuspensa e depositada). O valor indicado na bibliografia por defeito é 1000 m/d (NCRP, 1989). Este valor inclui a deposição por via húmida bem como a deposição por via seca e representa o valor médio do intervalo de variação [17-2333] m/d.

O factor de carregamento de massa pode ser relacionado directamente com a concentração de contaminante nas plantas, *plant mass loading factor* (M_{LF}) definido como o quociente entre a massa de solo (ressuspenso e depositado) nas plantas e a massa das plantas, em massa seca (Hinton, 1992). A concentração do contaminante depositado na planta devido à ressuspensão é obtida pela multiplicação do factor M_{LF} (kg de solo/kg de planta, massa seca) pela concentração do contaminante nas partículas de solo ressuspenso. (Ver anexo I para melhor compreensão deste parâmetro).

## c) Fracção de retenção, f_(ar) ou f_(ag)

A fracção de retenção quantifica a proporção da quantidade de contaminante que se deposita e que é retida na vegetação.

A bibliografia refere um intervalo de variação de [0,02-0,82] (Miller, 1980) para vários tipos de erva de pasto. O valor intermédio deste intervalo (0,42) é indicado como o valor a usar por defeito, na estimativa da concentração de RDN na erva de pasto. Para os vegetais, o intervalo de variação indicado é [0,06-1,2] (Miller, 1980). No entanto, para a maior parte dos valores deste intervalo (inferiores a 0,49) não seria representativo usar o valor médio (0,63) tendo sido adoptado o mesmo valor de 0,42 para os vegetais (Miller, 1980). O valor recomendado para a fracção de retenção das partículas depositadas através da água de irrigação (f_{aq}) é igual a 0,25 (DOE, 1999).

#### d) Fracção de translocação, T_r

O factor de translocação quantifica o movimento dos contaminantes depositados na superfície das plantas para as suas partes comestíveis (como por exemplo das folhas para os frutos). As partes comestíveis dos vegetais com folhas e da erva de pasto são precisamente a superfície das folhas, pelo que o factor de translocação atribuído é igual à unidade para este tipo de plantas (NCRP, 1984). A translocação da superfície das folhas para a parte comestível dos vegetais sem folhas, frutos e grãos é uma suposição pois os dados publicados para suportar a sua translocação são limitados (DOE, 1999). A grande maioria dos valores obtidos para a

translocação é inferior a 0,1 sendo por isso, o valor recomendado por defeito (DOE, 1999).

## e) Biomassa da planta

A biomassa da planta (Y) é usada nos modelos de deposição para quantificar a massa por unidade de superfície de área sobre a qual as partículas são depositadas. Na ausência de dados específicos, a bibliografia recomenda o valor genérico de 2 kg (peso húmido)/m² para os vegetais (com e sem folhas) (NCRP, 1989).

Outros autores recomendam que sejam usados os seguintes valores por defeito para a biomassa (DOE, 1999):

- Y_(vegetais sem folhas) = 0,62 kg (peso seco)/m²;
- $Y_{(raízes)} = 0.67 \text{ kg} (peso seco)/m^2;$
- Y_(frutos) = 0,62 kg (peso seco)/m²,

sendo estes valores os pontos médios dos respectivos intervalos de variação. Para a erva de pasto, a mesma referência indica um intervalo de variação para a biomassa de [0,04-1,59] kg (peso seco)/m², sendo o valor médio igual a 0,33 kg (peso seco)/m² (DOE, 1999), (Baes et al., 1984).

# f) Constante de remoção da superfície das plantas, $\lambda_e$

A constante de meteoração ( $\lambda_w$ ) e a constante de decaimento radioactivo ( $\lambda_d$ ) quantificam a remoção do material depositado da superfície das plantas como resultado dos processos de meteoração e do decaimento radioactivo dos RDN, respectivamente. A constante de meteoração ( $\lambda_w$ ) é estimada pelo período de semivida da meteoração ( $t_w$ ) e representa o tempo necessário para que a contaminação depositada originalmente seja reduzida a metade (NCRP, 1984). O valor de  $t_w$  recomendado na bibliografia é de 14 dias para toda a vegetação (DOE, 1999).

# g) Tempo de exposição na superfície do solo, $t_e$

Este parâmetro é definido como sendo o tempo de exposição da vegetação à contaminação durante a época de crescimento (NCRP, 1984). Apesar deste parâmetro variar com o tipo de planta e a época de crescimento para uma região em particular (Hoffman et al., 1984), a bibliografia consultada sugere 30 dias para o pasto e 60 dias para os vegetais. Os 30 dias pretendem representar o período em que o pasto é o *habitat* dos animais e os 60 dias o período aproximado para o crescimentos dos

vegetais (DOE, 1999). O período de exposição pode ser diferente se a exposição tiver origem na deposição ou na irrigação com água contaminada. No primeiro caso o período de exposição é o tempo que a vegetação está exposta à deposição e no segundo caso corresponde ao período de tempo que a vegetação é irrigada com água contaminada.

## h) Factor de carregamento de massa, M_{LF}

O conceito de factor de carregamento de massa pretende descrever a relação entre as características do solo e o processo de ressuspensão e relaciona a concentração de contaminante medida directamente no solo com a concentração no ar através da massa da partícula de solo. Contudo, os factores de carregamento de massa devem considerar a diferente distribuição da contaminação no solo. A concentração do contaminante no ar é determinado como o produto entre a concentração de contaminante no solo e a concentração da partícula de solo no ar. Desta forma, os factores medidos podem ser usados para determinar a concentração de contaminante no ar do local em que foram medidos.

No caso da ressuspensão dos contaminantes para a superfície das plantas, o factor de carregamento de massa é definido como o quociente entre a massa de solo na vegetação por massa de vegetação seca (Hinton, 1992). Este factor é multiplicado pela concentração da fracção de solo ressuspensa para determinar a concentração na fracção depositada na planta por ressuspensão.

O valor médio deste factor para o pasto varia entre < 0,001 a 0,5 (kg solo/kg de planta) (Hinton, 1992). O valor de 0,26 (kg solo/kg de planta) é o valor indicado, por defeito, para os vegetais com folhas (Pinder & McLeod, 1989). Para os vegetais sem folhas, o valor é variável entre 0,008 e 0,21 (Hinton, 1992) e o valor recomendado é o ponto médio deste intervalo, ou seja, 0,11 (kg solo/kg de planta) (DOE, 1999).

# i) Fluxo de irrigação, IR, e período de irrigação, Ip

O fluxo e o período de irrigação definem, respectivamente, a quantidade e a duração da irrigação com água contaminada. Em alguns locais em que a precipitação é suficiente para o crescimento do pasto, não haverá a prática de irrigação, sendo por isso, um factor específico do local. Os valores por defeito podem ser diversificados, no entanto, um dos valores indicados na bibliografia é 3,62 L.m⁻².d⁻¹ (DOE, 1995). Para o período de irrigação o valor recomendado é igual a 0,25 assumindo que os vegetais vão ser irrigados três meses num ano (DOE, 1999).

#### j) Densidade do solo na zona das raízes

Apesar da profundidade das raízes das plantas variar com o tipo de planta e as condições do solo, é usado um valor típico de 15 cm em vários modelos de exposição (NCR, 1977), (Nicholson, 1988), (Peterson, 1983) sendo esta a profundidade característica para a camada de solo lavrado. A densidade do solo (kg/m³) é multiplicada pela profundidade das raízes para obter a densidade do solo na zona das raízes em kg/m² (peso seco). O valor mais usado para a densidade do solo é de 1600 kg/m³ (McKone, 1994), (Peterson, 1983). Multiplicando este valor pela profundidade da camada de solo arável, 15 cm, obtém-se o valor de 240 kg/m², sendo este o valor recomendado, por defeito, para a densidade do solo na zona das raízes, (DOE, 1999).

## k) Constante de remoção do solo, λ_b

O débito de remoção do solo ( $\lambda_b$ ) é equacionada com a constante de decaimento radioactivo (Baker et al., 1976), (NCR, 1977). Contudo, se o tempo de exposição a longo prazo e a acumulação do contaminante é estimada ao longo de muitos anos, devem ser incluídos outros mecanismos de perdas, nomeadamente a colheita (que representa a substituição dos produtos contaminados) e a lixiviação. Alguns autores (DOE, 1995) apresentam uma estimativa de  $\lambda_b$  como o resultado da soma da constante do decaimento radioactivo  $\lambda_d$  (0,693/período de semi-vida do RDN) com a constante para as perdas devido à colheita e à lixiviação. Na bibliografia é indicado um tempo médio de remoção de 0,000027 d⁻¹ para estes dois processos referente ao período de 70 anos (NCRP, 1989). Este valor representa uma aproximação ao valor da média geométrica (0,000067) do intervalo de variação [0,0000012-0,0037] para perdas do solo por outros processos, além do decaimento radioactivo, descrito por Hoffman et al. (1984).

## I) Deposição a longo-prazo e acumulação, t_b

O tempo para a acumulação dos contaminantes no solo depende da duração da deposição que deve ser determinada com base nas características específicas do local em estudo. O valor por defeito de 10 950 dias indicado na bibliografia tem por base um tempo de acumulação de 30 anos (DOE, 1999).

## 6.9.3 Descrição matemática do modelo de transferência para a vegetação

O modelo genérico estima a concentração nas plantas quantificando a absorção pelas raízes, a deposição do ar e a ressuspensão dos RDN do solo com a posterior deposição nas plantas. Para os casos em que a irrigação é significativa, deve ainda considerar-se as componentes da absorção pelas raízes com origem na água de irrigação, a ressuspensão dos contaminantes com origem na água de irrigação e a deposição directa da água de irrigação (contaminada) na superfície das plantas. A concentração total na planta (inclui a contaminação no exterior das plantas, ou seja, na superfície, e no interior), para um local em que se considera haver irrigação com água contaminada, pode ser estimada por (DOE, 1999):

$$C_{pl} = C_{ad} + C_{dd} + C_{rd} + C_{ai} + C_{di} + C_{ri}$$
 (6-26)

em que C_{pl} (Bq/kg) representa a concentração da contaminação na planta com origem na deposição e na absorção pelas raízes. Os parâmetros com origem na deposição são descritos pelos termos:

C_{ad}: concentração nos tecidos da planta devido à absorção pelas raízes, (Bq/kg)

C_{dd}: concentração nas partes comestíveis da planta por deposição directa, (Bq/kg)

C_{rd}: concentração nas partes comestíveis da planta devido à ressuspensão, (Bq/kg)

e os parâmetros com origem na água de irrigação contaminada são descritos por:

Cai: concentração nos tecidos da planta devido à absorção pelas raízes, (Bq/kg)

C_{di}: concentração nas partes comestíveis da planta por deposição directa, (Bq/kg)

C_{ri}: concentração nas partes comestíveis da planta por ressuspensão, (Bq/kg).

Os três últimos termos são nulos se a irrigação for desprezável. Se a deposição atmosférica for desprezável, os termos da deposição directa também são nulos. Desta forma, o modelo pode ser adaptado a vários cenários consoante o caso em estudo.

## 6.9.3.1 Transferência de RDN para a vegetação sem irrigação

#### 6.9.3.1.1 Absorção pelas raízes com origem na deposição

As plantas são expostas aos contaminantes do solo através das suas raízes. Esta exposição é quantificada pela multiplicação da concentração no solo pelo factor de transferência específico do contaminante. O factor de transferência é definido como o quociente entre a concentração do contaminante no tecido da planta e a concentração no solo e representa uma medida da quantidade de contaminante do solo transferido para a planta.

A situação ideal seria usar coeficientes de transferência específicos do local que se pretende estudar, nomeadamente específicos da planta e dos contaminantes em causa. Na ausência destes valores, existem na bibliografia (IAEA, 1994), (NCRP, 1989), (Ng & Colsher, 1982), (Baes et al., 1984) várias referências dos factores de transferência.

A concentração de um contaminante no tecido das plantas devido à absorção pelas raízes do solo pode ser estimada pela seguinte expressão (DOE, 1999):

$$C_{ad} = C_{so} \cdot FT$$
 (6-27)

C_{ad}: concentração no tecido das plantas devido à absorção pelas raízes, (Bq/kg)

- C_{so}: concentração de RDN na camada superior de solo (15 cm), (Bq/kg)
- FT factor de transferência do solo para os tecidos da planta, Bq/kg planta (peso seco) por Bq/kg de solo (peso seco).

A concentração no solo (C_{so}) refere-se à concentração no solo na zona das raízes. Dependente do tipo de planta e do local, a profundidade das raízes pode variar de alguns cm a pouco mais de 1 m. Normalmente, não se consideram profundidades superiores a 1 m. A parte das raízes responsável pela absorção de água e de minerais ocorre na camada de solo entre 15 e 100 cm. Para solos agrícolas cultivados, é razoável que a zona das raízes se encontre a uma profundidade superior a 15 cm. No caso da erva de pasto, a zona das raízes pode ser menor. O valor adoptado para a profundidade das raízes indicado na bibliografia (DOE, 1999) corresponde a uma camada de solo superficial de 15 cm.

Nesta expressão não é considerado o débito de remoção do solo, ou seja a perda de actividade pela lixiviação dos RDN no solo, uma vez que a concentração no solo (C_{so}) representa apenas a concentração disponível (DOE, 1999). Se a lixiviação ou a meteoração do solo forem significativas, estes valores devem ser incluídos no cálculo da concentração.

#### 6.9.3.1.2 Deposição directa na vegetação

Este parâmetro quantifica a deposição directa dos contaminantes na superfície das plantas. A ressuspensão das partículas da superfície do solo e subsequente

deposição na superfície das plantas também deve ser considerada. Esta componente do sistema pode ser desprezada, nomeadamente nos cenários em que a fonte de contaminação é apenas o solo ou a água. A concentração na planta resultante da deposição atmosférica pode ser estimada por (DOE, 1999):

$$C_{dd} = \frac{d_{d} \cdot f_{ar} \cdot T_{r} \cdot (1 - e^{(-\lambda_{e} \cdot t_{e})})}{Y \cdot \lambda_{e}}$$
(6-28)

em que

 $\mathbf{d}_{d} = \mathbf{C}_{ar} \cdot \mathbf{V}_{d} \tag{6-29}$ 

$$\lambda_{\rm e} = \lambda_{\rm d} + \frac{0.693}{t_{\rm w}} \tag{6-30}$$

C_{dd}: concentração nas partes comestíveis da planta por deposição directa, (Bq/kg)

d_d: fluxo de deposição dos contaminantes na superfície do solo, (Bq.m⁻².d⁻¹)

 $C_{ar}$ : concentração no ar, (Bq/m³)

V_d: velocidade de deposição, (m/d)

f_{ar}: fracção dos contaminantes depositados e retidos nas folhas) (-)

T_r: translocação dos contaminantes depositados exteriormente para as partes comestíveis da planta (-)

Y: biomassa existente na altura da colheita, (kg/m²)

λ_e: constante de remoção dos contaminantes depositados na planta, (d⁻¹)

t_e: tempo de exposição da planta à contaminação, (d)

t_w: período de semi-vida da meteoração, (d).

#### 6.9.3.1.3 Ressuspensão a partir do solo contaminado

Os contaminantes na superfície do solo podem ser ressuspensos no ar através do vento ou de perturbações mecânicas. As partículas ressuspensas podem então ser depositadas na superfície das plantas. As concentrações no solo, são geralmente superiores às concentrações na planta, pelo que mesmo pequenas contribuições do solo para a sua superfície podem significar uma contribuição importante para a ingestão (Green & Dodd, 1988), (Pinder & McLeod, 1988), (Hinton, 1992). Em locais onde a ressuspensão é um factor predominante, a deposição directa na superfície das plantas pode exceder a absorção pelas raízes (Adriano et al., 1980).

Podem ser considerados três tipos genéricos de ressuspensão: i) a ressuspensão originada pelo vento, ii) a ressuspensão mecânica, iii) e a ressuspensão local. Os dois últimos tipos de ressuspensão resultam da perturbação mecânica do solo. Os factores de ressuspensão mecânica têm sido usados para estimar a concentração dos contaminantes no ar na direcção do vento. A ressuspensão local refere-se à ressuspensão que ocorre na vizinhança imediata do receptor antes da dispersão ocorrer (Healy, 1980).

Muitos dos métodos usados para cálculo da ressuspensão (factor de ressuspensão, débito da ressuspensão e o carregamento da massa da partícula no ar) foram desenvolvidos especificamente para cálculos de dose de inalação e não de ingestão. Os valores dos factores de ressuspensão, bem como o débito de ressuspensão podem apresentar elevadas variações, nomeadamente cerca de 7 a 8 ordens de magnitude (Napier et al., 1988). A humidade pode reduzir a ressuspensão relativamente aos locais áridos ou semi-áridos, possivelmente porque em locais húmidos há uma maior cobertura de vegetação densa o que pode reduzir a probabilidade da ressuspensão. Os factores de ressuspensão não são adequados para a determinação da concentração no ar uma vez que as condições segundo as quais são determinados não são suficientemente explícitas para permitir a sua extrapolação a diferentes áreas das que serviram de base para o seu cálculo (DOE, 1999).

Hinton (1992) defende que a abordagem do carregamento da massa da partícula no ar é a mais adequada para a estimativa da concentração resultante da ressuspensão. A abordagem, segundo este conceito, representa a determinação da massa de solo na vegetação (superfície) por massa de vegetação seca. Na ausência de medições directas da concentração na planta, os factores de carregamento de massa (M_{LF}) podem ser multiplicados pela concentração da fracção de solo potencialmente ressuspensas para obter a concentração na planta.

A importância relativa da contaminação na superfície de solo, quando comparada com a absorção pelas raízes, pode ser elevada se os contaminantes estiverem concentrados em pequenas partículas de solo ou se tiverem sido depositadas recentemente na superfície e que serão facilmente ressuspensos.

Pela abordagem do carregamento de massa nas plantas, a contribuição da ressuspensão do solo para a contaminação da planta pode ser estimada como o

produto entre a concentração no solo e o factor de carregamento de massa na planta (DOE, 1999):

$$C_{rd} = M_{LF} \cdot C_{so}$$
 (6-31)

- C_{rd}: concentração nas partes comestíveis da planta com origem na ressuspensão dos contaminantes do solo e deposição nas plantas, (Bq/kg)
- M_{LF}: factor de carregamento de massa da partícula, (kg de solo/kg planta, peso seco).

O uso da concentração do solo superficial em vez da concentração da fracção de solo potencialmente ressuspensa, vai implicar uma estimativa inferior à resultante da ressuspensão, isto porque ao considerar-se a camada de solo superficial de 15 cm como a fracção de solo potencialmente ressuspenso, não se contempla solos de profundidades superiores e cujas partículas podem ser igualmente ressuspensos.

#### 6.9.3.2 Transferência de RDN para a vegetação pela água de irrigação

Considera-se que as plantas podem ser irrigadas com água superficial ou com água subterrânea. Os modelos para a absorção dos RDN existentes na água de irrigação são similares aos anteriores, excepto no uso da concentração da água em vez da concentração no solo ou no ar, e a incorporação do fluxo de irrigação e do período de irrigação.

#### 6.9.3.2.1 Absorção dos RDN pelas raízes com origem na água de irrigação contaminada

A estimativa da absorção do contaminante pelas raízes com origem na água de irrigação contaminada pode ser dada pela seguinte expressão (DOE, 1999):

$$C_{ai} = \frac{C_{w} \cdot IR_{r} \cdot I_{p} \cdot FT \cdot (1 - e^{(-\lambda_{b} \cdot t_{b})})}{\rho_{e} \cdot \lambda_{b}}$$
(6-32)

C_{ai}: concentração de RDN na planta devido à absorção pelas raízes (Bq/kg)

- C_w: concentração na água de irrigação, (Bq/L)
- IR_r: fluxo de irrigação, (L.m⁻².d⁻¹)
- I_p: período de irrigação ou fracção do ano que as plantas são irrigadas, (-)
- $\rho_e$ : densidade do solo da zona das raízes, (kg/m²)
- $\lambda_{b}$ : constante de remoção efectiva dos contaminantes do solo, (d⁻¹)
- t_b: deposição a longo-prazo e acumulação, (d).

#### 6.9.3.2.2 Deposição com origem na água de irrigação contaminada

A concentração nos tecidos da planta, devido à deposição na superfície da planta dos RDN existentes na água de irrigação, é semelhante à deposição na superfície da planta a partir do ar. Contudo, o fluxo de deposição é o produto entre a concentração na água de irrigação e o fluxo de irrigação ( $C_w \cdot IR_r$ ), em vez da concentração no ar vezes a velocidade de deposição ( $C_{ar} \cdot V_d$ ). A expressão resultante é a seguinte (DOE, 1999):

$$C_{di} = \frac{C_{w} \cdot IR_{r} \cdot I_{p} \cdot f_{ag} \cdot T_{r} \cdot (1 - e^{(-\lambda_{e} \cdot t_{e})})}{Y \cdot \lambda_{e}}$$
(6-33)

- C_{di}: concentração nas partes comestíveis das plantas resultante da deposição directa dos contaminantes existentes na água de irrigação, (Bq/kg)
- f_{ag}: fracção de retenção (fracção dos contaminantes depositados interceptados e retidos nas folhas), (-).

#### 6.9.3.2.3 Ressuspensão com origem na água de irrigação contaminada

A componente de ressuspensão também pode existir no cenário da transferência dos RDN pela água de irrigação através do fluxo de irrigação, do decaimento radioactivo e das perdas por lixiviação no modelo da ressuspensão no solo. A concentração no solo, resultante da irrigação, deve ser uma entrada no modelo incorporada na ressuspensão do solo (DOE, 1999).

$$C_{ri} = M_{LF} \frac{C_{w} \cdot IR_{r} \cdot I_{p} \cdot (1 - e^{(-\lambda_{b} \cdot t_{b})})}{\rho_{e} \cdot \lambda_{b}}$$
(6-34)

C_{ri}: concentração nas partes comestíveis da planta devido à ressuspensão dos contaminantes existentes na água de irrigação, (Bq/kg).

## 6.9.4 O transporte ambiental dos RDN

No caso da contaminação da água subterrânea, a migração dos RDN na biosfera e consequentemente a exposição, inicia-se quando a água contaminada é utilizada para fins domésticos e agrícolas. Desta forma, os RDN são redistribuídos da fonte de contaminação inicial para outros componentes da biosfera, tais como o solo, o ar, as plantas e os animais podendo entrar desta forma na cadeia alimentar.

As expressões seguintes são as utilizadas no modelo GENII (Napier et al., 1988), (Leigh et al., 1993) que consiste numa avaliação radiológica da dose resultante para os humanos com base no transporte ambiental dos RDN na atmosfera, na água superficial, inclui o transporte biótico e a redistribuição na superfície da contaminação com origem numa fonte radioactiva armazenada no subsolo.

#### 6.9.4.1 Concentração de RDN no solo

Apesar de se poder considerar mais do que uma camada de solo, apenas a contaminação presente na superfície é potencialmente ressuspensa e transferida para a vegetação. A concentração de RDN na camada superficial de solo é descrita por uma simples equação de conservação de massa: a variação da concentração de RDN num volume do solo é igual à actividade que é adicionada menos a actividade que é removida. Podemos considerar três mecanismos principais de remoção dos RDN do solo: o decaimento radioactivo, a absorção pelas plantas e a lixiviação para camadas mais profundas de solo (mais profundas do que a zona das raízes) onde a actividade fica indisponível para as plantas. Poderá ainda ocorrer outro mecanismo de remoção através da erosão (pelo vento ou pela água).

O cálculo seguinte da concentração de RDN no solo é baseado num período de irrigação de 1 ano. Assume-se que a contaminação está uniformemente distribuída na camada superior de solo, onde supostamente, se encontram as raízes das plantas. A actividade no solo por unidade de área, de um dado RDN, após irrigação com água contaminada, é dada pela seguinte expressão (Leigh et al., 1993):

$$C_{s} = \frac{C_{w} \cdot IR_{r} \cdot (1 - e^{-\lambda_{b} \cdot t_{e}})}{\lambda_{b}}$$
(6-35)

 $C_s$ : concentração da actividade do RDN no solo por unidade de área, (Bq/m²)  $\lambda_b$ : constante de remoção dos contaminantes do solo por lixiviação, (d⁻¹).

## 6.9.4.2 Concentração de RDN no ar

A concentração de RDN no ar (C_{ar}) com origem na ressuspensão é calculada a partir da definição do factor de ressuspensão, pela seguinte expressão (Napier et al., 1988):

$$C_{ar} = C_s \cdot R_e$$
 (6-36)

Página 423

O factor de ressuspensão ( $R_e$ ) pode ser pode ser estimado a partir dos valores de Anspaugh et al. (1975), segundo a expressão (Hung, 2000):

$$R_{e} = R_{e1} \cdot e^{(-0.15 \cdot \sqrt{t})} + R_{e2}$$
(6-37)

- R_e: factor de ressuspensão, (m⁻¹)
- t: tempo decorrido, (d)

$$R_{e1}$$
: 10⁻⁴, (m⁻¹)

$$R_{e2}$$
: 10⁻⁹, (m⁻¹)

As constantes  $R_{e1}$ ,  $R_{e2}$  são parâmetros de ressuspensão mecânica denominados constantes de "Anspaugh" (Anspaugh et al., 1975).

#### 6.9.4.3 Concentração de RDN na vegetação

Considerando genericamente quatro categorias de plantas como meio de transferência dos RDN para a cadeia alimentar, nomeadamente: vegetais com folhas; vegetais sem folhas; frutos e grãos, é possível obter um cenário mais abrangente no que se refere ao tipo de produtos potencialmente contaminados.

Os mecanismos principais de transferência para as plantas são os mesmos já considerados: a deposição directa na superfície da planta e a absorção pelas raízes.

A deposição na superfície das plantas pode resultar da irrigação com água contaminada e da ressuspensão do solo contaminado. Para avaliar a deposição na superfície das folhas, o fluxo para a irrigação e para a ressuspensão do solo devem ser calculados separadamente.

O fluxo de deposição na vegetação devido à irrigação (I_{nwp}, Bq.m⁻².s⁻¹) pode ser calculado pela seguinte expressão (Leigh et al., 1993):

$$\mathbf{I}_{\mathsf{rwp}} = \mathbf{C}_{\mathsf{w}} \cdot \mathbf{I} \mathbf{R}_{\mathsf{r}} \cdot \mathbf{I}_{\mathsf{p}}$$
(6-38)

A concentração na planta, após a deposição de RDN nas folhas, C_{pd} (Bq.kg⁻¹) pode ser calculada pela seguinte expressão (Leigh et al., 1993):

$$C_{pd} = \frac{(I_{rwp} \cdot f_{ag} + d_{d} \cdot f_{ar})T_{r}}{(\lambda_{e} \cdot Y)} (1 - e^{-\lambda_{e} \cdot t_{e}})$$
(6-39)

 $\lambda_e$ : constante de remoção da planta, (d⁻¹)

t_e: tempo de exposição da planta à contaminação, (d).

O factor de translocação (T_r) descreve a transferência dos RDN da superfície para as partes comestíveis das plantas. A fracção de retenção na água de irrigação, (f_{ag}) e a fracção de retenção no ar (f_{ar}) representam a fracção da deposição inicial retida na planta, com origem na água de irrigação e no ar, respectivamente.

A fracção de retenção no ar, f_{ar}, pode ser estimada através da seguinte expressão (Leigh et al., 1993):

$$f_{ar} = 1 - e^{-(a \cdot Y \cdot D_q)}$$
 (6-40)

a: coeficiente de retenção ou de absorção, (m²/kg) (massa seca)

Y: biomassa, (kg/m²) (massa húmida)

D_q: quociente, kg (massa seca)/kg (massa húmida).

O coeficiente de absorção (a) é equivalente a 3,6 para as raízes (vegetais e frutos) e a 2,9 para os vegetais com folhas, grãos e erva de pasto (Napier et al., 1988).

A concentração na planta que resulta da absorção dos RDN pelas raízes ( $C_{pr}$ ) e pode ser estimada pela expressão (Leigh et al., 1993):

$$C_{pr} = \frac{C_s}{\rho_e} \cdot FT$$
(6-41)

C_{pr}: concentração da actividade na planta, por absorção das raízes, (Bq/kg).

A concentração da actividade total na planta (C_p, Bq/kg) é a soma da actividade depositada na superfície da planta com a actividade absorvida pelas raízes (Leigh et al., 1993):

 $C_{p} = C_{pd} + C_{pr}$  (6-42)

# 6.9.5 Transferência dos RDN para a vegetação (deposição e irrigação)

Uma abordagem genérica, relativamente ao tipo de vegetação contaminada, é apresentada pelas expressões que a seguir vão ser descritas.

As expressões são as utilizadas no modelo de Hung (2000) que consiste numa avaliação radiológica da dose resultante da exposição a um resíduo radioactivo de baixo nível armazenado no subsolo. A dose radiológica é estimada para a exposição resultante da contaminação do solo, do ar, da água superficial e da água subterrânea.

A transferência dos RDN para a cadeia alimentar através da vegetação pode ter origem na deposição atmosférica dos RDN na superfície das plantas ou pela água de irrigação (contaminada) que pode lixiviar e mobilizar os RDN para as raízes, ou depositar a contaminação na superfície das folhas da vegetação. Podemos assim considerar, de igual forma, duas trajectórias de exposição: a deposição atmosférica e a irrigação.

## 6.9.5.1 Transferência dos RDN pela deposição

A concentração na vegetação ( $C_{VA}$ ) originada pela deposição atmosférica de um dado RDN pode ser estimada por (Hung, 2000):

$$C_{VA} = \left[ d_{d} \cdot f_{ar} \frac{\left[ 1 - e^{(-\lambda_{e} \cdot t_{e})} \right]}{\left( Y \cdot \lambda_{e} \right)} + \left( \frac{FT \cdot C_{s}}{\rho_{e}} \right) e^{(-\lambda_{d} \cdot t_{c})} \right] \cdot RT$$
(6-43)

C_{VA}: concentração dos RDN na vegetação, (Bq/kg)

 $\lambda_d$ : constante de decaimento radioactivo, (d⁻¹)

t_c: intervalo de tempo entre a colheita e o consumo, (d)

RT: factor de correcção para a densidade das raízes (-).

O parâmetro  $\lambda_e$  resulta da soma de duas constantes:

$$\lambda_{e} = \lambda_{d} + \lambda_{w} \tag{6-44}$$

A concentração de RDN no solo no ano corrente ( $C_s$ , Bq/m²), pode ser estimada pela seguinte expressão:

$$\mathbf{C}_{s} = \left(\mathbf{C}_{i} + \mathbf{d}_{d} \cdot \Delta t\right) \cdot \mathbf{e}^{\left[-(\lambda_{d} + \lambda_{s}) \cdot \Delta t\right]}$$
(6-45)

e o parâmetro  $\lambda_s$  é dado por:

$$\lambda_{s} = \frac{r_{s}}{(S_{c}) \cdot \left[\frac{(1 + \rho_{s} \cdot k_{d1})}{\varepsilon_{s}}\right]}$$
(6-46)

- $\lambda_{w}$ : débito constante de remoção devido à meteoração, (d⁻¹)
- $\lambda_s$ : débito constante de remoção de contaminante, (d⁻¹)
- r_s: infiltração na linha de água, (m/d)
- S_c: profundidade da camada de solo superficial contaminada, (m)
- $\epsilon_s$ : porosidade do solo, (-)
- k_{d1}: coeficiente de distribuição no solo, (ml/g)
- C_i: concentração de RDN no solo referente ao ano anterior, (Bq/m²)
- $\rho_s$ : densidade do solo, (g/cm³)
- t: tempo decorrido após a contaminação, (d).

Uma das trajectórias de exposição do modelo é a absorção dos RDN através das raízes dos vegetais. Os RDN são absorvidos pelas raízes das plantas sendo posteriormente ingeridos pelos animais. A densidade das raízes é variável com a profundidade de acordo com a camada em que se encontram inseridas: camada de solo activa (1); de topo (2) e de fundo (3), e pode ser quantificada por um factor de correcção estimado pela seguinte expressão (Hung, 2000):

$$\mathsf{RT} = \frac{\mathsf{c}_1 \cdot \mathsf{q}_1 \cdot \mathsf{e}_1 + \mathsf{c}_2 \cdot \mathsf{q}_2 \cdot \mathsf{e}_2 + \mathsf{c}_3 \cdot \mathsf{q}_3 \cdot \mathsf{e}_3}{\mathsf{c}_1 \cdot (\mathsf{q}_1 \cdot \mathsf{e}_1 + \mathsf{q}_2 \cdot \mathsf{e}_2 + \mathsf{q}_3 \cdot \mathsf{e}_3)}$$
(6-47)

- c: concentração do RDN na camada de solo (Bq/m³)
- e: espessura da camada, (m)

e as variáveis  $q_1$ ,  $q_2$  e  $q_3$ , resultam de:

$$\mathbf{q}_{1} = \int_{\mathbf{e}_{1}}^{0} \mathbf{y} \cdot \mathbf{e}^{(-\alpha \mathbf{y})} d\mathbf{y}$$
 (6-48)

$$q_{2} = \int_{e_{1}}^{e_{1}+e_{2}} y \cdot e^{(-\alpha y)} dy$$
 (6-49)

$$q_3 = \int_{e_1 + e_2}^{e_1 + e_2 + e_3} y \cdot e^{(-\alpha y)} dy$$
(6-50)

em que y representa a profundidade em metros e  $\alpha$  a constante de densidade das raízes (m⁻¹) que representa uma constante dividida pela distância das raízes ao caule.

A concentração na vegetação deve ser multiplicada pelo factor de correcção para quantificar a distribuição não-uniforme das raízes.

A expressão (6-43) é usada no cálculo da concentração dos RDN nos produtos agrícolas e nos vegetais com folhas consumidos pelos humanos. Também é usada no cálculo da concentração de RDN na ração animal (erva de pasto e produtos armazenados) consumidos pelos animais.

A concentração de cada RDN na ração animal pode ser estimada através da seguinte expressão (Hung, 2000):

$$\mathbf{C}_{\mathsf{RA}} = \mathbf{f}_{\mathsf{p}} \cdot \mathbf{f}_{\mathsf{s}} \cdot \mathbf{C}_{\mathsf{pa}} + (1 - \mathbf{f}_{\mathsf{p}} \cdot \mathbf{f}_{\mathsf{s}}) \cdot \mathbf{C}_{\mathsf{sa}}$$
(6-51)

em que a concentração de RDN na erva de pasto (C_{pa}) é dada por (t_c = 0 dias):

$$C_{pa} = \left[ d_{d} \cdot f_{ar} \frac{\left[ 1 - e^{(-\lambda_{e} \cdot t_{e})} \right]}{\left( Y \cdot \lambda_{e} \right)} + \left( \frac{FT \cdot C_{s}}{\rho_{e}} \right) \right] \cdot RT$$
(6-52)

e a concentração de RDN nos produtos armazenados contaminados ( $C_{sa}$ ) é dada por ( $t_c$  = 90 dias):

$$C_{sa} = \left[ d_{d} \cdot f_{ar} \frac{\left[ 1 - e^{(-\lambda_{e} \cdot t_{e})} \right]}{\left( Y \cdot \lambda_{e} \right)} + \left( \frac{FT \cdot C_{s}}{\rho_{e}} \right) e^{(-90 \cdot \lambda_{d})} \right] \cdot RT$$
(6-53)

- C_{RA}: concentração de RDN na alimentação dos animais, (Bq/kg)
- $C_{pa}$ : concentração de RDN na erva de pasto ( $C_{VA}$  quando  $t_c = 0$  dias), (Bq/kg)
- $C_{sa}$ : concentração de RDN nos produtos agrícolas armazenados ( $C_{VA}$  quando  $t_c = 90$  dias), (Bq/kg)
- f_p: fracção do ano que os animais permanecem no pasto, (-);
- f_s: fracção da alimentação diária composta pela erva de pasto, (-);
- 90: intervalo de tempo entre a colheita e o consumo (equivalente a t_c), (d).

#### 6.9.5.2 Transferência dos RDN pela água de irrigação

A concentração de RDN nos diferentes tipos de alimentos devido à irrigação com água contaminada é estimada através das mesmas expressões usadas para a deposição atmosférica com algumas alterações.

A concentração de RDN nos vegetais devido à irrigação ( $C_{VI}$ ) é calculada através da expressão (6-43) ( $C_{VA}$ ) mas com um novo valor para a fracção de retenção ( $f_{ag}$ ) uma vez que este parâmetro representa a fracção de actividade retida através da água de irrigação. O segundo termo da expressão (6-43) ( $C_{VA}$ ) é modificado pela fracção do ano durante a qual ocorre irrigação ( $I_p$ ) e o período de tempo em que os vegetais são expostos à contaminação, durante a época de crescimento, ( $t_e$ ) é substituído pelo tempo de irrigação ( $t_i$ ) expresso em horas. As expressões (6-52) ( $C_{pa}$ ) e (6-53) ( $C_{sa}$ ) são recalculadas a partir de  $C_{VI}$ , designadas agora por  $C_{pi}$  e  $C_{si}$ , quando  $t_c$ = 0 dias e  $t_c$  = 90 dias, respectivamente. O fluxo de deposição (d_d) apresentado na expressão de cálculo do fluxo de deposição atmosférica, é transformado num fluxo de irrigação para o cálculo da concentração na vegetação devido à irrigação (Hung, 2000):

$$I_{rw} = C_w \cdot IR_r$$
 (6-54)

$$C_{w} = \frac{C_{wp} \cdot L_{ig} + C_{as} \cdot S_{ig}}{1000}$$
(6-55)

A concentração de RDN na água de irrigação ( $C_w$ ) representa a média entre a concentração da água superficial (ex. água de um ribeiro) ( $C_{as}$ ) e a concentração da subterrânea (ex. água de um poço) ( $C_{wp}$ ) ponderada pela quantificação do seu uso para irrigação, ( $S_{ig}$  e  $L_{ig}$ , respectivamente).

 $I_{rw}$ : fluxo de deposição com origem na água de irrigação contaminada, (Bq.m⁻².d⁻¹)  $C_{wp}$ : concentração na água subterrânea (água de um poço), (Bq/m³)

C_{as}: concentração na água superficial (ribeiro), (Bq/m³)

L_{ig}: fracção da água de irrigação com origem na água subterrânea, (-)

S_{ig}: fracção da água de irrigação com origem na água superficial, (-)

1000: factor de conversão de unidades de 1 m³ = 1000 L ( $C_{wp}$ ,  $C_{as}$  Bq/m³).

A expressão modificada para o cálculo da concentração nos vegetais, para consumo dos humanos, com origem na água de irrigação é expressa por (Hung, 2000):

$$\mathbf{C}_{\mathsf{VI}} = \left[ \mathbf{I}_{\mathsf{rw}} \cdot \mathbf{f}_{\mathsf{ag}} \frac{\left[ \mathbf{1} - \mathbf{e}^{(-\lambda_{\mathsf{e}} \cdot \mathbf{t}_{\mathsf{i}})} \right]}{\left(\mathsf{Y} \cdot \lambda_{\mathsf{e}}\right)} + \mathbf{I}_{\mathsf{p}} \cdot \left( \frac{\mathsf{FT} \cdot \mathbf{C}_{\mathsf{s}}}{\rho_{\mathsf{e}}} \right) \mathbf{e}^{(-\lambda_{\mathsf{d}} \cdot \mathbf{t}_{\mathsf{c}})} \right]$$
(6-56)

em que  $t_i$  representa o tempo de irrigação expresso em dias (dias de irrigação num ano) e que equivale ao tempo de exposição à contaminação ( $t_e$ ).

De igual modo, a concentração de RDN na ração animal com origem na água de irrigação é adaptada para:

$$\mathbf{C}_{\mathsf{RI}} = \mathbf{f}_{\mathsf{p}} \cdot \mathbf{f}_{\mathsf{s}} \cdot \mathbf{C}_{\mathsf{pi}} + (1 - \mathbf{f}_{\mathsf{p}} \cdot \mathbf{f}_{\mathsf{s}}) \cdot \mathbf{C}_{\mathsf{si}}$$
(6-57)

A concentração de RDN na erva de pasto  $(C_{pi})$  com origem na água de irrigação, é dada por:

$$C_{pi} = \left[ I_{rw} \cdot f_{ag} \frac{\left[ 1 - e^{(-\lambda_{e} \cdot t_{i})} \right]}{\left( Y \cdot \lambda_{e} \right)} + I_{p} \cdot \left( \frac{FT \cdot C_{s}}{\rho_{e}} \right) \right] \cdot RT$$
(6-58)

E a concentração de RDN nos produtos armazenados (e contaminados), C_{si}, com origem na água de irrigação, é dada por:

$$\mathbf{C}_{si} = \left[ \mathbf{I}_{rw} \cdot \mathbf{f}_{ag} \frac{\left[ \mathbf{1} - \mathbf{e}^{(-\lambda_{e} \cdot t_{i})} \right]}{\left( \mathbf{Y} \cdot \lambda_{e} \right)} + \mathbf{I}_{p} \cdot \left( \frac{\mathbf{FT} \cdot \mathbf{C}_{s}}{\rho_{e}} \right) \mathbf{e}^{(-90 \cdot \lambda_{d})} \right] \cdot \mathbf{RT}$$
(6-59)

A concentração total na vegetação, quer devido à deposição atmosférica, quer devido à água de irrigação é dada por:

 $\mathbf{C}_{\mathsf{V}} = \mathbf{C}_{\mathsf{V}\mathsf{A}} + \mathbf{C}_{\mathsf{V}\mathsf{I}} \tag{6-60}$ 

#### 6.9.5.3 Discussão

As diferentes trajectórias de contaminação da vegetação podem ser descritas pelas expressões apresentadas. A maior ou menor complexidade do sistema soloplanta vai depender da situação em particular à qual se pretende aplicar o modelo. É possível efectuar algumas simplificações, se for possível desprezar algumas das trajectórias de transferência dos RDN para a vegetação.

As várias abordagens apresentadas baseiam-se em expressões similares, sendo quase indiferente a aplicação de uma ou de outra. No entanto, deve-se optar pelas expressões que exigem mais parâmetros específicos do local, no caso de haver informação específica, ou na ausência desta, as expressões que exijam a menor quantidade de parâmetros locais para diminuir as diversas incertezas inerentes à falta de dados ou à adaptação dos mesmos.

### 6.10 Exploração do modelo de transferência para a vegetação

O modelo de transferência dos radionuclídeos (RDN) para a cadeia alimentar através das plantas ou da vegetação, deverá incluir todas as contribuições possíveis para a quantificação da concentração da actividade total de RDN nas plantas. As contribuições podem ter origem em 2 trajectórias principais: a deposição atmosférica de partículas contaminadas e a irrigação com água contaminada. Podemos ainda considerar dois cenários diferentes no nosso exemplo paradigmático: a vegetação existente sobre o local contaminado e a vegetação existente nas proximidades do local de deposição do resíduo.

No 1.º caso, a vegetação presente será constituída essencialmente por árvores (pinheiros, eucaliptos, etc.) e arbustos (giestas) e neste cenário só vai estar presente a contribuição da deposição atmosférica, sendo nula a irrigação do local. No entanto, podemos ainda considerar a contribuição da precipitação e as escorrências, que poderão lixiviar o resíduo e mobilizar os contaminantes até às raízes. No 2.º caso, a vegetação nas proximidades do local de deposição dos resíduos vai ser constituída por produtos agrícolas de hortas ou de pequenas quintas que aí possam existir. Neste cenário vamos ter presentes ambas as contribuições da contaminação: a deposição atmosférica e a irrigação do local com água contaminada, que pode ter origem num poço vizinho, por exemplo.

O tipo de vegetação vai diferir consoante o local considerado. No 1.º caso, apesar das espécies envolvidas não estarem directamente relacionadas com a cadeia alimentar, é possível obter dados e informações importantes acerca dos níveis de concentração e de transferência dos RDN do resíduo para a vegetação. No 2.º caso, este tipo de vegetação vai constituir uma entrada típica na cadeia alimentar através da ingestão dos produtos hortícolas.

#### 6.10.1 Exploração do modelo para um caso teórico

Numa primeira abordagem podemos simular o modelo considerando todas as contribuições possíveis traduzidas pelas expressões C_{ad}, C_{rd}, C_{di}, C_{dd}, C_{ai}, C_{ri}, descritas anteriormente, independentemente do tipo de vegetação em causa. Desta forma, há que considerar a contribuição da deposição foliar, a absorção pelas raízes e a ressuspensão das partículas com origem na concentração de RDN no ar (ao nível médio do solo) e com origem na água contaminada. Os valores de entrada para a simulação de um caso genérico encontram-se na Tabela 6-13.

Parâmetro	Valores
$\rho_{e}$ (kg.m ⁻² )	240
C _{as} (Bq.m ⁻³ )	0,02
C _{so} (Bq.kg ⁻¹ )	0,174
C _{wp} (Bq.m ⁻³ )	84,02
f _{ag} (-)	0,25
f _{ar} (-)	0,42
FT (Bq/kg de planta)/(Bq/kg de solo)	0,015
I _p (-)	0,25
$IR_{r}(L.m^{-2}.d^{-1})$	3,62
L _{ig} (-)	0,1
M _{LF} (kg de solo/kg de planta)	0,21
R _{e1} (m ⁻¹ )	10 ⁻³
$R_{e2} (m^{-1})$	10 ⁻⁸
S _{ig} (-)	0,1
T (d)	365
T _r (-)	1
t _b (d)	10 950
t _e (d)	45
t _w (d)	14
$V_{d}$ (m.d ⁻¹ )	172,8
Y (kg.m ⁻² )	1,65

Tabela 6-13: Dados iniciais para a simulação da transferência dos RDN para a vegetação.

Os RDN transferidos pela deposição atmosférica e pela absorção das raízes podem variar consoante a via de transferência: no 1.º caso podemos ter a presença de Rn, U, Th, e Ra, e no 2.º caso a presença de Ra, Pb e U. As constantes de decaimento radioactivo destes RDN encontram-se na Tabela 6-14 e também constituem uma entrada no modelo, bem como os valores da constante de remoção de RDN da planta ( $\lambda_e$ ) e do solo ( $\lambda_b$ ), calculados a partir da constante de decaimento radioactivo ( $\lambda_d$ ).

RDN	λ _d (d ⁻¹ )	λ _e (d ⁻¹ )	λ _b (d⁻¹)
²³⁸ U	4,21 x 10 ⁻¹³	0,0495	2,7 x 10⁻⁵
²³⁴ Th	2,88 x 10 ⁻²	0,0783	0,0288
²³⁴ U	7,06 x 10 ⁻⁹	0,0495	2,70 x 10 ⁻⁵
²³⁰ Th	2,29 x 10 ⁻⁸	0,0495	2,70 x 10 ⁻⁵
²²⁶ Ra	1,17 x 10 ⁻⁶	0,0495	2,83 x 10 ⁻⁵
²²² Rn	1,81 x 10⁻¹	0,2305	0,181
²¹⁴ Pb	37,2	37,25	37,2
²¹⁰ Pb	8,63 x 10 ⁻⁵	0,0496	1,13 x 10 ⁻⁴

Tabela 6-14: Constante de decaimento radioactivo ( $\lambda_d$ ), constante de remoção da planta ( $\lambda_e$ ) e constante de remoção do solo ( $\lambda_b$ ) para os respectivos RDN.

Como saída devemos obter as concentrações parciais relativamente a cada uma das contribuições possíveis e a concentração total na planta (Bq/kg). Os parâmetros intermédios calculados para obter a concentração segundo a via de transferência, e posteriormente a concentração total na planta, são os seguintes:

Tabela 6-15: Parâmetros intermédios para a estimativa da concentração na vegetação.

Parâmetros	Valores
<b>C</b> _{ar} (Bq.m ⁻³ )	2,38 x 10 ⁻³
<b>C</b> _s (Bq.m ⁻² )	41,76
<b>C</b> _w (Bq.L ⁻¹ )	8,40 x 10 ⁻³
<b>d</b> _d (Bq.m ⁻² .s ⁻¹ )	0,411
$R_{e}(m^{-1})$	5,70 x 10 ⁻⁵

Considerou-se que a concentração no solo superficial ( $C_s$ ) é igual para todos os RDN. Os valores obtidos encontram-se representados na Tabela 6-16.

Bq/kg	²³⁸ U	²³⁴ Th	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²²² Rn	²¹⁴ Pb	²¹⁰ Pb
C _{ad}	2,61 x 10 ⁻³							
C _{dd}	1,89	1,30	1,89	1,89	1,89	4,53 x 10 ⁻¹	2,81 x 10 ⁻³	1,88
Crd	3,65 x 10 ⁻²							
C _{ai}	4,51 x 10 ⁻³	1,65 x 10 ⁻⁵	4,51 x 10 ⁻³	4,51 x 10 ⁻³	4,48 x 10 ⁻³	2,62 x 10 ⁻⁶	1,28 x 10 ⁻⁸	2,98 x 10 ⁻³
C _{di}	2,08 x 10 ⁻²	1,43 x 10 ⁻²	2,08 x 10 ⁻²	2,08 x 10 ⁻²	2,08 x 10 ⁻²	4,99 x 10 ⁻³	3,09 x 10 ⁻⁵	2,07 x 10 ⁻²
C _{ri}	6,31 x 10 ⁻²	2,31 x 10 ⁻⁴	6,31 x 10 ⁻²	6,31 x 10 ⁻²	6,27 x 10 ⁻²	3,67 x 10 ⁻⁵	1,79 x 10 ⁻⁷	4,18 x 10 ⁻²
C _{pl}	2,01	1,35	2,01	2,01	2,01	4,98 x 10 ⁻¹	4,20 x 10 ⁻²	1,99

Tabela 6-16: Concentração na vegetação por via de transferência (Cad, Cdd, Crd, Cai, Cdi, Cri).

A Figura 6-15 traduz a representação destes valores onde se pode identificar quais as vias de transferência mais significativas para as plantas. Neste caso, a via mais importante é a deposição atmosférica que origina a contribuição mais elevada para as plantas ( $C_{dd}$ ) igualmente para todos os RDN.



Figura 6-15: Concentração na vegetação por via de transferência (Cad, Cdd, Cdd, Cai, Cdi, Cdi, Cri).

Na Figura 6-16 representa-se a concentração total na vegetação para cada RDN considerado na transferência.



Figura 6-16: Concentração total na vegetação (Cpl), (Bq/kg).

Para o caso particular em que a água de irrigação é a fonte de contaminação, os dados de entrada a adicionar aos anteriores e os parâmetros intermédios a calcular de acordo com as expressões que definem  $C_{pd}$  (6-39) e  $C_{pr}$  (6-41), encontram-se na Tabela 6-17 e na Tabela 6-18.

A concentração no solo superficial é calculada a partir da concentração na água de irrigação. Os valores da Tabela 6-17 foram deduzidos em função do valor para a fracção de intercepção no ar (f_{ar}) igual a 0,42 (DOE, 1999).

Se considerarmos que a biomassa (Y) igual a 1,65 kg/m² (peso húmido) e pressupondo que cerca de 89,9 % deste peso é constituído por água, então a biomassa expressa em peso seco pode ser estimada da seguinte forma: Y = (1 - 0,899) x 1,65 = (0,101 x 1,65) = 0,167 kg/m² (peso seco).

O valor do coeficiente de retenção ou de absorção *a* foi deduzido em função do valor recomendado para  $f_{ar}$  (0,42) através da expressão:  $f_{ar} = 1 - e^{(-a.Y)}$ .

Parâmetros	Valores
a (m²/kg), peso seco	3,25
D _q (-)	0,101 ⁴
Y (kg/m², peso seco	1,65

Tabela 6-17: Dados de entrada para a estimativa da fracção de intercepção no ar (f_{ar}).

Tabela 6-18: Dados de entrada para a estimativa da transferência de RDN através da irrigação.

RDN	C _s (Bq.kg ^{-'} )	C _{ar} (Bq.m ^{-s} )	d _d (Bq.m ⁻² .d ⁻¹ )
²³⁸ U	1,3682	7,79 x 10⁻⁵	0,0135
²³⁴ Th	0,7699	4,37 x 10 ⁻⁵	0,0075
²³⁴ U	1,3682	7,79 x 10 ⁻⁵	0,0135
²³⁰ Th	1,3682	7,79 x 10 ⁻⁵	0,0135
²²⁶ Ra	1,3682	7,79 x 10 ⁻⁵	0,0135
²²² Rn	0,1680	9,57 x 10 ⁻⁶	0,0017
²¹⁴ Pb	1,3655	7,78 x 10⁻⁵	0,0134
²¹⁰ Pb	0,0082	4,66 x 10 ⁻⁶	8,048 x 10 ⁻⁵

Os valores obtidos para a concentração na vegetação com origem na irrigação, segundo cada via de transferência encontram-se na Tabela 6-19.

Tabela 6-19: Concentração na vegetação devido à irrigação, (Bq/kg).

Bq/kg	²³⁸ U	²³⁴ Th	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²²² Rn	²¹⁴ Pb	²¹⁰ Pb
C _{pd}	5,78 x 10 ⁻²	2,67 x 10 ⁻²	5,78 x 10 ⁻²	5,78 x 10 ⁻²	5,78 x 10 ⁻²	4,8 x 10 ⁻³	2,17 x 10 ⁻⁵	5,76 x 10 ⁻²
C _{pr}	8,55 x 10 ⁻⁵	4,80 x 10 ⁻⁵	8,55 x 10 ⁻⁵	8,55 x 10 ⁻⁵	8,55 x 10 ⁻⁵	1,05 x 10 ⁻⁵	5,11 x 10 ⁻⁸	8,53 x 10 ⁻⁵
Cp	5,79 x 10 ⁻²	2,67 x 10 ⁻²	5,79 x 10 ⁻²	5,79 x 10 ⁻²	5,79 x 10 ⁻²	4,79 x 10 ⁻³	2,17 x 10 ⁻⁵	5,77 x 10 ⁻²

Com excepção do ²²²Rn e do ²¹⁴Pb, verifica-se que a concentração total na planta é da mesma ordem de grandeza para os restantes RDN. No entanto, é muito

⁴ Significa que 89,9 % do peso húmido da biomassa é água, logo o peso seco é igual a (100 - 89,9) % = 10,1 % desse valor.

pequena para estes dois RDN o que pode significar que a sua transferência pela água de irrigação contaminada é desprezável. Na Figura 6-17 estão representados os valores obtidos na Tabela 6-19.



Figura 6-17: Concentração na vegetação (C_{pd} e C_{pr}) com origem na água de irrigação, (Bq/kg).

A concentração total de cada RDN encontra-se representada na Figura 6-18.



Figura 6-18: Concentração total na vegetação (C_p) com origem na água de irrigação, (Bq/kg).

Neste caso, a concentração no solo superficial ( $C_s$ ) é calculada através da concentração na água de irrigação e o valor refere-se à contaminação introduzida apenas pela água de irrigação contaminada. Este caso particular ( $C_{pr} + C_{pd}$ ) apenas contempla as contribuições descritas pelas expressões (6-27), (6-28) e (6-33) com a respectiva correspondência:  $C_{ad}$  ( $C_{pr}$ ),  $C_{dd}$ ,  $C_{di}$  ( $C_{pd} = C_{dd} + C_{di}$ ), o que pode ser considerado como um possível cenário de exposição do modelo global considerando apenas estas trajectórias de contaminação. A contaminação no solo superficial, e a

consequente concentração, tem origem na irrigação com água contaminada o que representa um valor bastante inferior ao que seria de esperar se a fonte de contaminação fosse o solo.

No caso da transferência solo/planta descrita pelas expressões  $C_{VA}$  (6-43),  $C_{VI}$  (6-56),  $C_{RA}$  (6-51) e  $C_{RI}$  (6-57) para estimar a concentração total na vegetação ( $C_V$  – vegetais;  $C_R$  – ração animal) os dados de entrada necessários (além dos já mencionados) encontram-se na tabela seguinte. Relativamente ao parâmetro  $K_{d1}$  (coeficiente de distribuição do RDN no solo), considerou-se os valores descritos na bibliografia (Yu et al. 1993), (Hung, 2000).

Tabela 6-20: Dados de entrada para estimar a concentração total na vegetação transferida pela deposição atmosférica e pela água de irrigação contaminada.

Parâmetros	Valores
ε (-)	0,39
ρ _s (g.cm ⁻³ )	1,6
f _p (-)	1
f _s (-)	0,83
k _{d1} ( ²³⁸ U) (ml.g ⁻¹ )	50
k _{d1} ( ²³⁴ Th) (ml.g ⁻¹ )	6000
k _{d1} ( ²³⁴ U) (ml.g ⁻¹ )	50
k _{d1} ( ²³⁰ Th) (ml.g ⁻¹ )	6000
k _{d1} ( ²²⁶ Ra) (ml.g ⁻¹ )	70
k _{d1} ( ²²² Rn) (ml.g ⁻¹ )	não aplicável
k _{d1} ( ²¹⁴ Pb) (ml.g ⁻¹ )	100
k _{d1} ( ²¹⁰ Pb) (ml.g ⁻¹ )	100
L _{ig} (-)	0,1
r _s (m.d ⁻¹ )	0,00362
RT (-)	1
S _c (m)	0,15
S _{ig} (-)	0,1
t _c (d)	90
t _i (d)	45

Os resultados obtidos nesta simulação, segundo cada via de transferência e para cada RDN, encontram-se representados na Tabela 6-21 e na Figura 6-19.

Bq/kg	²³⁸ U	²³⁴ Th	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²²² Rn	²¹⁴ Pb	²¹⁰ Pb
Cva	1,89	1,30	1,89	1,89	1,89	4,54 x 10⁻¹	2,81 x 10 ⁻³	1,88
C _{vi}	8,31 x 10 ⁻²	5,72 x 10 ⁻²	8,31 x 10 ⁻²	8,31 x 10 ⁻²	8,31 x 10 ⁻²	2,0 x 10 ⁻²	1,24 x 10 ⁻⁴	8,3 x 10 ⁻²
C _{RA}	1,89	1,30	1,89	1,89	1,89	4,54 x 10 ⁻¹	2,81 x 10 ⁻³	1,88
C _{RI}	8,31 x 10 ⁻²	5,72 x 10 ⁻²	8,31 x 10 ⁻²	8,31 x 10 ⁻²	8,31 x 10 ⁻²	2,0 x 10 ⁻²	1,26 x 10 ⁻⁴	8,3 x 10 ⁻²
Cv	1,97	1,35	1,97	1,97	1,97	4,74 x 10 ⁻¹	2,93 x 10 ⁻³	1,97
C _R	1,97	1,35	1,97	1,97	1,97	4,74 x 10 ⁻¹	2,94 x 10 ⁻³	1,97

Tabela 6-21: Concentração na planta por via de transferência (C_{VA}, C_{VI}, C_{RA}, C_{RI}, C_V, C_{VR}).



Figura 6-19: Concentração na vegetação por via de transferência (C_{VA}, C_{VI}, C_{RA}, C_{RI}, C_V, C_R).

A Figura 6-20 representa a concentração total na vegetação ( $C_V$  ou  $C_R$ ) para cada RDN.



Figura 6-20: Concentração total na vegetação ( $C_V$  ou  $C_R$ ), (Bq/kg).

As expressões que descrevem o cálculo de  $C_V$  e de  $C_R$  são equivalentes às expressões que compõem o cálculo de  $C_{pl}$  (6-26) desprezando a contribuição da ressuspensão, quer com origem no solo quer com origem na água de irrigação (assim

como a subsequente deposição na vegetação). Então podemos concluir que  $C_{ad} + C_{dd}$ +  $C_{ai} + C_{di} = C_V$ .

#### 6.10.2 Cálculo dos factores de transferência

A exploração pode ser dirigida, quer para o tipo de plantas com os respectivos FT, quer para o cenário a considerar com as possíveis vias de transferência.

Considerou-se que a fonte de contaminação é constituída pelos resíduos sólidos, que resultaram da exploração e da beneficiação do minério de urânio, acumulados na escombreira da mina da Urgeiriça. De acordo com o que foi considerado nos modelos anteriores, a fonte de contaminação é constituída por 4 zonas com diferentes características (dimensão, actividade, tipo de vegetação, etc.).

Consideramos que neste cenário, a vegetação presente é constituída por pinheiros, eucaliptos e alguns arbustos (giestas) devendo ser usados os respectivos factores de transferência para o cálculo da concentração total de RDN. Assume-se ainda que a via de transferência através da irrigação é inexistente.

Madruga et al. (2001) efectuou um estudo para determinar a biodisponibilidade do rádio para absorção pela vegetação nas diferentes zonas deste local. Este estudo consistiu na recolha de amostras do resíduo e da vegetação existente sobre o local de deposição do resíduo (escombreira) para determinar a transferência do rádio do resíduo para a vegetação. Foram também colhidas amostras dos solos e de plantas que serviram de base de referência, dentro da área envolvente a cerca de 1 km da escombreira. Foi ainda quantificada a fracção disponível de Ra (rádio trocável) para absorção pela vegetação e calculados os factores de transferência, FT, com base na fracção de rádio trocável. Os cálculos foram descriminados segundo cada um dos locais de amostragem.

Para estudar a tendência da absorção do rádio do resíduo pela vegetação, em função da sua concentração no solo (resíduo), foram feitas análises de regressão linear com o logaritmo da concentração na planta (Bq/g, peso seco) *versus* o logaritmo da concentração no resíduo (Bq/g, peso seco). Os dados relativos aos pinheiros foram ajustados a uma função da forma (Madruga et al., 2001):

$$C_p = a \cdot C_s^b$$
 ou  $\log C_p = \log a + b \cdot \log C_s$  (6-61)

A relação obtida com os dados experimentais (logaritmo da concentração na planta e o logaritmo da concentração no resíduo) para os coeficientes *a* e *b* foi a seguinte:  $a = 0,074 \pm 0,025$  e  $b = 0,675 \pm 0,098$  com um coeficiente de correlação de 0,77 para as raízes e  $a = 0,036 \pm 0,009$  e  $b = 0,365 \pm 0,088$  um coeficiente de correlação 0,57 para as agulhas (Madruga et al., 2001). As variações possíveis destes parâmetros estão representadas Figura 6-21 e na Figura 6-22.



Figura 6-21: Concentração de rádio nos pinheiros (raízes) vs concentração no resíduo.





A concentração no resíduo foi considerada constante e refere-se apenas ao rádio. Fez-se variar a concentração nas plantas de acordo com os coeficientes <u>a</u> e <u>b</u>, dando origem a 4 séries de valores diferentes. O FT solo/planta pode ser calculado para cada uma destas séries pelo quociente entre a concentração na planta ( $C_p$ ) e a concentração no resíduo ou no solo ( $C_s$ ). As figuras seguintes evidenciam o FT para as raízes e para as agulhas dos pinheiros, respectivamente, calculados pelo quociente directo entre  $C_p$  e  $C_s$ .



Figura 6-23: FT_{pinheiros (raízes)} vs concentração de rádio no resíduo, (Bq/g).



Figura 6-24: FT_{pinheiros (agulhas)} vs concentração de rádio no resíduo, (Bq/g).

A observação da Figura 6-23 e da Figura 6-24 indica que a absorção das plantas em função da concentração total de rádio no resíduo traduz uma função não linear, tendendo contudo, para uma função linear na presença de elevadas concentrações de rádio. Os FT diminuem para baixas concentrações de rádio no resíduo (< 5 Bq/g) e parecem constantes para concentrações de rádio superiores a este valor.

Em Madruga et al. (2001) os dados experimentais foram ajustados tendo em consideração a dependência hiperbólica da concentração do rádio na planta com a concentração de rádio no substrato ( $C_p = a.C_s^b$ ) e o factor de transferência do rádio

para a vegetação (FT =  $C_p/C_s$ ). Neste caso, a transferência do rádio existente no resíduo para os pinheiros é estimada pelas seguintes expressões de ajuste:

$$FT_{pinheiros(raízes)} = 0,074 \cdot C_{s}^{-0,32}$$
 (6-62)

$$FT_{pinheiros(aqu|has)} = 0.036 \cdot C_s^{-0.64}$$
 (6-63)

A mesma abordagem foi adoptada para a restante vegetação existente no local em estudo. As correlações obtidas por Madruga et al. (2001) a partir de dados experimentais para a concentração de rádio no resíduo com a concentração de rádio na vegetação (giestas - raízes e partes aéreas e eucaliptos - folhas) podem ser traduzidas, respectivamente, pelas seguintes expressões de ajuste:

$$FT_{giestas(raízes)} = 0.12 \cdot C_s^{0.24} (R = 0.94)$$
(6-64)

$$FT_{giestas(partes a { dereas})} = 0,06 \cdot C_s^{-0,56} (R = 0,91)$$
 (6-65)

$$FT_{eucaliptos(folhas)} = 0.12 \cdot C_{s}^{-0.66} (R = 0.38)$$
(6-66)

## 6.10.3 Cálculo do FT a partir da concentração no resíduo estimada teoricamente

Neste caso teórico, a actividade no resíduo foi estimada supondo o equilíbrio entre as séries radioactivas ²³⁵U e ²³⁸U fazendo variar o teor do minério que deu origem ao resíduo. Considerou-se um resíduo resultante do tratamento de um minério com teor médio igual a 1 kg/ton e lixiviado a 90 % e outro mais pobre com teor médio igual a 0,2 kg/ton e lixiviado a 100 %. Considerou-se ainda que no solo superficial (zona das raízes) existe cerca de 15 ppm da actividade existente no resíduo, estimada pela distribuição da actividade nos radioisótopos descrita no capítulo 2.

Sabendo a concentração de cada RDN no solo, o FT pode ser calculado para todos os RDN através da extrapolação das correlações enunciadas para o ²²⁶Ra tendo presente, no entanto, que as correlações são específicas do RDN, pois foram deduzidas com dados experimentais referentes a este RDN, o que é determinante para os resultados.

No caso dos pinheiros, os resultados obtidos para o resíduo resultante do tratamento do minério com teor igual a 1 kg/ton e lixiviado a 90 %, encontram-se representados na Tabela 6-22 e na Figura 6-25.

	RDN	C _r (Bq/g)	C _{s (15 ppm Cr )} (Bq/g)	FT (raízes)	FT _(agulhas)
23	³⁸ U	1,038	0,0156	0,280	0,517
23	³⁴ Th	1,038	0,0156	0,280	0,517
23	³⁴ U	1,038	0,0156	0,280	0,517
23	³⁰ Th	10,38	0,156	0,134	0,118
22	²⁶ Ra	10,38	0,156	0,134	0,118
22	²² Rn	10,38	0,156	0,134	0,118
21	¹⁴ Pb	10,38	0,156	0,134	0,118
21	¹⁰ Pb	10,38	0,156	0,134	0,118

Tabela 6-22: FT_{resíduo/pinheiros} (resíduo resultante do tratamento do minério com teor 1 kg/ton).





Para o caso em que o resíduo resulta do tratamento do minério com teor igual a 0,2 kg/ton e lixiviado a 100 %, os resultados encontram-se representados na Tabela 6-23 e na Figura 6-26.

RDN	C _r (Bq/g)	C _{s (15 ppm Cr )} (Bq/g)	FT (raízes)	FT _(agulhas)
²³⁸ U	0	0	0	0
²³⁴ Th	0	0	0	0
²³⁴ U	0	0	0	0
²³⁰ Th	2,075	0,031	0,225	0,332
²²⁶ Ra	2,075	0,031	0,225	0,332
²²² Rn	2,075	0,031	0,225	0,332
²¹⁴ Pb	2,075	0,0311	0,225	0,332
²¹⁰ Pb	2,075	0,0311	0,225	0,332

Tabela 6-23: FT_{resíduo/pinheiros} (resíduo resultante do tratamento do minério com teor 0,2 kg/ton).



Figura 6-26: FT_{resíduo/pinheiros} (resíduo com origem no minério com teor médio de 0,2 kg/ton).

Dentro da mesma espécie, verifica-se que o FT_{resíduo/raízes} e o FT_{resíduo/planta} são da mesma ordem de grandeza, o que pode levar a concluir que os RDN absorvidos pelas raízes são idênticos aos RDN translocados para as partes aéreas (Madruga et al., 2001). Outra curiosidade pode ser observada na Figura 6-25 que para concentrações mais baixas no solo, como é o caso do 238U, 234Th e do 234U, correspondem FT mais elevados. Isto vem permitir reforçar o que foi observado experimentalmente por Madruga et al. (2001) para o rádio: a absorção é superior para baixas concentrações no resíduo. Verifica-se ainda que para concentrações mais elevadas dos RDN no resíduo (como é o caso do ²³⁰Th, ²²⁶Ra, ²²²Rn, ²¹⁴Pb e ²¹⁰Pb) os FT para as raízes se aproximam bastante dos FT para as partes aéreas. Para concentrações inferiores no resíduo, os FT das raízes e das partes aéreas afastam-se, sendo o FT superior neste último caso. No caso dos arbustos, os resultados obtidos com a respectiva correlação para o resíduo com origem no minério de teor igual a 1 kg/ton encontram-se representados na Tabela 6-24 e na Figura 6-27 e para o resíduo com origem no minério de teor igual a 0,2 kg/ton encontram-se representados na Tabela 6-25 e Figura 6-28.

RDN	C _r (Bq/g)	C _{s (15 ppm Cr )} (Bq/g)	FT (raízes)	FT (partes aéreas)
²³⁸ U	1,038	0,0156	0,0442	0,617
²³⁴ Th	1,038	0,0156	0,0442	0,617
²³⁴ U	1,038	0,0156	0,0442	0,617
²³⁰ Th	10,38	0,156	0,0768	0,170
²²⁶ Ra	10,38	0,156	0,0768	0,170
²²² Rn	10,38	0,156	0,0768	0,170
²¹⁴ Pb	10,38	0,156	0,0768	0,170
²¹⁰ Pb	10,38	0,156	0,0768	0,170

Tabela 6-24: FT_{resíduo/giestas} (resíduo resultante do tratamento do minério com teor 1 kg/ton).



Figura 6-27: FT_{resíduo/giestas} (resíduo com origem no minério com teor médio de 1 kg/ton).

RDN	C _r (Bq/g)	C _{s (15 ppm Cr )} (Bq/g)	FT (raízes)	FT (partes aéreas)
²³⁸ U	0	0	0	0
²³⁴ Th	0	0	0	0
²³⁴ U	0	0	0	0
²³⁰ Th	2,075	0,031	0,0522	0,419
²²⁶ Ra	2,075	0,031	0,0522	0,419
²²² Rn	2,075	0,031	0,0522	0,419
²¹⁴ Pb	2,075	0,0311	0,0522	0,419
²¹⁰ Pb	2,075	0,0311	0,0522	0,419

Tabela 6-25:  $FT_{resíduo/giestas}$  (resíduo resultante do tratamento do minério com teor 0,2 kg/ton).



Figura 6-28: FT_{resíduo/giestas} (resíduo com origem no minério com teor médio de 0,2 kg/ton).

Para os eucaliptos (folhas) os resultados obtidos encontram-se Tabela 6-26 e na Figura 6-29 para o resíduo com origem no minério de teor igual a 1 kg/ton e na Tabela 6-27 e na Figura 6-30 para o resíduo com origem no minério de teor igual a 0,2 kg/ton.

RDN	RDN	C _r (Bq/g)	C _{s (15 ppm Cr )} (Bq/g)	FT (folhas)
²³⁸ U	²³⁸ U	1,038	0,0156	1,872
²³⁴ Th	²³⁴ Th	1,038	0,0156	1,872
²³⁴ U	²³⁴ U	1,038	0,0156	1,872
²³⁰ Th	²³⁰ Th	10,38	0,156	0,4095
²²⁶ Ra	²²⁶ Ra	10,38	0,156	0,4095
²²² Rn	²²² Rn	10,38	0,156	0,4095
²¹⁴ Pb	²¹⁴ Pb	10,38	0,156	0,4095
²¹⁰ Pb	²¹⁰ Pb	10,38	0,156	0,4095

Tabela 6-26:  $FT_{resíduo/eucaliptos}$  (resíduo resultante do tratamento do minério com teor 1 kg/ton).



Figura 6-29: FT_{resíduo/eucaliptos} (resíduo com origem no minério com teor médio de 1 kg/ton).

RDN	C _r (Bq/g)	C _{s (15 ppm Cr )} (Bq/g)	FT _(folhas)
²³⁸ U	0	0	0
²³⁴ Th	0	0	0
²³⁴ U	0	0	0
²³⁰ Th	2,075	0,031	1,185
²²⁶ Ra	2,075	0,031	1,185
²²² Rn	2,075	0,031	1,185
²¹⁴ Pb	2,075	0,0311	1,185
²¹⁰ Pb	2,075	0,0311	1,185

Tabela 6-27: FT_{resíduo/eucaliptos} (resíduo resultante do tratamento do minério com teor 0,2 kg/ton).



Figura 6-30: FT_{resíduo/eucaliptos} (resíduo com origem no minério com teor médio de 0,2 kg/ton).

No caso dos arbustos (giestas), os FT (rádio/raízes) aumentam com o aumento da concentração dos RDN no resíduo (Figura 6-27) o que é traduzido pelo parâmetro positivo da correlação obtida: FT =  $0,12.C_s^{0,24}$  (b = 0,24). A esta variação corresponde um aumento da absorção pela planta com o aumento da concentração de rádio no resíduo aproximando-se do valor de saturação. Também neste caso se verifica que os FT (raízes e partes aéreas) se diferenciam gradualmente para concentrações menores dos RDN no resíduo.

Neste caso de exploração considerou-se que a actividade de cada RDN é constante em toda a área considerada, não variando espacialmente. A diferente concentração estimada teoricamente para cada RDN no resíduo resultou do tratamento a que o minério foi submetido, consoante o seu teor inicial, o rendimento da lixiviação e a solubilidade de cada RDN.

## 6.10.4 Cálculo do FT a partir da concentração no resíduo determinada experimentalmente

A concentração de RDN na escombreira da mina da Urgeiriça é variável de local para local o que vai influenciar a absorção pela vegetação, e consequentemente o respectivo FT, dependente de inúmeros factores locais. Na exploração seguinte, é feita uma estimativa dos FT para cada local de amostragem e para a vegetação considerada. A concentração da actividade em rádio no resíduo foi determinada a partir da amostragem realizada pelo Instituto Tecnológico e Nuclear (ITN) e publicada em Reis et al. (2000).

Consideraram-se 4 locais de amostragem que designamos por B₁, B₂, B₃, B₄ e um local de referência. A actividade em rádio nas diferentes zonas é, respectivamente, 47 000 Bq/kg, 8000 Bq/kg, 8000 Bq/kg e 2000 Bq/kg (Reis et al., 2000).

De acordo com o cálculo teórico já referido anteriormente, é possível estimar a actividade para cada RDN pela distribuição da actividade por radioisótopo no resíduo. Desta forma, considerou-se que os resíduos dos locais referentes a B₁, B₂, B₃ resultaram do tratamento do minério sujeito a uma lixiviação com rendimento igual a 90 % e que o resíduo do local de amostragem B₄ resultou do tratamento do minério mais pobre, submetido a uma lixiviação com rendimento igual a 100 %. Assim, para os RDN solúveis (²³⁸U, ²³⁴Th, ²³⁴U) apenas 10 % da sua actividade estará presente no resíduo e para os RDN insolúveis toda a sua actividade estará presente no resíduo, no caso da lixiviação com rendimento igual a 90 %. No caso da lixiviação com rendimento igual a 100 %, os RDN solúveis foram completamente extraídos e não fazem parte do resíduo e os RDN insolúveis encontram-se também na sua totalidade no resíduo.

Adoptou-se esta metodologia para obter uma estimativa da actividade existente em cada zona para os restantes RDN da série radioactiva do ²³⁸U, uma vez que os valores da actividade publicados em Reis et al. (2000) apenas contemplam a concentração de ²²⁶Ra no resíduo.

RDN	B ₁ (Bq/kg)	B ₂ (Bq/kg)	B ₃ (Bq/kg)	B ₄ (Bq/kg)
²³⁸ U	4699,9	799	799	0
²³⁴ Th	4699,9	799	799	0
²³⁴ U	4699,9	799	799	0
²³⁰ Th	46999,4	7988,9	7988,9	2075
²²⁶ Ra	46999,4	7988,9	7988,9	2075
²²² Rn	46999,4	7988,9	7988,9	2075
²¹⁴ Pb	46999,4	7988,9	7988,9	2075

Tabela 6-28: Distribuição da actividade pelos radioisótopos no resíduo.

Adoptando o mesmo pressuposto anterior de que no solo existe cerca de 15 ppm da actividade do resíduo, a concentração no solo distribuída por RDN e por local de amostragem, passa a ser igual a ser 15 ppm dos valores da Tabela 6-28.

$\mathbf{C}_{\mathbf{s}}$	²³⁸ U	²³⁴ Th	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²²² Rn	²¹⁴ Pb	²¹⁰ Pb
<b>B</b> ₁	0,070	0,070	0,070	0,705	0,705	0,705	0,705	0,705
B ₂	0,012	0,012	0,012	0,120	0,120	0,120	0,120	0,120
$B_3$	0,012	0,012	0,012	0,120	0,120	0,120	0,120	0,120
$B_4$	0,000	0,000	0,000	0,031	0,031	0,031	0,031	0,031

Tabela 6-29: Actividade no resíduo por RDN e por local de amostragem, (Bq/g).

As figuras seguintes representam os FT para cada RDN de acordo com o tipo de vegetação considerada em cada local estudado. Apenas temos disponíveis os valores da concentração nos solos de referência para o ²²⁶Ra (Madruga et al., 2001) não sendo possível apresentar valores para os outros RDN. Os FT foram calculados com as correlações apresentadas por Madruga et al. (2001) para o ²²⁶Ra agora aplicadas a todos os RDN.



Figura 6-31: FT - RDN (fracção total)/pinheiros (raízes) por local de amostragem.



Figura 6-32: FT - RDN (fracção total)/pinheiros (agulhas) por local de amostragem.



Figura 6-33: FT - RDN (fracção total)/giestas (raízes) por local de amostragem.



Figura 6-34: FT - RDN (fracção total)/giestas (partes aéreas) por local de amostragem.



Figura 6-35: FT - RDN (fracção total)/eucaliptos (folhas) por local de amostragem.

Estes resultados tiveram por base a actividade total de cada RDN e não a fracção trocável ou disponível como seria mais adequado, uma vez que a concentração total não é a concentração disponível para absorção pela vegetação.

Em Madruga et al. (2001) encontram-se descritos alguns estudos experimentais para determinação da fracção de rádio trocável no resíduo da escombreira da mina Urgeiriça. Para a fracção de rádio trocável os valores obtidos são cerca de 20% inferiores ao rádio total.

Cs	²²⁶ Ra total	²²⁶ Ra trocável (20 % ²²⁶ Ra total)
<b>B</b> ₁	0,705	0,141
B ₂	0,120	0,024
B ₃	0,120	0,024
B ₄	0,031	0,006

Tabela 6-30: Actividade em rádio total e em rádio trocável, (Bq/g).

Os cálculos anteriores para a estimativa do FT foram refeitos em função do rádio trocável e os resultados obtidos encontram-se representados nas figuras seguintes.







Figura 6-37: FT - rádio (trocável)/giestas por local de amostragem.



Figura 6-38: FT - rádio (trocável)/eucaliptos por local de amostragem.

Da análise das estimativas para os FT verificam-se algumas diferenças na absorção dos RDN pela vegetação. Na realidade, estas considerações só podem ser válidas para o rádio, pois as correlações usadas referem-se a este RDN, tendo sido no entanto, extrapoladas aos restantes RDN por falta de dados experimentais.

Relativamente à variação do FT em função da concentração de rádio no resíduo, verifica-se que nos pinheiros e nos eucaliptos o seu valor aumenta para baixas concentrações de rádio ( $B_4$  é o local de menor concentração em rádio e é o que representa FT superiores).

No caso dos arbustos (Figura 6-37) os FT aumentam para elevadas concentrações de rádio apenas nas raízes, porque nas partes aéreas verifica-se precisamente o contrário, a elevadas concentrações correspondem baixos FT, o que pode levar a concluir que para elevadas concentrações de rádio, a translocação deste RDN para as partes aéreas é bastante menor.

A comparação dos FT entre os diferentes locais de amostragem revela dois grupos,  $B_1 - B_3 = B_4$ , cujo comportamento diferente pode ser imputado à diferente concentração em rádio existente nestes dois grupos: o grupo  $B_1 - B_3$  apresenta uma concentração mais elevada o que implica FT menores para estes locais de amostragem.

Os FT obtidos experimentalmente com o rádio trocável no solo são superiores em uma ordem de grandeza aos FT obtidos experimentalmente com o rádio total no solo (Tabela 6-31).

FT	Rádio _{Total}		Rádio _{Trocável}	-
Pinheiros	Raízes	Agulhas	Raízes	Agulhas
B ₁	0,04	0,01	0,6	0,05
B ₂	0,03	0,025	0,3	0,2
B ₃	0,04	0,015	0,5	0,15
B ₄	0,07	0,035	0,25	0,25
Arbustos	Raízes	P. Aéreas	Raízes	P. Aéreas
B ₁				
B ₂	0,2	0,2	1,5	1,3
B ₃	0,12	0,14	2	1
B ₄	0,12	0,14	0,7	0,45
Eucaliptos	Folhas		Folhas	
B ₁	0,03		0,2	
B ₂	0,07		0,25	
B ₃	0,03		0,8	
$B_4$				

Tabela 6-31: Comparação do FT_{resíduo/planta} obtido com a concentração total de rádio no resíduo e com a fracção trocável.

Os valores de FT estimados com a correlação obtida por Madruga et al. (2001) para a concentração de rádio total no solo ( $C_1 e C_2$  - rádio total) e para 20% desta concentração ( $C_3 e C_4$  - rádio trocável) de acordo com a representação da Tabela 6-32, não apresentam esta relação. No entanto, os valores de FT calculados com a fracção de rádio trocável são sempre superiores o que está de acordo com o verificado por Kalin & Sharma (1982) que para vegetação selvagem (ou espontânea), existente em locais com resíduos deste tipo, os FT aumentam ligeiramente quando calculados com base na fracção de rádio trocável. Os FT calculados com base na fracção trocável em rádio são superiores em cerca de 1 ordem de grandeza aos FT calculados com base no rádio total (Madruga et al., 2001).

FT	RádioTotal			RádioTrocável				
		C ₁ C ₂		C ₃		C ₄		
Pinheiros	Raízes	Agulhas	Raízes	Agulhas	Raízes	Agulhas	Raízes	Agulhas
B ₁	0,02	0,003	0,08	0,05	0,04	0,01	0,14	0,13
B ₂	0,04	0,01	0,15	0,14	0,06	0,03	0,24	0,39
B ₃	0,04	0,01	0,15	0,14	0,06	0,03	0,24	0,39
B ₄	0,06	0,02	0,22	0,33	0,10	0,06	0,38	0,93
Arbustos	Raízes	P. Aéreas	Raízes	P. Aéreas	Raízes	P. Aéreas	Raízes	P. Aéreas
B ₁	0,30	0,01	0,11	0,07				
B ₂	0,20	0,02	0,07	0,20	0,13	0,05	0,05	0,48
B ₃	0,20	0,02	0,07	0,20	0,13	0,05	0,05	0,48
B ₄	0,14	0,04	0,05	0,42	0,10	0,10	0,04	1,03
Eucaliptos		Folhas		Folhas		Folhas		Folhas
B ₁		0,01		0,15		0,03		0,44
B ₂		0,03		0,49		0,1		1,41
B ₃		0,03		0,49		0,1		1,41
B ₄		0,07		1,19				

Tabela 6-32: FT estimados com a correlação obtida para a concentração total de rádio no resíduo ( $C_1 e C_2$ ) e para 20 % desta concentração ( $C_3 e C_4$  - rádio trocável).

Comparamos ainda os FT médios obtidos experimentalmente por Madruga et al. (2001) para os mesmos locais (ITN – valores experimentais) com os FT calculados com a correlação para cada espécie considerando a concentração total de rádio no resíduo dada por Reis et al. (2000) (C_s (total) – concentração adoptada da bibliografia) e ainda com os FT calculados partindo do pressuposto que a concentração de rádio na zona das raízes é cerca de 15 ppm da concentração total do resíduo dada por Reis et al. (2000) (C_s (15 ppm) – 15 ppm da concentração adoptada da bibliografia), o que corresponde à concentração no solo superficial e não no resíduo. Os valores da concentração de rádio que serviram de base para o cálculo dos FT encontram-se representados na Tabela 6-33.

Local	C _r total (Bq/g)	C _s (15 ppm C _r ) (Bq/g)
<b>B</b> ₁	47,00	0,705
B ₂	7,99	0,120
B ₃	7,99	0,120

0,031

2,08

 $B_4$ 

Tabela 6-33: Concentração de rádio no resíduo.

Os FT determinados experimentalmente (Madruga et al., 2001) e os FT calculados para a concentração de rádio no resíduo (Reis et al., 2000) através da correlação deduzida, para cada espécie e em cada local de amostragem, encontramse nas tabelas seguintes seguidas da respectiva representação gráfica.

Tabela 6-34: FT_{resíduo/pinheiros}: ITN - valores experimentais, C_s(total) - concentração adoptada da bibliografia, C_s(15 ppm) - 15 ppm da concentração adoptada da bibliografia.

FT	Raízes	Agulhas	Raízes	Agulhas	Raízes	Agulhas
Pinheiros	ITN - R	ITN - A	C _{s(total)} - R	C _{s(total)} - A	C _{s(15 ppm)} - R	C _{s(15 ppm)} - A
B ₁	0,04	0,01	0,022	0,003	0,083	0,045
B ₂	0,03	0,025	0,038	0,010	0,146	0,140
B ₃	0,04	0,015	0,038	0,010	0,146	0,140
B ₄	0,07	0,035	0,059	0,023	0,225	0,332

Tabela 6-35: FT_{solo/arbustos}: ITN - valores experimentais, C_s(total) - concentração adoptada da bibliografia, C_s(15 ppm) - 15 ppm da concentração adoptada da bibliografia.

FT	Raízes	P. Aéreas	Raízes	P. Aéreas	Raízes	P. Aéreas
Arbustos	ITN - R	ITN - P	C _{s(total)} - R	C _{s(total)} - P	C _{s(15 ppm)} - R	C _{s(15 ppm)} - P
<b>B</b> ₁	0	0	0,302	0,007	0,110	0,073
B ₂	0,2	0,2	0,198	0,019	0,072	0,197
B ₃	0,12	0,14	0,198	0,019	0,072	0,197
B ₄	0,12	0,14	0,143	0,040	0,052	0,419

Tabela 6-36: FT_{solo/eucaliptos}: ITN - valores experimentais, C_s(total) - concentração no adoptada da bibliografia, C_s(15 ppm) - 15 ppm da concentração adoptada da bibliografia.

FT	Folhas	Folhas	Folhas
Eucaliptos	ITN - F	C _{s(total)} - F	C _{s(15 ppm)} - F
B ₁	0,03	0,009	0,151
B ₂	0,07	0,030	0,487
B ₃	0,03	0,030	0,487
B ₄	0	0,074	1,185



Figura 6-39: Comparação dos FT (pinheiros) obtidos experimentalmente com os FT estimados para diferentes concentrações de rádio no resíduo.



Figura 6-40: Comparação dos FT (arbustos) obtidos experimentalmente com os FT estimados para diferentes concentrações de rádio no resíduo.



Figura 6-41: Comparação dos FT (eucaliptos) obtidos experimentalmente com os FT estimados para diferentes concentrações de rádio no resíduo.

Verifica-se de uma forma geral, que os valores de FT estimados com base na concentração no resíduo apresentado por Reis et al. (2000) e não na concentração do solo superficial, 15 ppm do valor anterior, se aproximam bastante dos FT obtidos experimentalmente por Madruga et al. (2001). Isto pode significar que, pelo menos, nestes locais de amostragem, as raízes estarão abaixo da profundidade definida pelo solo superficial (15 cm), e estão inseridas no resíduo, o que seria de esperar, pois este tipo de vegetação apresenta um sistema radicular de comprimento superior a 15 cm. Também podemos deduzir que não há cobertura sobre o resíduo estando as raízes directamente fixas neste.

Através da correlação deduzida com os dados experimentais segundo cada espécie, podemos calcular a concentração na planta combinando o FT com a actividade dos RDN no resíduo. No caso dos pinheiros, e especificamente para as raízes (P_r) a expressão de cálculo da concentração de RDN (absorção) na vegetação resulta da substituição de FT pela correlação obtida na expressão que define o factor de transferência:

$$FT = C_{p} / C_{s}; C_{p} = (0.074 \cdot C_{s}^{-0.32}) \cdot C_{s}; C_{p} (P_{r}) = 0.074 \cdot C_{s}^{-0.68}$$
(6-67)

Da mesma forma, para as agulhas dos pinheiros ( $P_a$ ); para os arbustos, raízes ( $A_r$ ) e partes aéreas ( $A_a$ ); e para as folhas dos eucaliptos ( $E_f$ ), as expressões obtidas são, respectivamente:

$$C_{p}(P_{a}) = 0.036 \cdot C_{s}^{0.36}$$
 (6-68)

$$C_{\rm p}(A_{\rm r}) = 0.12 \cdot C_{\rm s}^{-1.24}$$
 (6-69)

$$C_{p}(A_{a}) = 0.06 \cdot C_{s}^{0.44}$$
 (6-70)

$$C_{p}(E_{f}) = 0.12 \cdot C_{s}^{0.34}$$
 (6-71)

Os valores de  $C_p$  e o respectivo FT para o rádio total e para o rádio trocável no resíduo (20 % do rádio total) calculados com estas expressões para cada uma das espécies, encontram-se nas tabelas seguintes.

0,03

0,04

0,065

0,08

Tabela 6-37: Concentração na vegetação, C_p, (Bq/g) calculada com a concentração no resíduo,  $C_s$  (Bq/g) e os respectivos FT para os pinheiros (raízes –  $P_r$  e agulhas –  $P_a$ ).

Pinheiros	²²⁶ Ra	(Bq/g)	Raízes			Agulhas				
	C _(total)	C _(trocável)	<b>C</b> _p ( <b>P</b> _r )	$C_p(P_r)$	FT	FT	$C_p(P_a)$	$C_p(P_a)$	FT	FT
<b>B</b> ₁	47	9,4	1,01	0,34	0,02	0,04	0,14	0,08	0,003	0,009
B ₂	8	1,6	0,30	0,10	0,04	0,06	0,08	0,04	0,010	0,027
B ₃	8	1,6	0,30	0,10	0,04	0,06	0,08	0,04	0,010	0,027
B ₄	2	0,4	0,12	0,04	0,06	0,10	0,05	0,03	0,023	0,065

Tabela 6-38: Concentração na vegetação, C_p, (Bq/g) calculada com a concentração no resíduo,

$C_s$ (Bq/g) e os respectivos FT para os albusios (raízes – $A_r$ e partes aereas – $A_a$ ).										
Arbustos	²²⁶ Ra	(Bq/g)	Raízes F				Partes aéreas			
	C _(total)	C _(trocável)	$C_p(A_r)$	$C_p (A_r)$	FT	FT	$C_p(A_a)$	C _p (A _a )	FT	FT
B ₁	47	9,4	14,21	0,34	0,30	0,04	0,33	0,08	0,01	0,009
B ₂	8	1,6	1,58	0,10	0,20	0,06	0,15	0,04	0,02	0,027
B ₃	8	1,6	1,58	0,10	0,20	0,06	0,15	0,04	0,02	0,027

C (Ba/a) a os respectivos ET para os arbustos (raízas – A a partes aáreas – A )

Tabela 6-39: Concentração na vegetação, C_p, (Bq/g) calculada com a concentração no resíduo,

0,14

0,10

0,04

2

 $B_4$ 

0,4

0,28

Eucaliptos	²²⁶ Ra	(Bq/g)	Folhas			-
	C _(total)	C _(trocável)	C _p (E _f )	С _р (Е _f )	FT	FT
B ₁	47	9,4	0,44	0,34	0,01	0,04
B ₂	8	1,6	0,24	0,10	0,03	0,06
B ₃	8	1,6	0,24	0,10	0,03	0,06
B ₄	2	0,4	0,15	0,04	0,08	0,10

 $C_s$  (Bq/g) e os respectivos FT para os eucaliptos (folhas –  $E_f$ ).

Optou-se pelo pior cenário relativamente ao valor mais elevado da concentração de rádio na vegetação, ou seja, a concentração na vegetação resultante do rádio total no resíduo. A figura seguinte representa a concentração na vegetação para cada espécie e em cada local de amostragem, segundo os valores Cp (Pr), Cp (P_a), C_p (A_r), C_p (A_a) C_p (E_f) das tabelas anteriores.



Figura 6-42: Concentração de rádio total na vegetação vs local de amostragem (B₁, B₂, B₃, B₄); C_p (Pr ): pinheiros (raízes); C_p (Pa): pinheiros (agulhas); C_p (Ar): arbustos (raízes); C_p (Aa): arbustos (partes aéreas); C_p (Ef): eucaliptos (folhas).

Da Figura 6-42 destaca-se a concentração dos arbustos (giestas - raízes) para B₁, sendo esta a espécie que apresenta maior tendência para a absorção do rádio.

Se compararmos estes valores estimados para a concentração nos pinheiros *versus* a concentração no resíduo com os dados para os mesmos parâmetros obtidos experimentalmente (Madruga et al., 2001), representados na Figura 6-23 (no caso das raízes) e na Figura 6-24 (no caso das agulhas), verifica-se que os valores (Tabela 6-37, Tabela 6-38 e Tabela 6-39) estão de acordo com os valores obtidos experimentalmente (referenciados por ITN), como se pode observar na tabela resumo seguinte.

			<b>`</b>			<b>,</b> , , , ,	,
Local	C _(total)	C _p (P _r )	Exp.	C _p (P _a )	Exp.	<b>C</b> _p ( <b>P</b> _r )	$C_p(P_a)$
	(Bq/g)	Máximo	Minímo	Máximo	Minímo	Estimado	Estimado
B ₁	47	1,94	0,45	0,26	0,08	1,01	0,14
$B_2 = B_3$	8	0,49	0,16	0,12	0,05	0,30	0,08
$B_4$	2	0,17	0,07	0,06	0,03	0,12	0,05

Tabela 6-40: Valores obtidos experimentalmente (exp.) para a concentração nos pinheiros e valores estimados (calculados com a correlação, C_n).

O mesmo se verifica para os FT estimados (Tabela 6-37, Tabela 6-38 e Tabela 6-39) comparativamente com os FT obtidos experimentalmente.

Local	C _(total)	FT (P _r )	Exp.	FT (P _a )	Exp.	FT (P _r )	FT (P _a )
	(Bq/g)	Max.	Min.	Max.	Min.	Estimado	Estimado
B ₁	47	0,041	0,010	0,005	0,002	0,020	0,003
$B_2 = B_3$	8	0,062	0,020	0,014	0,006	0,040	0,010
$B_4$	2	0,085	0,037	0,031	0,016	0,060	0,023

Tabela 6-41: Valores obtidos experimentalmente (exp.) para os FT nos pinheiros e valores estimados (calculados a partir da correlação, C_p).

A Figura 6-43 representa os valores dos FT estimados a partir da correlação usada.



Figura 6-43: FT estimados com a correlação C_p (P_a, A_r, A_a, E_f) vs local de amostragem.

# 6.10.5 Exploração do modelo para a vegetação existente sobre o local de deposição de resíduos radioactivos

Para a exploração do modelo completo vai ser necessário definir e descrever o cenário a que se pretende aplicar o modelo.

A simulação para a estimativa da concentração da actividade total na vegetação vai ser direccionada igualmente para o mesmo tipo de vegetação: pinheiros (P_r - raízes e P_a – agulhas), aos arbustos A_r – raízes e A_a – partes aéreas) e aos eucaliptos (E_f - folhas). A componente de transferência de RDN através da irrigação é nula.

Consideramos 2 cenários de exploração principais: no 1.º caso, a concentração no resíduo resulta da estimativa teórica da distribuição da actividade pelos radioisótopos no resíduo, supondo haver equilíbrio radioactivo entre as duas séries da cadeia do urânio, ²³⁸U e ²³⁵U. Consideramos ainda a variação do teor do minério cujo

tratamento vai originar resíduos com actividades diferentes. A exploração do modelo foi feita para o resíduo com origem no minério com teor de 1 kg/ton, lixiviado a 90 %, e para o resíduo com origem no minério com teor de 0,2 kg /ton, lixiviado a 100 %. No 2.º caso, a exploração é direccionada apenas para o ²²⁶Ra, considerando a actividade deste RDN no resíduo por local de amostragem, B₁, B₂, B₃, B₄, e que consta na bibliografia (Reis et al., 2000).

#### 6.10.5.1 Exploração do modelo para a actividade estimada teoricamente

Neste caso de exploração, a actividade de cada RDN no resíduo resulta da estimativa da distribuição por radioisótopos no equilíbrio radioactivo. Variou-se o teor do minério no qual tem origem o resíduo de acordo com  $t_1 = 1$  kg/ton e  $t_2 = 0.2$  kg/ton.

A primeira componente do cálculo da concentração total na planta é a absorção pelas raízes ( $C_{ad}$ ) que resulta do produto da concentração no resíduo ( $C_r$ ) pelo factor de transferência (FT). Este parâmetro é calculado para cada tipo de vegetação considerada de acordo com as correlações estabelecidas anteriormente através de dados experimentais. Na tabela seguinte encontra-se representada a actividade estimada no resíduo ( $C_r$ ) bem como os FT para cada RDN por tipo de vegetação, para o caso do resíduo com origem no minério com teor 1 kg/ton e lixiviado a 90 %. Designou-se  $R_1$  o resíduo com origem no tratamento deste minério.

RDN	C _r (Bq/g)	FT (P _r )	FT (P _a )	FT (A _r )	FT (A _a )	FT (F _f )
²³⁸ U	1,038	0,073	0,035	0,121	0,059	0,117
²³⁴ Th	1,038	0,073	0,035	0,121	0,059	0,117
²³⁴ U	1,038	0,073	0,035	0,121	0,059	0,117
²³⁰ Th	10,38	0,035	0,008	0,21	0,016	0,026
²²⁶ Ra	10,38	0,035	0,008	0,21	0,016	0,026
²²² Rn	10,38	0,035	0,008	0,21	0,016	0,026
²¹⁴ Pb	10,38	0,035	0,008	0,21	0,016	0,026
²¹⁰ Pb	10,38	0,035	0,008	0,21	0,016	0,026

Tabela 6-42: FT vs concentração no resíduo (R₁) para cada tipo de vegetação.

A concentração na planta, C_{ad} (Bq/kg), calculada com estes dados, para cada tipo de vegetação considerada, encontra-se na tabela seguinte.

RDN	C _{ad} (P _r )	C _{ad} (P _a )	C _{ad} (A _r )	$C_{ad}(A_a)$	$C_{ad}(E_f)$
²³⁸ U	75,9	36,49	125,68	60,99	121,53
²³⁴ Th	75,9	36,49	125,68	60,99	121,53
²³⁴ U	75,9	36,49	125,68	60,99	121,53
²³⁰ Th	363,28	83,59	2184,07	167,99	265,88
²²⁶ Ra	363,28	83,59	2184,07	167,99	265,88
²²² Rn	363,28	83,59	2184,07	167,99	265,88
²¹⁴ Pb	363,28	83,59	2184,07	167,99	265,88
²¹⁰ Pb	363,28	83,59	2184,07	167,99	265,88
	1		1		

Tabela 6-43: Concentração na vegetação devido à absorção pelas raízes (R₁), (Bq/kg).

A segunda componente de transferência é a deposição foliar (C_{dd}). Devido ao tipo de vegetação considerada, árvores (pinheiros e eucaliptos) e arbustos, a variação para cada caso vai ser pela dada pela fracção de intercepção no ar (f_{ar}) que depende da área da superfície foliar e consequentemente da espécie envolvida. Por este motivo consideraram-se diferentes valores para este parâmetro consoante a espécie envolvida: f_{ar} (árvores) = 0,007 e f_{ar} (arbustos) = 0,003 (Teale & Brown, 2003). O mesmo acontece com a biomassa e a translocação que além de depender do RDN (no caso da translocação) também depende do tipo de vegetação.

A fracção de translocação representa a quantidade de RDN que se desloca da superfície onde ocorreu a deposição dos RDN, para as partes comestíveis da planta, no entanto, como no tipo de vegetação considerada não há partes comestíveis, o alvo (onde se pretende calcular a concentração) é a parte da vegetação onde ocorreu a deposição pelo que se considerou  $T_r = 1$ . Se o alvo fossem os frutos ou as partes comestíveis (que não existem),  $T_r = 0$ .

Considerou-se que para os valores da concentração no solo superficial ( $C_s$  -Tabela 6-45), que vão servir de base para calcular a concentração ao nível médio do solo ( $C_{ar}$ ) ou seja, a cerca de 1 m do solo, corresponde cerca de 15 ppm da concentração no resíduo. Na zona das raízes, para estimar a absorção, a concentração considerada é a do resíduo ( $C_r$ ). Assume-se ainda que a vegetação está exposta à contaminação todo o ano (t = 365 dias). Os dados de entrada necessários para a exploração encontram-se na tabela seguinte.
Dados de entrada	
t (d)	365
R _{e1} (m ⁻¹ )	10 ⁻⁴
R _{e2} (m ⁻¹ )	10 ⁻⁹
V _d (m/d)	172,8
$\lambda_w (d^{-1})$	0,0495
f _{ar} (árvores)	0,007
f _{ar} (arbustos)	0,003
⊤ (-)	1
Y (-)	1,65
t _e (d)	365

Tabela 6-44: Dados genéricos de entrada para a simulação.

A concentração na vegetação devido à deposição ( $C_{dd}$ ) encontra-se na Tabela 6-45.

RDN	C _s (Bq/kg)	C _s (Bq/m ² )	C _{ar} (Bq/m ³ )	d _d	C _{dd (árvores)}	C _{dd (arbustos)}
²³⁸ U	15,57	3736,8	0,213	36,81	3,15	1,35
²³⁴ Th	15,57	3736,8	0,213	36,81	1,99	0,85
²³⁴ U	15,57	3736,8	0,213	36,81	3,15	1,35
²³⁰ Th	155,7	37368	2,13	368,06	31,54	13,52
²²⁶ Ra	155,7	37368	2,13	368,06	31,54	13,52
²²² Rn	155,7	37368	2,13	368,06	6,77	2,90
²¹⁴ Pb	155,7	37368	2,13	368,06	0,04	0,02
²¹⁰ Pb	155,7	37368	2,13	368,06	31,49	13,50

Tabela 6-45: Concentração na vegetação devido à deposição (R1), Bq/kg.

A terceira e última componente a considerar para a transferência dos RDN do resíduo para a vegetação é dada por  $C_{rd}$  e esta componente apenas depende da concentração de RDN potencialmente ressuspensa.

	Tabela 6-46:	Concentração r	a vegetação devido	à ressuspensão	(R ₁ ), (Bq/kg).
--	--------------	----------------	--------------------	----------------	-----------------------------

RDN	C _{rd} (Bq/kg)
²³⁸ U	3,27
²³⁴ Th	3,27
²³⁴ U	3,27
²³⁰ Th	32,70
²²⁶ Ra	32,70
²²² Rn	32,70
²¹⁴ Pb	32,70
²¹⁰ Pb	32,70

Por último, a concentração total na planta ( $C_{pl}$ ) é dada pela soma das componentes consideradas para cada um dos tipos de vegetação:  $C_{pl}$  (pinheiros),  $C_{pl}$  (arbustos) e  $C_{pl}$  (eucaliptos). Os valores encontram-se representados na Tabela 6-47.

RDN	C _{pl (pinheiros)}	C _{pl (arbustos)}	C _{pl (eucaliptos)}
²³⁸ U	125,24	195,92	127,96
²³⁴ Th	122,92	194,92	126,80
²³⁴ U	125,24	195,92	127,96
²³⁰ Th	575,35	2444,49	330,12
²²⁶ Ra	575,35	2444,49	330,12
²²² Rn	525,81	2423,26	305,35
²¹⁴ Pb	512,35	2417,48	298,62
²¹⁰ Pb	575,24	2444,44	330,07

Tabela 6-47: Concentração total na vegetação (R1), (Bq/kg).

De forma análoga, os cálculos foram repetidos para o resíduo com origem no minério de teor de 0,2 kg/ton e lixiviado a 100 %. Designou-se este resíduo por R₂.

Tabela 6-48: FT	vs concentração	no resíduo (R ₂ )	para cada t	ipo de vegetação.

RDN	C _r (Bq/g)	FT (P _r )	FT (P _a )	FT (A _r )	FT (A _a )	FT (E _f )
²³⁸ U	0	0	0	0	0	0
²³⁴ Th	0	0	0	0	0	0
²³⁴ U	0	0	0	0	0	0
²³⁰ Th	2,075	0,059	0,023	0,143	0,040	0,074
²²⁶ Ra	2,075	0,059	0,023	0,143	0,040	0,074
²²² Rn	2,075	0,059	0,023	0,143	0,040	0,074
²¹⁴ Pb	2,075	0,059	0,023	0,143	0,040	0,074
²¹⁰ Pb	2,075	0,059	0,023	0,143	0,040	0,074

Tabela 6-49: Concentrad	ção na vegetação	devido à absorção	pelas raízes	$(R_2), (E_2)$	3q/kg)
		3			

RDN	C _{ad} (P _r )	C _{as} (P _a )	C _{as} (A _r )	C _{as} (A _a )	C _{ad} (E _f )
²³⁸ U	0	0	0	0	0
²³⁴ Th	0	0	0	0	0
²³⁴ U	0	0	0	0	0
²³⁰ Th	121,56	46,82	296,68	82,73	153,80
²²⁶ Ra	121,56	46,82	296,68	82,73	153,80
²²² Rn	121,56	46,82	296,68	82,73	153,80
²¹⁴ Pb	121,56	46,82	296,68	82,73	153,80
²¹⁰ Pb	121,56	46,82	296,68	82,73	153,80

RDN	C _s (Bq/kg)	C _s (Bq/m ² )	C _{ar} (Bq/m ³ )	d _d	C _{dd (árvores)}	C _{dd (arbustos)}
²³⁸ U	0	0	0	0	0	0
²³⁴ Th	0	0	0	0	0	0
²³⁴ U	0	0	0	0	0	0
²³⁰ Th	31,12	7470	0,43	73,58	6,306	0
²²⁶ Ra	31,12	7470	0,43	73,58	6,306	2,702
²²² Rn	31,12	7470	0,43	73,58	1,354	0,580
²¹⁴ Pb	31,12	7470	0,43	73,58	0,008	0,004
²¹⁰ Pb	31,12	7470	0,43	73,58	6,295	2,698

Tabela 6-50: Concentração na vegetação devido à deposição (R₂), (Bq/kg).

Tabela 6-51: Concentração na vegetação devido à ressuspensão (R2), (Bq/kg).

RDN	C _{rd} (Bq/kg)			
²³⁸ U	0			
²³⁴ Th	0			
²³⁴ U	0			
²³⁰ Th	6,54			
²²⁶ Ra	6,54			
²²² Rn	6,54			
²¹⁴ Pb	6,54			
²¹⁰ Pb	6,54			

Tabela 6-52: Concentração total na vegetação (R₂), (Bq/kg).

RDN	C _{pl (pinheiros)}	C _{pl (arbustos)}	C _{pl (eucaliptos)}
²³⁸ U	0	0	0
²³⁴ Th	0	0	0
²³⁴ U	0	0	0
²³⁰ Th	194,07	397,88	166,65
²²⁶ Ra	194,07	397,88	166,65
²²² Rn	184,16	393,64	161,69
²¹⁴ Pb	181,47	392,48	160,35
²¹⁰ Pb	194,05	397,87	166,64

A representação dos valores para os dois casos, resíduo com origem no minério com teor 1 kg/ton e resíduo com origem no minério com teor 0,2 kg/ton, encontra-se na Figura 6-44 e na Figura 6-45, respectivamente.









#### 6.10.5.2 Exploração do modelo para zonas com diferente concentração em rádio

Fez-se uma simulação para alguns dos locais de amostragem que serviram de base ao estudo de Reis et al. (2000). Os locais escolhidos são designados por B₁, B₂, B₃, B₄. A concentração em rádio para cada local foi retirada da bibliografia consultada (Reis et al., 2000). Consideramos apenas a transferência da actividade do rádio do resíduo para a vegetação, uma vez que apenas este RDN foi alvo de estudo neste contexto. As considerações assumidas para o caso anterior mantêm-se neste caso. A estimativa das diferentes contribuições (absorção, deposição e ressuspensão) para a concentração total na vegetação encontra-se representada nas tabelas seguintes.

RDN	C _r (Bq/g)	FT (P _r )	FT (P _a )	FT (A _r )	FT (A _a )	FT (E _f )
<b>B</b> ₁	47	2,2 x 10 ⁻²	3,1 x 10 ⁻³	3,0 x 10 ⁻¹	6,9 x 10 ⁻³	9,5 x 10 ⁻³
B ₂	8	3,8 x 10 ⁻²	9,5 x 10 ⁻³	2,0 x 10 ⁻¹	1,9 x 10 ⁻²	3,0 x 10 ⁻²
B ₃	8	3,8 x 10 ⁻²	9,5 x 10 ⁻³	2,0 x 10 ⁻¹	1,9 x 10 ⁻²	3,0 x 10 ⁻²
B ₄	2	5,9 x 10 ⁻²	2,3 x 10 ⁻²	1,4 x 10 ⁻¹	4,1 x 10 ⁻²	7,6 x 10 ⁻²

Tabela 6-53: FT vs concentração no resíduo para cada tipo de vegetação.

Tabela 6-54: Concentração na vegetação devido à absorção pelas raízes, (Bq/kg).

RDN	C _{ad} (P _r )	C _{ad} (P _a )	C _{ad} (A _r )	C _{ad} (A _a )	$C_{ad}(E_f)$
<b>B</b> ₁	1014,51	0,07	0,93	2,10	0,07
B ₂	304,32	0,36	1,88	3,70	0,57
B ₃	304,32	0,36	1,88	3,70	0,57
$B_4$	118,56	1,37	3,27	5,77	3,09

Tabela 6-55: Concentração na vegetação devido à deposição, (Bq/kg).

RDN	C _s (Bq/kg)	C _s (Bq/m ² )	C _{ar} (Bq/m ³ )	d _d	C _{dd (árvores)}	C _{dd (arbustos)}
<b>B</b> ₁	705	169 200	9,64	1666,6	142,83	61,21
B ₂	120	28 800	1,64	283,7	15,37	6,59
B ₃	120	28 800	1,64	283,7	24,31	10,42
B ₄	30	7200	0,41	70,9	6,08	2,60

Tabela 6-56: Concentração na vegetação devido à ressuspensão, (Bq/kg).

RDN	C _{rd} (Bq/kg)
<b>B</b> ₁	148,05
B ₂	25,20
B ₃	25,20
B ₄	6,30

Por último a soma de todas as contribuições que representa a concentração total na vegetação ( $C_{pl}$ ):

Tabela 6-57: Concentração total na vegetação (Bq/kg).

RDN	Pr	Pa	A _r	A _a	E _f	C _{pl (pinheiros)}	C _{pl (arbustos)}	C _{pl (eucaliptos)}
B ₁	1305,40	290,95	210,19	211,36	290,95	1596,35	421,55	290,95
B ₂	344,89	40,93	33,67	35,49	41,14	385,82	69,16	41,14
B ₃	353,83	49,87	37,50	39,32	50,08	403,71	76,82	50,08
B ₄	130,94	13,75	12,18	14,67	15,47	144,68	26,85	15,47

Em todos os casos considerou-se a concentração no resíduo representa a concentração disponível para a absorção pelas raízes ( $C_r$ ) e no caso da deposição e ressuspensão considerou-se a actividade no solo superficial ( $C_s$ ), que se estimou em

cerca de 15 ppm da concentração no resíduo. A representação gráfica da concentração de rádio na vegetação existente em cada local de amostragem encontrase na Figura 6-46.



Figura 6-46: Concentração de rádio na vegetação vs local de amostragem, (Bq/kg).

### 6.10.6 Cálculo da actividade na área envolvente à da deposição do resíduo

Consideramos outro cenário de exposição constituído por pequenas quintas circundantes ao local de armazenamento do resíduo. As vias de transferência dos RDN para a vegetação vão ser constituídas pelo ar e pela água de irrigação contaminada (com origem num poço contaminado, por exemplo). Os processos envolvidos em ambas as vias de transferência são: a absorção pelas raízes, a deposição atmosférica e a ressuspensão. Considera-se nula a contribuição da água de rega proveniente de águas superficiais.

A vegetação a considerar será a característica da que é cultivada em pequenas hortas: vegetais com folhas (couve, alface, etc.), vegetais sem folhas (tomate, cenoura, etc.), leguminosas (grão, feijão, ervilhas, etc.) e a vegetação que compõe a ração dos animais (erva de pasto e produtos armazenados). Os factores de transferência vão variar consoante o tipo de vegetação e de RDN, resultando numa concentração total diferente segundo estes dois critérios.

No caso teórico vamos considerar a actividade no resíduo supondo o equilíbrio entre as séries radioactivas ²³⁵U e ²³⁸U. Adoptamos a mesma variação da actividade dos RDN no resíduo consoante a origem no minério de teor médio de 1 kg/ton ou de teor médio de 0,2 kg/ton, já mencionada. Designamos por R₁ e R₂, respectivamente e

estipulamos, como anteriormente, que a concentração de cada RDN no solo superficial corresponde a cerca de 15 ppm da actividade existente no resíduo ( $C_{so}$ ). Os resultados obtidos encontram-se nas tabelas seguintes (e equivalentes aos valores da Tabela 6-22 e da Tabela 6-23).

RDN	<b>C</b> _r - <b>R</b> ₁	<b>C</b> _r - <b>R</b> ₂	$C_{so} - R_1$	$C_{so}$ - $R_2$
²³⁸ U	1,038 x 10 ³	0	15,57	0
²³⁴ Th	1,038 x 10 ³	0	15,57	0
²³⁴ U	1,038 x 10 ³	0	15,57	0
²³⁰ Th	1,038 x 10 ⁴	2,075 x 10 ³	155,7	31,125
²²⁶ Ra	1,038 x 10 ⁴	2,075 x 10 ³	155,7	31,125
²²² Rn	1,038 x 10 ⁴	2,075 x 10 ³	155,7	31,125
²¹⁴ Pb	1,038 x 10 ⁴	2,075 x 10 ³	155,7	31,125
²¹⁰ Pb	1,038 x 10 ⁴	2,075 x 10 ³	155,7	31,125

Tabela 6-58: Concentração no resíduo e no solo superficial, (Bq/kg).

Da exploração do modelo de transporte na água subterrânea apresentado no capítulo 4, obtemos os valores da concentração na água subterrânea que vai constituir a água de irrigação contaminada proveniente do poço. A actividade na água subterrânea calculada no capítulo 4 refere-se aos seguintes RDN: ²²⁶Ra, ²¹⁸Po, ²¹⁴Po, ²¹⁰Po, ²¹⁰Pb e os valores encontram-se na tabela seguinte.

RDN	C _{wp} - R ₁	C _{wp} - R ₂	
²³⁸ U	133,53	25,77	
²³⁴ Th	0	0	
²³⁴ U	133,46	25,76	
²³⁰ Th	0,01329	2,56 x 10 ⁻³	
²²⁶ Ra	84,04	16,23	
²¹⁸ Po	0	0	
²¹⁴ Pb	0	0	
²¹⁴ Po	0	0	
²¹⁰ Pb	8,83 x 10 ⁻⁵	1,89 x 10 ⁻⁵	
²¹⁰ Po	0	0	

Tabela 6-59: Concentração de cada RDN na água de irrigação (capítulo 4), (Bq.m⁻³).

Os RDN a considerar na água de irrigação são os mesmos que nos casos anteriores, apesar da actividade do ²³⁴Th ser nula e a do ²¹⁰Pb ser muito pequena. No entanto, este último RDN é de elevada preocupação ambiental devido ao tempo de semi-vida e pela sua elevada radiotoxicidade. Os RDN ²¹⁸Po, ²¹⁴Po e ²¹⁰Po não serão

incluídos, pois a sua actividade na água subterrânea é nula. Os RDN que apresentam actividade mais elevada na água de irrigação são o urânio e o rádio.

Como o factor de transferência (FT) também vai variar segundo o RDN e o tipo de vegetação é necessário definir os produtos agrícolas (vegetação, ração dos animais, etc.) a considerar na exploração. Adoptamos, para os tipos de produtos mencionados anteriormente, e de acordo com o RDN em estudo, os valores indicados pela *International Union of Radioecology* (IUR, 1992) para os valores do FT determinados segundo condições experimentais diversas.

Relativamente ao local que se pretende estudar, as hortas circundantes ao local de armazenamento do resíduo, apenas obtivemos dados experimentais na bibliografia para os FT do rádio e do chumbo para as couves. Para a exploração do modelo vamos usar os FT referentes a alguns produtos supondo que estes são cultivados, mesmo que em pequenas hortas, na vizinhança deste local. Nos casos em que consta na bibliografia mais do que um FT para o mesmo produto, escolheu-se o valor mais elevado, tentando quantificar o pior cenário. Os produtos escolhidos e os respectivos FT são os seguintes:

RDN - U	FT (Bq/kg de planta)/(Bq/kg de solo)
Raízes de vegetais (cenoura)	0,0204
Erva	0,0126
Alface	0,0250
Tomate	0,0005
RDN - Ra	FT (Bq/kg de planta)/(Bq/kg de solo)
Raízes de vegetais (cenoura)	0,0379
Erva	0,0515
Couve	0,0700
RDN - Pb	FT (Bq/kg de planta)/(Bq/kg de solo)
Couve	0,02

Tabela 6-60: FT para o urânio, rádio e chumbo (Vandehove, 2002), (Carvalho et al., 2001).

Fez-se uma simulação para cada um dos produtos hortícolas e para cada um dos RDN correspondentes adoptando os seguintes pressupostos: i) para os RDN sem informação relativamente ao FT do solo para a vegetação em estudo, considerou-se o seu valor igual a zero; ii) partiu-se do pressuposto que a água de irrigação tem origem sempre no poço contaminado; iii) a biomassa é igual para todos os produtos considerados em cada simulação.

### a) Simulação para as raízes de vegetais (cenoura)

Bq/kg	²³⁸ U	²³⁴ Th	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²²² Rn	²¹⁴ Pb	²¹⁰ Pb
C _{ad}					5,9			3,18
C _{dd}	1,69 x 10 ²	1,16 x 10 ²	1,69 x 10 ²	1,69 x 10 ³	1,69 x 10 ³	4,06 x 10 ²	2,51	1,68 x 10 ³
$\mathbf{C}_{rd}$	3,27	3,27	3,27	32,7	32,7	32,732,7	32,7	32,7
C _{ai}				1,13 x 10 ⁻¹				
C _{di}	3,3 x 10⁻¹		3,30 x 10 ⁻ 1	3,28 x 10 ⁻⁵	2,08 x 10 ⁻¹			
C _{ri}	1,0		1,0	9,98 x 10 ⁻⁵	6,25 x 10 ⁻¹			
C _{pl}	1,73 x 10 ²	1,19 x 10 ²	1,73 x 10 ²	1,72 x 10 ³	1,73 x 10 ³	4,39 x 10 ²	35,2	1,72 x 10 ³

Tabela 6-61: Concentração total de rádio nas raízes de vegetais (cenouras) - origem R₁.

Fabela 6-62: Concentração total de rádio nas raízes	s de vegetais (cenouras) - origem R	₹ ₂ .
-----------------------------------------------------	-------------------------------------	------------------

Bq/kg	²³⁸ U	²³⁴ Th	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²²² Rn	²¹⁴ Pb	²¹⁰ Pb
C _{ad}					1,18			
C _{dd}				3,37 x 10 ²	3,37 x 10 ²	81,18	5,02 x 10 ⁻¹	3,37 x 10 ²
C _{rd}				6,54	6,54	6,54	6,54	6,54
C _{ai}	1,88 x 10 ⁻²				1,14 x 10 ⁻¹			
C _{di}	6,37 x 10 ⁻²		6,37 x 10 ⁻²	6,33 x 10 ⁻⁶	2,08 x 10 ⁻¹			
C _{ri}	1,93 x 10⁻¹		1,93 x 10 ⁻¹	1,92 x 10 ⁻⁵	6,25 x 10 ⁻¹			
C _{pl}	2,76 x 10 ⁻¹	0	2,57 x 10 ⁻¹	3,44 x 10 ⁻²	3,46 x 10 ²	87,71	7,04	3,43 x 10 ²



Figura 6-47: Representação dos valores da Tabela 6-61 e da Tabela 6-62.

### b) Simulação para os vegetais sem folhas (tomate)

Bq/kg	²³⁸ U	²³⁴ Th	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²²² Rn	²¹⁴ Pb	²¹⁰ Pb
C _{ad}	7,78 x 10 ⁻³							
$\mathbf{C}_{dd}$	1,69 x 10 ²	1,16 x 10 ²	1,69 x 10 ²	1,69 x 10 ³	1,69 x 10 ³	4,0 x 10 ²	2,51	1,68 x 10 ³
$\mathbf{C}_{rd}$	3,27	3,27	32,7	32,7	32,7	32,7	32,7	32,7
C _{ai}	2,39 x 10 ⁻³							
$\mathbf{C}_{di}$	3,3 x 10 ⁻¹		3,30 x 10 ⁻¹	3,28 x 10 ⁻⁵	2,08 x 10 ⁻¹			
C _{ri}	1,0		1,0	9,98 x 10⁻⁵	6,25 x 10 ⁻¹			
C _{pl}	1,73 x 10 ²	1,19 x 10 ²	1,73 x 10 ²	1,72 x 10 ³	1,72 x 10 ³	4,39 x 10 ²	35,21	1,72 x 10 ³

Tabela 6-63: Concentração total de rádio nos vegetais sem folhas (tomate) - origem R1.

Tabela 6-64: Concentração total de rádio nos vegetais sem folhas (tomate) - origem R2.

Bq/kg	²³⁸ U	²³⁴ Th	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²²² Rn	²¹⁴ Pb	²¹⁰ Pb
$\mathbf{C}_{ad}$								
$\mathbf{C}_{dd}$				3,37 x 10 ²	3,37 x 10 ²	81,12	0,05	3,37 x 10 ²
$\mathbf{C}_{rd}$				6,53	6,53	6,53	6,53	6,53
C _{ai}								
$\mathbf{C}_{di}$	6,37 x 10 ⁻²		6,37 x 10 ⁻²	6,33 x 10 ⁻⁶	2,08 x 10 ⁻¹			
C _{ri}	1,93 x 10 ⁻¹		1,93 x 10 ⁻¹	1,92 x 10 ⁻⁵	6,25 x 10 ⁻¹			
C _{pl}	2,58 x 10 ⁻¹		2,57 x 10 ⁻¹	3,44 x 10 ²	3,45 x 10 ²	87,71	7,04	3,43 x 10 ²



Figura 6-48: Representação dos valores da Tabela 6-63 e da Tabela 6-64.

### c1) Simulação para os vegetais com folhas (alface)

Bq/kg	²³⁸ U	²³⁴ Th	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²²² Rn	²¹⁴ Pb	²¹⁰ Pb
C _{ad}	3,89 x 10 ⁻¹							
$\mathbf{C}_{dd}$	1,69 x 10 ²	1,16 x 10 ²	1,69 x 10 ²	1,69 x 10 ³	1,69 x 10 ³	4,06 x 10 ²	2,51	1,68 x 10 ³
$\mathbf{C}_{rd}$	3,27	3,27	32,7	32,7	32,7	32,7	32,7	32,7
C _{ai}	1,19 x 10 ⁻¹							
$\mathbf{C}_{di}$	3,3 x 10 ⁻¹		3,30 x 10 ⁻¹	3,28 x 10 ⁻⁵	2,08 x 10 ⁻¹			
C _{ri}	1,0		1,0	9,98 x 10 ⁻⁵	6,25 x 10 ⁻¹			
C _{pl}	1,74 x 10 ²	1,19 x 10 ²	1,73 x 10 ²	1,72 x 10 ³	1,72 x 10 ³	4,39 x 10 ²	35,21	1,72 x 10 ³

Tabela 6-65: Concentração total de rádio nos vegetais com folhas (alface) - origem R1.

Tabela 6-66: Concentração	total de rádio nos	vegetais com folha	s (alface) - origem R ₂ .
rabola o oor oonoonaayao	total do radio moo	regetate com roma	o (anabo) ongom tz

Bq/kg	²³⁸ U	²³⁴ Th	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²²² Rn	²¹⁴ Pb	²¹⁰ Pb
C _{ad}								
$\mathbf{C}_{dd}$				3,37x10 ²	3,37x10 ²	81,18	5,02x10 ⁻¹	3,37x10 ²
Crd				6,54	6,54	6,54	6,54	6,54
C _{ai}	2,30x10 ⁻²							
C _{di}	6,37x10 ⁻²		6,37x10 ⁻²	6,33x10 ⁻⁶	2,08x10 ⁻¹			
C _{ri}	1,93x10 ⁻¹		1,93x10 ⁻²	1,92x10 ⁻⁵	6,25x10 ⁻¹			
C _{pl}	2,80x10 ⁻¹		2,57x10 ⁻¹	3,44x10 ²	3,45x10 ²	87,71	7,04	3,43x10 ²



Figura 6-49: Representação dos valores da Tabela 6-65 e da Tabela 6-66.

### c₂) Simulação para os vegetais com folhas (couve)

Bq/kg	²³⁸ U	²³⁴ Th	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²²² Rn	²¹⁴ Pb	²¹⁰ Pb
C _{ad}					10,9			3,11
$\mathbf{C}_{dd}$	1,69 x 10 ²	1,16 x 10 ²	1,69 x 10 ²	1,69 x 10 ³	1,69 x 10 ³	4,06 x 10 ²	2,51	1,68 x 10 ³
$\mathbf{C}_{rd}$	3,27	3,27	32,7	32,7	32,7	32,7	32,7	32,7
C _{ai}					2,08 x 10 ⁻¹ 0			
$\mathbf{C}_{di}$	3,3 x 10 ⁻¹		3,30 x 10 ⁻¹	3,28 x 10 ⁻⁵	2,08 x 10 ⁻¹			
C _{ri}	1,0		1,0	9,98 x 10 ⁻⁵	6,25 x 10 ⁻¹			
C _{pl}	1,73 x 10 ²	1,19 x 10 ²	1,73 x 10 ²	1,72 x 10 ³	1,73 x 10 ³	4,39 x 10 ²	35,21	1,72 x 10 ³

Tabela 6-67: Concentração total de rádio nos vegetais com folhas (couve) - origem R1.

Tabela 6-68: Concentração total de rádio nos vegetais com folhas (couve) - origem R2.

Bq/kg	²³⁸ U	²³⁴ Th	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²²² Rn	²¹⁴ Pb	²¹⁰ Pb
C _{ad}					2,18			6,22 x 10 ⁻¹
$\mathbf{C}_{dd}$				3,37 x 10 ²	3,37 x 10 ²	81,18	0,50	3,37 x 10 ²
$\mathbf{C}_{rd}$				6,54	6,54	6,54	6,54	6,54
C _{ai}					2,08 x 10 ⁻¹			
C _{di}	6,34 x 10 ⁻²		6,37 x 10 ⁻²	6,33 x 10 ⁻⁶	2,08 x 10 ⁻¹			
C _{ri}	1,93 x 10 ⁻¹		1,93 x 10 ⁻¹	1,92 x 10 ⁻⁵	6,25 x 10 ⁻¹			
C _{pl}	2,57 x 10 ⁻¹		2,57 x 10 ⁻¹	3,44 x 10 ²	3,47 x 10 ²	87,71	7,04	3,44 x 10 ²



Figura 6-50: Representação dos valores da Tabela 6-67 e da Tabela 6-68.

Existem alguns valores para os FT (rádio/couve e chumbo/couve) obtidos experimentalmente para a vegetação ( $C_{pl}$ ) irrigada com água contaminada do poço ( $C_{wp}$ ), (Bettencourt et al., 1990) referentes a solos próximos da escombreira da mina da Urgeiriça e que se encontram na Tabela 6-69.

Parâmetros	-
C _p ( ²²⁶ Ra) (Bq/g)	0,24
C _{wp} ( ²²⁶ Ra) (Bq/L)	0,04
FT (Ra/couve)	0,07
FT (Pb/couve)	0,02

Tabela 6-69: Dados obtidos experimentalmente na zona circundante ao local de

armazenamento do resíduo.

Fez-se uma simulação com o FT (rádio/couve) obtido experimentalmente e representado na Tabela 6-69, para a concentração teórica em rádio e com a concentração na água de irrigação obtida experimentalmente também. Os valores obtidos por cada trajectória encontram-se na tabela seguinte.

Tabela 6-70: Concentração total na vegetação estimada a partir dos dados experimentais obtidos para a Urgeiriça.

Bq/kg	R ₁	R ₂
C _{ad}	10,90	2,18
$\mathbf{C}_{dd}$	1,69 x 10 ³	3,37 x 10 ²
$\mathbf{C}_{rd}$	32,7	6,54
C _{ai}	9,92 x 10 ⁻²	9,92 x 10 ⁻²
$\mathbf{C}_{di}$	9,89 x 10 ⁻²	9,89 x 10 ⁻²
C _{ri}	2,98 x 10 ⁻¹	2,98 x 10 ⁻¹
C _{pl}	1,73 x 10 ³	3,46 x 10 ²

Verificamos que a concentração total na vegetação (Cpl - Tabela 6-70, valores em Bq/kg) é superior ao valor obtido experimentalmente (Cp rádio - Tabela 6-69, valores em Bq/g) mas da mesma ordem de grandeza. Esta variação pode ser imputada ao facto da concentração no solo (155,57 Bq/kg para R₁ e 31,125 para R₂) ser muito elevada e referente à concentração no resíduo, enquanto que os valores experimentais foram obtidos em locais fora da área da escombreira da mina da Urgeiriça, onde a contaminação será superficial. O valor escolhido refere-se a um local de amostragem distante cerca de 1000 m da escombreira.

Alteramos o valor da concentração no solo superficial para 22 Bq/kg, mantendo todos os outros valores, e o valor obtido para C_{pl} foi de 245 Bq/kg. Fez-se ainda a simulação para estimar a concentração total na planta considerando 15 ppm da concentração de rádio no resíduo em cada zona, segundo a divisão proposta por Reis et al. (2000), para a concentração no solo superficial e que seria um valor mais aceitável. Os resultados encontram-se na Tabela 6-71.

Barragem	C _r (Bq/kg)	C _s (Bq/kg)	C _{pl} (Bq/kg)
<b>B</b> ₁	45 000	705	7,84 x 10 ³
$B_2 = B_3$	8000	120	1,33 x 10 ³
B ₄	2000	30	334

Tabela 6-71: Concentração total de rádio na couve estimada a partir de 15 ppm da concentração no resíduo.

Verificamos que à medida que a concentração de rádio no solo diminui, a concentração na vegetação aproxima-se do valor obtido experimentalmente para estas condições.

Se considerarmos o caso da contaminação transferida apenas pela água de irrigação na qual tem origem a contribuição pela deposição das partículas, a concentração total na planta resulta da soma das expressões dadas por  $C_{pd}$  (6-39) e  $C_{pr}$  (6-41).

Como parâmetros de entrada no modelo vamos ter a concentração na água de irrigação,  $C_w$  (²²⁶Ra) = 0,04 Bq/L (dado local), FT (rádio/couve) = 0,07 (dado local), e os parâmetros anteriores já definidos. Fez-se variar o tempo decorrido após a prática de irrigação com água contaminada do poço para a estimativa da concentração no solo. Os valores obtidos para o rádio encontram-se na tabela seguinte.

Bq/kg	1 ano	10 anos	100 anos
C _{pd}	2,77	25,51	1,66 x 10 ²
$\mathbf{C}_{pr}$	0,0153	0,146	0,955
Cp	2,79	25,65	1,67 x 10 ²

Tabela 6-72: Concentração total de rádio na couve transferida apenas pela água de irrigação.

Verifica-se que a contribuição pela água de irrigação para a concentração total na planta é muito inferior à que resulta por deposição, o que pode ser justificado em certa medida pela fraca solubilidade do rádio. Este RDN aparece muitas vezes sob a forma de partículas suspensas na água e não dissolvido nesta.

Neste caso de exploração, podemos ainda obter a contaminação no solo superficial induzida pela água de irrigação contaminada. Assim sendo, podemos calcular a concentração de rádio no solo superficial ao fim de determinado período de tempo de irrigação com água contaminada. De forma análoga, podemos estimar a concentração na planta a partir da concentração no solo superficial, se este valor for conhecido, através da correlação deduzida com a simulação para t = 1, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 90 e 100 anos, representada na figura seguinte.

Anos	C _s (Bq/kg)	C _p (Bq/kg)
1	52,6	2,79
10	502,3	25,62
20	955,4	48,74
30	1,36x10 ³	69,56
40	1,70x10 ³	88,34
50	2,07x10 ³	1,05x10 ²
60	2,33x10 ³	1,20x10 ²
70	2,63x10 ³	1,34x10 ²
80	2,88x10 ³	146,82
90	3,10x10 ³	1,58x10 ²
100	3,30x10 ³	167







Podemos ainda fazer uma última simulação com as expressões de  $C_{VA}$  (6-43),  $C_{VI}$  (6-56),  $C_{RA}$  (6-51) e  $C_{RI}$  (6-57) para estimar a concentração total na vegetação. Consideramos para o primeiro caso de simulação, a estimativa da concentração em rádio na vegetação e/ou produtos hortícolas que vão ser consumidos e para o segundo caso, a simulação da estimativa da concentração em rádio na ração animal, que inclui a erva de pasto e os produtos armazenados. Os valores da Tabela 6-13 e da Tabela 6-20 foram usados para definir os parâmetros necessários à exploração.

Considerou-se, no entanto, as seguintes variações às tabelas anteriores: a água de irrigação provém unicamente do poço ( $L_{ig} = 1$ ); a concentração de rádio no solo superficial é 155,7 Bq/kg (15 ppm de 10 380 Bq/kg - actividade resultante do

tratamento do minério com teor médio 1 kg/ton e lixiviado a 100 %); a concentração na água do poço é a mesma que consta da Tabela 6-69; a fracção do ano em que os animais permanecem no pasto:  $f_{ag} = 0,75$ ; a fracção da alimentação diária composta pela erva de pasto:  $f_s = 0,83$ ; o factor de transferência solo/planta para a vegetação: FT = 0,07 e para a erva de pasto: FT = 0,033. No caso da erva de pasto, o valor para a biomassa usado foi de Y = 0,168; o tempo de exposição,  $t_e = 30$  dias e o fluxo de irrigação do pasto vai ser inferior ao fluxo de irrigação usado para os vegetais,  $IR_r = 1$ (L.m⁻².d⁻¹). Em locais em que a precipitação é suficiente para o crescimento do pasto, não haverá a prática de irrigação e, neste caso,  $C_{VI}$  e  $C_{RI}$  são nulos.

Fez-se uma simulação do modelo para 1 ano, 10 anos e 100 anos, para dois tipos de vegetação representativos de ambos os casos: couve e erva de pasto. Os valores obtidos encontram-se na Tabela 6-74 e na Tabela 6-75, respectivamente.

Tabela 6-74: Concentração de rádio na vegetação (couve) devido à deposição atmosférica e à água de irrigação contaminada, (Bq/kg).

Bq/kg	1 ano	10 anos	100 anos
C _{VA}	1,69 x 10 ³	3,77	0,341
C _{vi}	0,407	0,407	0,407
Cv	1,69 x 10 ³	4,18	0,748

Tabela 6-75: Concentração de rádio na vegetação (erva de pasto) devido à transferência pela deposição atmosférica e à água de irrigação contaminada, (Bq/kg).

Bq/kg	1 ano	10 anos	100 anos
C _{RA}	1,43 x 10 ⁴	31,77	2,54
C _{RI}	0,935	0,935	0,935
C _R	1,44 x 10 ⁴	32,70	3,48

A grande diferença entre os valores  $C_{VA}$  e  $C_{VI}$  e entre  $C_{RA}$  e  $C_{RI}$  pode ser explicada pelo facto do 1.º termo das respectivas expressões constituir o termo dominante, que representa a transferência para a vegetação pela deposição, enquanto que o 2.º termo representa a transferência de rádio pela água de irrigação e de menor expressão.

# 6.11 Discussão dos resultados e conclusões

Da análise das figuras elaboradas com os valores obtidos da simulação deste modelo podemos resumir e concluir o seguinte: No primeiro caso de exploração verifica-se que a deposição atmosférica é a via de transferência de maior contribuição para a concentração da actividade total na planta (Figura 6-15, Figura 6-17 e Figura 6-19). Os RDN ²³⁸U, ²³⁴U, ²³⁰Th, ²²⁶Ra e ²¹⁰Pb apresentam a mesma concentração da actividade total na planta (Figura 6-16, Figura 6-18 e Figura 6-20). O ²²²Rn apresenta valores muito pequenos, o que pode ser explicado pelo seu estado físico (gasoso), sendo um gás inerte não é susceptível de sofrer deposição.

Para o ²¹⁴Pb a actividade nas plantas é quase inexistente o que pode ser explicado pelo facto do valor da constante de decaimento radioactivo coincidir com o valor constante de remoção da planta e com o valor da constante de remoção do solo (37,2 dias). Isto significa que à medida que o ²¹⁴Pb decai para o RDN seguinte, é removido simultaneamente, pois a constante de remoção do RDN do solo e da planta dependem directamente da constante de decaimento radioactivo, sendo este o termo dominante no seu cálculo. Podemos ainda verificar que quando a fonte de contaminação é a água de irrigação, a concentração total na planta é bastante inferior à que seria se a fonte de contaminação fosse o solo. Isto deve-se ao facto de no solo contaminado a concentração também ser superior e a absorção ocorrer directamente do resíduo para as raízes.

No caso do ²²²Rn, este dissolve-se na água mas facilmente se liberta quando a água se encontra exposta à atmosfera, especialmente se for agitada, como acontece quando a água de irrigação provém de um poço. Quando o ²²²Rn decai na água, apenas permanecem os produtos sólidos do decaimento até ao RDN estável (chumbo).

No cálculo dos factores de transferência (6.10.2), verifica-se que a absorção de rádio (no caso dos pinheiros) em função da concentração total de rádio no resíduo traduz uma função não linear (exponencial negativa), tendendo no entanto, para uma função linear na presença de elevadas concentrações de rádio no resíduo (Figura 6-23 e Figura 6-24). Os FT diminuem a partir da origem para baixas concentrações de rádio no resíduo, < 5 Bq/g, e aparentam ser relativamente constantes para concentrações de rádio superiores a 5 Bq/g. A função não linear pode ser explicada, segundo Sheppard & Sheppard (1985), por uma curva "dose-resposta" proposta para descrever a absorção pelas plantas de elementos essenciais e não essenciais. Quando a concentração de substrato é baixa (deficiente), as plantas absorvem rapidamente os elementos essenciais para o seu crescimento, enquanto que a absorção de elementos

não essenciais é geralmente constante para elevadas concentrações do substrato. Por outro lado, nestas condições (elevadas concentrações de substrato), a absorção das plantas de elementos essenciais e não essenciais pode ser constante (efeito não tóxico) ou pode diminuir (efeito tóxico). Da mesma forma e relativamente ao rádio, pensa-se que este RDN comporta-se como um elemento essencial para baixas concentrações do substrato. Simon & Ibrahim (1990) relataram que a forma da função dos FT para elevadas concentrações de substrato depende da resposta da absorção pela planta. Se a absorção pela planta continua a aumentar linearmente com o aumento da concentração no solo, o FT é constante. Por outro lado, se a absorção da planta diminui ou é constante, com o aumento da concentração no solo, então o FT diminui. Em trabalhos mais recentes, os mesmos autores, relataram que elementos como o Ca, Ra, e Pb podem actuar para que a resposta de absorção da actividade das plantas seja uma função não-linear, tendendo para um valor de saturação simples ou múltiplo (Madruga et al., 2001).

No 2.º caso de exploração (6.10.3), verifica-se que para as três espécies estudadas, concentrações menores de actividade no resíduo correspondem valores de FT mais elevados.

No caso dos pinheiros (Figura 6-25 e Figura 6-26), o FT é superior para as agulhas relativamente às raízes, o que pode ser explicado se se considerar que há uma translocação dos RDN para as agulhas. No caso dos RDN considerados como insolúveis, ²³⁰Th, ²²⁶Ra, ²²²Rn, ²¹⁴Pb, ²¹⁰Pb, os valores dos FT para as raízes são equivalentes aos FT das agulhas, o que de certo modo está de acordo com a sua indisponibilidade para sofrerem a translocação das raízes para as agulhas. Estes valores também são inferiores aos FT dos RDN considerados como solúveis, porque a sua actividade no resíduo também é superior.

No caso das giestas (Figura 6-27 e Figura 6-28) o comportamento é o mesmo, verificando-se, no entanto, uma diferença mais marcada entre o FT das raízes e o FT das partes aéreas. No caso dos eucaliptos (Figura 6-29 e Figura 6-30), os FT são bastante superiores para os RDN solúveis e portanto de menor concentração no resíduo. Para estes RDN, a sua solubilidade poderá ser um sinónimo de biodisponibilidade para serem absorvidos pelas raízes e translocados para as folhas. Deve, no entanto, ter-se em atenção que o coeficiente de correlação obtido para esta espécie é muito baixo (R = 0,38) e cuja correlação foi usada para o cálculo deste FT.

Se compararmos os valores dos FT no caso do resíduo resultante do minério com teor de 1 kg/ton com o resultante do minério de 0,2 kg/ton, verifica-se que no primeiro caso, os FT são sempre superiores. No entanto, a diferença entre os FT das raízes e das agulhas ou partes aéreas é mais acentuado no 2.º caso. Isto pode levar a concluir que também para baixas concentrações de RDN no resíduo, a translocação tende a ser superior.

No 3.º caso de exploração (6.10.4) e para os pinheiros (raízes e agulhas) verifica-se que os FT são inferiores nos locais de maior concentração em rádio no resíduo. Isto é o que se observa na Figura 6-32 e na Figura 6-31 em que aos FT mais elevados (em cada local estudado) correspondem os RDN solúveis e que por isso, a sua actividade no resíduo é baixa. No caso das raízes de giestas (Figura 6-33), o cenário é um pouco diferente porque os FT aumentaram para concentrações elevadas de rádio no resíduo, e isto verifica-se em todos os locais representados nesta figura. Nas partes aéreas (Figura 6-34) já se verifica o contrário, a baixas concentrações de rádio no resíduo correspondem FT superiores. Da mesma forma, no caso das folhas dos eucaliptos, verifica-se esta última tendência (Figura 6-35). Os valores de FT obtidos nesta figura (e também na Figura 6-29 e na Figura 6-30) são superiores a 1 o que pode gerar algumas dúvidas porque a interpretação destes valores poderá sugerir, pela definição de FT, que a concentração na planta é superior à concentração no solo  $(FT = C_p/C_s)$ . No entanto, se o valor de  $C_s$  for expresso em Bq/kg (em vez de Bq/g) este problema já não se verifica e todos os valores são inferiores a 1. Deve-se ainda ter em atenção que o coeficiente de correlação obtido para esta espécie é baixo (R = 0,38) o que reflecte os resultados obtidos para os FT.

Relativamente à variação dos FT em função do local estudado e consequentemente da concentração de rádio no resíduo, verifica-se que nos pinheiros e nos eucaliptos (Figura 6-36 e Figura 6-38, respectivamente) os FT aumentam nos locais de baixa concentração de rádio (B₄ é o local de menor concentração em rádio e é o que representa FT superiores). No caso dos arbustos estudados (Figura 6-37) os FT aumentam para elevadas concentrações de rádio apenas nas raízes, porque nas partes aéreas verifica-se precisamente o contrário, como já foi referido anteriormente: a elevadas concentrações de rádio, a translocação deste RDN para as partes aéreas é bastante inferior.

Da comparação dos resultados obtidos com dados de origem e de valores diferentes (Figura 6-39, Figura 6-40 e Figura 6-41) verifica-se de uma forma geral, que os valores de FT estimados com base na concentração no resíduo (valores retirados da bibliografia) e não na concentração do solo superficial (que se considerou ser de 15 ppm dos valores retirados da bibliografia), se aproximam bastante dos FT obtidos experimentalmente descritos na bibliografia (Carvalho et al., 2001), (Madruga et al., 2001). Isto pode significar que, pelo menos, nestes locais de amostragem, as raízes estarão abaixo da profundidade definida pelo solo superficial (15 cm) inseridas no resíduo, o que seria de esperar, pois este tipo de vegetação deve ser constituída por um sistema radicular de comprimento superior a 15 cm. Também podemos deduzir que não há cobertura sobre o resíduo e que a absorção ocorre directamente neste.

O local de maior actividade em rádio (B₁) (Figura 6-42) é também o local onde as espécies estudadas apresentam valores da concentração da actividade em rádio mais elevados. Destaca-se a concentração da actividade em rádio nas raízes dos arbustos em B₁ pelo seu elevado valor, bem como nos restantes locais nos quais se verifica que esta espécie apresenta sempre as maiores concentrações. Podemos concluir que esta espécie é a que se revela com maior tendência para a absorção deste RDN. Os valores da concentração estimados com a correlação inversa (em função de C_p em vez de FT) estão de acordo com os dados obtidos experimentalmente, isto é, estão dentro do intervalo de variação dos valores obtidos por análise da actividade do rádio na vegetação (Madruga et al., 2001). Os valores de FT (Figura 6-43) estimados com os valores da concentração obtidos experimentalmente também estão de acordo com os FT estimados pela correlação.

A actividade total nas plantas é sempre superior no caso dos arbustos (Figura 6-44 e Figura 6-45). No entanto, para os RDN considerados insolúveis (²³⁰Th, ²²⁶Ra, ²²²Rn, ²¹⁴Pb, ²¹⁰Pb) a absorção seria pouco provável (visto não estarem "disponíveis") mas apresentam a concentração mais elevada afastando-se muito dos valores da concentração na planta relativamente às outras espécies estudadas. Os elevados valores obtidos devem-se à componente da transferência por deposição atmosférica e ressuspensão e não por absorção.

A concentração de rádio total na planta por local de amostragem é superior nos locais de superior concentração em rádio e segundo esta ordem decrescente: B₁, B₂, B₃ e B₄ (Figura 6-46).

No caso da exploração do modelo para a estimativa da actividade na vegetação existente na área envolvente ao local de deposição do resíduo (escombreira) (6.10.6), verifica-se que nos casos em que estão presentes as duas vias de transferência, a deposição é sempre dominante. Os RDN que apresentam concentrações mais elevadas na vegetação são o ²²⁶Ra e o ²¹⁰Pb nas raízes de vegetais (cenouras – Figura 6-47) e ²²⁶Ra, ²³⁰Th e ²¹⁰Pb nos vegetais sem folhas (tomate – Figura 6-48) e com folhas (alface – Figura 6-49 e couve – Figura 6-50). Estes serão os RDN de maior preocupação no que diz respeito à transferência de RDN para os vegetais considerados.

Ao comparar os valores estimados no modelo com os valores obtidos experimentalmente, verifica-se que a concentração total na planta ( $C_{pl}$  –Tabela 6-69) é superior ao valor obtido experimentalmente ( $C_p$  – Tabela 6-70) mas da mesma ordem de grandeza. Pensamos que esta diferença pode ser explicada pelo facto da concentração no solo (155,57 Bq/kg para R₁ e 31,125 para R₂) ser muito elevada e referente à concentração no resíduo, uma vez os valores experimentais foram obtidos em locais fora da área do armazenamento do resíduo, onde se supõe que a contaminação está presente no solo superficial tendo sido transferida por deposição, ressuspensão, irrigação, etc.; o valor experimental refere-se ao local de amostragem distante cerca de 1000 m da escombreira.

Verifica-se que à medida que a concentração de rádio no solo diminui, a concentração na vegetação tende para o valor obtido experimentalmente nestas condições (Tabela 6-71). Verifica-se ainda que a contribuição do rádio pela água de irrigação para a concentração total na planta é muito inferior à que resulta por deposição (Tabela 6-72), o que pode ser justificado pela baixa solubilidade do rádio e na qual estará presente não na forma dissolvida, mas talvez na forma de partículas suspensas.

"Esta divisão entre o cientista e o leigo, contudo, está muito distante da verdade. O cientista não deixou apenas atrás de si o leigo com a sua compreensão limitada; ele deixou para trás uma parte de si mesmo e do seu poder de compreensão, que é ainda a compreensão humana, ao ir trabalhar para o laboratório e começar a comunicar em linguagem matemática.

Hannah Arendt in: "Os mundos da razão"

# Capítulo 7

# Modelo de transferência na cadeia alimentar

# Resumo

Neste capítulo pretende-se descrever a transferência dos radionuclídeos na cadeia alimentar através da trajectória de ingestão de erva de pasto contaminada. A entrada dos radionuclídeos na cadeia alimentar por esta trajectória resulta das transferências sucessivas entre os vários níveis tróficos e é denominada pela trajectória de exposição pasto-vaca-leite. Este processo de sucessivas transferências pode ser traduzido matematicamente por um modelo multicompartimental. Desenvolveu-se um modelo dinâmico para descrever o comportamento dos radionuclídeos nos vários compartimentos que constituem esta trajectória. O modelo dinâmico é definido por um sistema de equações lineares com coeficientes constantes que traduzem o balanço de massa em cada compartimento através dos fluxos de entrada e de saída do compartimento e também do decaimento radioactivo. Os fluxos entre os compartimentos são estimados com um débito de transferência proporcional à quantidade de radionuclídeo que permanece dentro do compartimento. O primeiro modelo para a transferência de radionuclídeos na cadeia alimentar é relativamente simples e clássico e considera como estado inicial um pasto contaminado sendo consumido por uma vaca que produz uma certa quantidade de leite diariamente. Foi ainda desenvolvido um modelo mais sofisticado com base nos modelos biocinéticos desenvolvidos pela International Commission on Radiological Protection considerando a distribuição dos radionuclídeos dentro do organismo pela transferência entre os subcompartimentos envolvidos. Foi feita uma simulação do modelo completo para o rádio e para o polónio. O modelo também foi explorado para o tório, urânio, chumbo, mas apenas no modelo simples, devido quer à falta de relevância dos resultados para enveredar pelo modelo complexo quer devido à falta de dados coerentes necessários para os parâmetros do modelo.

# 7.1 Introdução

A deposição de radionuclídeos (RDN) na erva de pasto pode constituir uma trajectória significativa para a entrada de actividade nos humanos através da ingestão de subprodutos dos animais contaminados.

A contaminação da cadeia trófica pelos RDN libertados no ambiente representa uma elevada componente da exposição humana às radiações ionizantes. A transferência dos RDN para determinados subprodutos dos animais (carne, leite, etc.) pode ser muito rápida em alguns casos (2 a 12 horas); o grau de contaminação depende das propriedades e do metabolismo do elemento em causa, do tipo de alimentação do animal e das práticas agrícolas.

O consumo de produtos contaminados (água ou erva de pasto), bem como a ingestão de solo contaminado constituem a principal trajectória de transferência dos RDN para os animais. A absorção transcutânea não é frequente ocorrer e a inalação é marginal. A transferência para os animais que não se alimentam do pasto (porcos e aves) não é significativa, sendo apenas quantificada a ingestão de produtos armazenados eventualmente contaminados.

Os modelos matemáticos podem simular o transporte e a transferência de RDN na cadeia alimentar. A maioria dos modelos de transferência dos RDN na cadeia alimentar que se encontram na bibliografia é direccionado para um cenário de libertação crónica e condições de equilíbrio entre a vegetação, solo e subprodutos dos animais. Estes modelos de "estado de equilíbrio" não contemplam variações temporais que podem ocorrer durante a transferência dos RDN na cadeia alimentar.

A transferência dos contaminantes do solo para o pasto é regulada por diversos factores dependendo do contaminante, da composição do solo, da fisiologia da espécie da planta, etc. Esta transferência geralmente é quantificada pelo já descrito factor de transferência (FT) definido como o quociente entre a concentração do contaminante na planta ou numa parte da planta e a concentração no solo envolvente, no equilíbrio. Os factores de transferência são variáveis com o contaminante, o tipo de solo, a espécie da planta, o tempo decorrido após a contaminação, etc., e embora este factor permita comparar diferentes elementos ou sistemas solo-planta, não permite qualquer previsão da estimativa da biodisponibilidade dos mesmos.

A natureza do contaminante é um factor importante na transferência soloplanta. A sua deposição no solo, muitas vezes superficial, com fraca penetração na vertical, pode não chegar ao contacto com as raízes e consequentemente não há transferência através das raízes. Por outro lado, a acumulação de um elemento na superfície do solo favorece a contaminação das partes aéreas com as partículas de solo (por ressuspensão). A assimilação do elemento através da absorção foliar é então possível, mas a ingestão das partículas de solo aderentes às folhas é uma trajectória de entrada na cadeia alimentar humana muito mais significativa. As formas químicas e físicas da deposição também são decisivas: apenas os elementos em solução são móveis e interactuam instantaneamente com as componentes do solo. A mobilidade das partículas depositadas depende da cinética da dissolução e também das propriedades do solo como o pH, a humidade e as condições *redox*.

Pretendeu-se desenvolver um modelo dinâmico de transferência dos RDN na cadeia alimentar que descreva a variação da actividade em cada compartimento ao longo do tempo.

### 7.2 Os radionuclídeos principais

Os radionuclídeos presentes nos resíduos resultantes da exploração de urânio e que vão ser susceptíveis de contaminar a erva de pasto essencialmente por deposição, são os constituintes da série do ²³⁸U e do ²³⁵U, de interesse particular deste estudo.

- O ²³⁸U é um emissor de radiação α com uma vida média de 4,47 x 10³ milhões de anos. Tem cerca de 13 descendentes radioactivos (principais) emissores de radiação α, β e γ, incluindo o ²²²Rn (T_{1/2} = 3,82 d) e o ²³⁴U (T_{1/2} = 0,24 milhões de anos). O ²³⁸U e os seus descendentes: ²³⁴Th (T_{1/2} = 24,1 d), ²³⁴Pa (T_{1/2} = 1,18 minutos) e ²³⁴U são essencialmente incorporados pela ingestão e são preferencialmente concentrados nos ossos e no fígado.
- O ²³⁰Th deriva do ²³⁴U, é um emissor de radiação α com um período de 8 x 10⁴ anos, a sua acção atinge os ossos mas entra no organismo principalmente pela trajectória pulmonar (inalação).
- O ²²⁶Ra é um descendente do ²³⁰Th e é um emissor de radiação α com uma semi-vida de 1600 anos. Também actua a nível dos ossos e entra no corpo essencialmente através da ingestão de produtos contaminados. O ²²⁶Ra decai para o gás ²²²Rn com período de semi-vida igual a 3,8 dias. Por sua vez, este RDN decai originando 4 elementos de vida curta: polónio-218 (²¹⁸Po), chumbo-214 (²¹⁴Pb), bismuto-214 (²¹⁴Bi) e o polónio-214 (²¹⁴Po). A sua vida média efectiva é aproximadamente de 30 minutos.
- O ²¹⁰Pb (T_{1/2} = 22,3 anos) é incorporado mais pela inalação do que pela ingestão.
- O ²³²Th é um emissor de radiação α com semi-vida 14,1 x 10³ milhões de anos.
   Origina cerca de 10 descendentes radioactivos emissores de radiação α, β e γ,

incluindo o  220 Rn (T_{1/2} = 55 segundos). O  232 Th entra no organismo essencialmente pela inalação.

- O ²²⁸Ra é um descendente directo do ²³²Th e um emissor de radiação β com uma semi-vida de 5,75 anos. Entra no corpo humano essencialmente pela ingestão de produtos contaminados.
- O ²²²Rn é um descendente gasoso radioactivo do ²³⁸U e do ²³²Th, emana do solo e juntamente com os descendentes emissores de radiação α constitui uma fonte de exposição interna através da inalação.

Na tabela seguinte encontra-se representada a vida média (física, biológica e efectiva) de alguns radioisótopos de interesse radiológico em geral.

lsótopo	Semi-vida dos RDN (dias)			
	T _{Física} (T _d )	T _{Biológica} (T _b )	T _{Efectiva} (T _{eff} )	
⁹⁰ Sr	1,1 x 10 ⁴	1,8 x 10 ⁴	6,8 x 10 ³	
¹²³	0,54	138	0,54	
¹³¹	8	138	7,6	
¹³⁷ Cs	1,1 x 10 ⁴	70	70	
²²⁶ Ra	5,8 x 10⁵	1,6 x 10 ⁴	1,5 x 10 ⁴	
²³⁵ U	2,6 x 10 ¹¹	15	15	
²³⁸ U	4,51 x 10 ⁹	6 a 5000	6 a 5000	

Tabela 7-1: Semi-vida: física, biológica e efectiva, de alguns RDN (Tuszynski & Dixon, 2001).

Os elementos que poderão ser absorvidos e metabolizados nas partes comestíveis dos animais e/ou eliminados pelo leite são os de maior preocupação. Todos estes processos biológicos envolvendo os RDN vão ser regulados por processos complexos que dependem do RDN, da sua forma físico-química, da espécie animal, da sua idade e da composição da sua alimentação. A quantidade absorvida depende essencialmente do tipo de elemento (Tabela 7-2). Existem 3 grandes radiocontaminantes da cadeia alimentar, o iodo (¹³¹I e ¹³³I), o estrôncio (⁸⁹Sr e ⁹⁰Sr) e o césio (¹³⁴Cs e ¹³⁷Cs). Estes são facilmente absorvidos porque seguem a trajectória de um elemento biogénico, ou seja, um elemento vital que no caso do Sr é o Ca e no caso do Cs é o K.

% da quantidade ingerida	RDN
70 – 100 %	lodo (I), césio (Cs), rubídio (Rb)
20 – 70 %	Telúrio (Te), <b>rádio (Ra)</b> , estrôncio (Sr)
1 – 20 %	Ruténio (Ru), prata (Ag), antimónio (Sb)
< 1 %	Actinídeos, zircónio (Zr), nióbio (Nb), cério (Ce)

Tabela 7-2: Absorção digestiva de alguns RDN pelos animais (Naulleau, 2003).

Outros elementos produzidos pela actividade industrial podem ser encontrados nos ecossistemas agrícolas, mas a sua fraca assimilação pelos organismos vivos limita o seu impacto na saúde humana.

Após a ingestão, a fracção de RDN metabolizada é distribuída pelo organismo (tecido muscular, tecido nervoso, tecido conjuntivo, etc.) ou é concentrada num órgão em particular (tiróide, ossos, etc.). É então depois eliminado pelo leite, urina e fezes em maior ou menor quantidade dependendo do comportamento do RDN no organismo que por sua vez vai depender do tempo decorrido após a ingestão, da sua retenção e eliminação do organismo. Em caso de ingestão crónica acaba por se estabelecer um equilíbrio entre a absorção e a eliminação.

A transferência dos RDN para os animais pela ingestão de pasto contaminado e para os humanos pela ingestão dos subprodutos dos animais contaminados pode ser quantificada também por um coeficiente ou factor de transferência (FT). Neste caso, o coeficiente é definido como o quociente entre a actividade nos tecidos (em 1 kg de carne ou 1 L de leite) no equilíbrio e a actividade que é ingerida diariamente na alimentação. Na Tabela 7-3 encontram-se representados alguns FT para os RDN mais estudados de forma genérica. Na Tabela 7-4 encontram-se os FT para os RDN de interesse neste estudo.

Espécie animal e subprodutos	⁹⁰ Sr	¹³¹	¹³⁷ Cs
<u>Bovino</u>			
Leite	0,08 - 0,2	0,5 - 1	0,5 - 1
Carne	0,08	0,4 - 1	3 - 5
Tempo de descontaminação	60 - 100 d	5,2 d	25 - 30 d
<u>Ovelha</u>			
Leite	4 - 6	20	7
Carne	0,36	3	8
Tempo de descontaminação		5,5 d	25 - 30 d
<u>Cabra</u>			
Leite	1,4	20	3-4
Porcos			
Carne	0,2	0,3	10 - 40
Tempo de descontaminação		4,3 - 6,5 d	36 - 52 d
Aves			
Carne	2 - 3,5	0,4 - 2	3 - 1000
Ovos (kg)	30	130 - 280 (gema)	6 - 200 (clara)
Tempo de descontaminação			11 - 18 d

Tabela 7-3: Coeficientes de transferência expressos em % ( ³⁰ Sr, ¹³	I, '°'Cs	s) (Naulleau, 2	003).
--------------------------------------------------------------------------------------------	----------	-----------------	-------

RDN	FT (vegetais)	FT (raízes)	FT (carne bovino)	FT (leite)
	(Bq/kg planta)	(Bq/kg planta)	<u>(Bq/kg músculo)</u>	(Bq/L leite)
	(Bq/kg solo)	(Bq/kg solo)	(Bq/d)	(Bq/d)
Pb	1,0 x 10 ⁻²	6,0 x 10 ⁻³	4,0 x 10 ⁻⁴	2,6 x 10 ⁻⁴
Ро	1,2 x 10 ⁻³	7,0 x 10 ⁻³	5,0 x 10 ⁻³	3,4 x 10 ⁻⁴
Ra	1,9 x 10 ⁻²	2,0 x 10 ⁻³	9,0 x 10 ⁻⁴	1,3 x 10 ⁻³
Th	1,8 x 10 ⁻³	3,3 x 10⁻⁴	4,0 x 10 ⁻⁵	5,0 x 10 ⁻⁶
U	8,3 x 10 ⁻³	1,2 x 10 ⁻²	3,0 x 10 ⁻⁴	4,0 x 10 ⁻⁴

Tabela 7-4: Coeficientes de transferência para os RDN em estudo (Staven et al., 2003).

A informação obtida pelos FT, a concentração da actividade e do tempo de descontaminação são factores importantes podendo levar a definir medidas de contenção que possam prevenir a contaminação da cadeia alimentar, nomeadamente, a remoção dos animais da área contaminada (evitar que os animais pastem no local contaminado), a distribuição de comida e de água não contaminados (para evitar o consumo de alimentos contaminados), e o atraso no tempo de abate (e no consumo consequentemente) até o radioelemento ser eliminado completamente pelo metabolismo do animal.

A transferência dos RDN a partir da ingestão da erva de pasto para o leite (F_m) e para a carne (F_f), definida pelo factor ou coeficiente de transferência, apenas é aplicável em condições constantes de exposição a longo prazo. Um dos problemas no uso deste coeficiente é a necessidade implícita das condições de equilíbrio, que raramente são atingidas, especialmente para os RDN de longa vida relativamente à vida curta dos animais. Além disso, o estado químico e físico, a origem e mesmo a ingestão de outros RDN análogos podem influenciar o coeficiente de transferência são usados em muitos casos sendo a maioria das abordagens baseadas no pressuposto do estado de equilíbrio. Para os modelos dinâmicos, os coeficientes de transferência são combinados com a semi-vida biológica, ou seja, o tempo necessário para que a concentração da actividade no leite ou na carne ser reduzida a metade da concentração inicial.

## 7.3 Descrição do modelo

A transferência dos RDN para a vegetação pode ocorrer segundo duas trajectórias: a deposição (no solo e na vegetação) e a absorção pelas raízes. O cenário a considerar, tratando-se de um cenário rural, vai ser a erva de pasto contaminada pela deposição directa na superfície da vegetação, pela deposição no solo, pela ressuspensão das partículas depositadas no solo com eventual deposição na superfície da vegetação e que constitui a contaminação externa. A absorção pelas raízes dos contaminantes que migrarem no solo, na vertical, vai constituir a contaminação interna da vegetação, apesar desta trajectória não ser muito significativa no caso da fonte de contaminação resultar da deposição de partículas contaminadas com RDN.

### 7.3.1 O modelo conceptual

A ingestão da erva de pasto contaminada vai constituir a trajectória de entrada na cadeia alimentar humana, que pode ser descrita através de uma série de transferências sucessivas entre os compartimentos: solo, pasto (interior e exterior), vaca e leite, tendo como *output*s a concentração da actividade em cada compartimento ao longo do tempo. O *output* no último compartimento (leite) vai constituir a concentração para cálculo da dose de cada RDN ingerido através do consumo do leite da vaca. A estimativa da concentração da actividade no leite fresco da vaca depende dos seguintes processos:

- Deposição no pasto;
- Interceptação da actividade depositada pela erva de pasto;
- Retenção pela erva de pasto durante certo período de tempo;
- Deposição directa no solo;
- Ressuspensão das partículas depositadas no solo e deposição na superfície da erva de pasto;
- Absorção pelas raízes da erva de pasto;
- Ingestão da erva de pasto contaminada;
- Secreção ou eliminação dos RDN pelo leite da vaca;
- Eliminação nas fezes e urina.

A quantidade depositada directamente na superfície das plantas depende da fracção de massa interceptada pela vegetação. Os RDN interceptados e retidos pela vegetação podem resultar da deposição, da irrigação com água contaminada e da deposição de matéria ressuspensa. A deposição externa pode passar para o interior da vegetação se ocorrer a absorção foliar. Os RDN também podem ser absorvidos pelas raízes, seguindo-se uma distribuição interna dos RDN dentro da planta através da translocação.

Os processos que podem levar à redução da concentração dos RDN na vegetação incluem o decaimento radioactivo, a diluição pelo crescimento, a lavagem dos RDN depositados na superfície da vegetação pela chuva ou pela irrigação, a erosão, a volatilização, a evaporação, a lixiviação e a fixação no solo. A pastagem dos animais e a colheita (no caso de alguns frutos) também podem ser considerados processos de remoção.

Após a deposição na erva de pasto, os processos de remoção ambiental juntamente com o decaimento radioactivo reduzem a quantidade inicial depositada na superfície da vegetação por unidade de área do solo. As perdas que ocorrem, à excepção do decaimento, são normalmente agrupadas num só factor, na forma de uma constante de cinética de 1.ª ordem, já definida no capítulo 6. O tempo necessário para que metade da actividade depositada seja removida por processos ambientais ou diluída pelo crescimento da vegetação é definido como o tempo de semi-vida da meteoração ambiental (t_w) e depende do RDN (Miller, 1980), (Hoffman, 1984). Este

parâmetro, juntamente com a vida média do RDN ( $t_d$ ) determina o tempo médio efectivo de retenção na vegetação ( $t_e$ ) e pode ser estimado pela seguinte expressão:

$$t_{e} = \frac{t_{w} \cdot t_{d}}{t_{w} + t_{d}}$$
(7-1)

Podemos ainda definir o débito das constantes que traduzem a diminuição da actividade por remoção ambiental:

$$\lambda_{\rm w} = \frac{\ln(2)}{t_{\rm w}} \tag{7-2}$$

e por decaimento radioactivo:

$$\lambda_{d} = \frac{\ln(2)}{t_{d}}$$
(7-3)

e que estão relacionadas com t_w e com t_d pela seguinte expressão:

$$\lambda_{e} = \lambda_{w} + \lambda_{d} = \frac{\ln(2)}{t_{e}}$$
(7-4)

A diminuição da actividade existente na superfície da vegetação por remoção ambiental ( $\lambda_w$ ) constitui uma transferência de parte da actividade existente na erva de pasto para o solo enquanto que a diminuição da actividade por decaimento radioactivo ( $\lambda_d$ ) constitui uma perda.

A ressuspensão das partículas depositadas no solo constitui uma transferência da actividade para a superfície das plantas.

A redução dos RDN no solo pode ocorrer por diversos processos: decaimento, erosão, mistura com o solo não contaminado, escorrências superficiais, lixiviação, etc. A concentração dos RDN no solo também pode ser reduzida pela absorção pelas raízes e pela subsequente remoção das plantas através do consumo ou da colheita. As perdas que ocorrem na actividade do solo, à excepção do decaimento e da absorção pelas raízes, que não é mais do que um processo de transferência, são normalmente agrupadas num só factor na forma de uma constante de cinética de 1.^a ordem ( $\lambda_b$ ). A transferência do solo para a erva através das raízes é representada pelo factor de transferência FT_{solo/erva} combinado com uma constante de equilíbrio.

Considerando um cenário rural em que a via de transferência da contaminação resulta apenas da deposição na erva de pasto e não havendo irrigação por se considerar que a água da precipitação é suficiente para a manutenção do pasto, os processos envolvidos na transferência da contaminação são: a deposição, a ressuspensão e a absorção pelas raízes. Os processos de contaminação da vegetação já foram descritos em pormenor no capítulo 6 e apesar da contaminação pela deposição na superfície da erva de pasto ser a trajectória de maior expressão também consideramos a absorção pelas raízes. Estes processos de transferência podem ser esquematizados da seguinte forma:





A_d: Fonte inicial de contaminação (deposição atmosférica), (Bq.m⁻².d⁻¹)

k_{ij}: Cinética de transferência (d⁻¹) do compartimento i para o compartimento j

k_{ii}: Cinética das perdas (d⁻¹) do compartimento i

A_i: Actividade ao longo do tempo em cada compartimento, (Bq).

Símbolo	Descrição
F	Interceptação pela erva de pasto (superfície)
1-F	Interceptação pelo solo
	Fluxos (Bq.m ⁻² .d ⁻¹ )
A _d	Deposição total no pasto e no solo
A _s	Deposição no solo (superfície)
A _p	Deposição na vegetação (superfície)
	Constantes cinéticas de transferência (d ⁻¹ )
<b>k</b> ₁₂	Cinética de transferência do solo para o pasto por ressuspensão
<b>k</b> ₂₁	Cinética de transferência da erva para o solo por meteoração
<b>k</b> ₁₃	Cinética de transferência do solo para a erva por absorção pelas raízes
<b>k</b> ₃₁	Cinética de equilíbrio raízes/solo
<b>k</b> ₃₂	Cinética de transferência das raízes para as partes comestíveis (translocação dos
	RDN das raízes para as folhas)
<b>k</b> ₂₄	Cinética de transferência da erva do pasto para a vaca (por ingestão)
<b>k</b> 45	Cinética de transferência da vaca para o leite
	Perdas do sistema (d ⁻¹ )
<b>k</b> ₁₁	Perda de actividade do solo (decaimento e outros processos ambientais)
<b>k</b> ₂₂	Perda de actividade na relva por decaimento (na superfície)
k ₃₃	Perda de actividade na relva por decaimento (raízes)
<b>k</b> 44	Perda de actividade na vaca por decaimento, excreção e eliminação
k ₅₅	Perda de actividade no leite por decaimento radioactivo

Tabela 7-5: Parâmetros envolvidos na transferência de RDN na cadeia alimentar.

Como *output* vamos obter actividade, A_i (Bq), em cada compartimento ao fim de determinado período de tempo.

A transferência de actividade para o leite vai depender da repartição da actividade pelos diferentes órgãos, o que por sua vez vai depender dos RDN em causa pois diferentes RDN têm diferentes comportamentos dentro do organismo, podendo preferencialmente alojar-se num ou noutro órgão. Na bibliografia especializada (Leggett & Eckerman, 1994, 2003) encontram-se descritos os modelos biocinéticos para a distribuição, retenção e eliminação dos RDN dentro do organismo consoante o RDN ou grupo de RDN presentes. No entanto, estes modelos foram desenvolvidos para os humanos, apesar de serem baseados em resultados obtidos com animais em laboratório.

Cada RDN tem à partida um órgão alvo que vai receber a maior parte da actividade retida no organismo. No caso do ²²⁶Ra cerca de 80 % do rádio ingerido é

excretado ao fim de 10 dias e cerca de 20 % é retido e distribuído no organismo mas a absorção ocorre predominantemente no tecido ósseo, ficando imobilizado no esqueleto. O rádio é um elemento e nessa forma não pode ser metabolizado. No tecido ósseo haverá ainda transferência do rádio para o plasma, que será eliminado muito lentamente. Este órgão é representado por dois compartimentos para descrever a transferência do rádio após a sua transferência do plasma para a superfície do osso e deste para o interior do osso. Na parte superficial haverá ainda transferência no sentido inverso, para o plasma.

De acordo com o modelo definido pela *International Commission on Radiological Protection* (ICRP) o tecido ósseo absorve cerca de 30 % do rádio presente no organismo, os tecidos moles cerca de 15 % e cerca de 55 % é excretado (essencialmente pelo intestino) (Leggett & Eckerman, 2003). A maior parte do rádio nos ossos regressa ao plasma em poucos dias. A figura seguinte representa os compartimentos a considerar no caso do rádio.



Figura 7-2: Modelo conceptual da transferência do ²²⁶Ra na trajectória *pasto-vaca-leite* adaptado dos modelos biocinéticos do ICRP (IAEA, 2004).

Para simplificar o sistema desprezamos a actividade transferida do solo para o pasto através das raízes, com base em estudos experimentais descritos na bibliografia (IAEA, 2004) conduzidos durante dois anos e cujos resultados revelaram que a perda ou a transferência de actividade pelas raízes da erva de pasto, no caso do rádio, é desprezável.
O parâmetro f₁ representa a absorção gastrointestinal de cada RDN e exprime a relação entre a concentração de RDN absorvida através do tracto gastrointestinal (GIT) e a concentração total de RDN ingerida.

Na tabela seguinte descreve-se o significado e as unidades de cada parâmetro envolvido nos processos de transferência no interior dos herbívoros, referente ao diagrama da Figura 7-2.

Símbolo	Descrição
	Constantes cinéticas de transferência (d ⁻¹ )
<b>k</b> ₁₂	Cinética de transferência do compartimento 1 para o compartimento 2
<b>k</b> ₂₁	Cinética de transferência do compartimento 2 para o compartimento 1
k ₂₃	Cinética de transferência do compartimento 2 para o compartimento 3
k ₃₄	Cinética de transferência do compartimento 3 para o compartimento 4
<b>k</b> 45	Cinética de transferência do compartimento 4 para o compartimento 5
<b>k</b> 54	Cinética de transferência do compartimento 5 para o compartimento 4
k ₄₇	Cinética de transferência do compartimento 4 para o compartimento 7
k ₅₆	Cinética de transferência do compartimento 5 para o compartimento 6
	Perdas do sistema (d ⁻¹ )
<b>k</b> ₁₁	Perdas do compartimento 1 por migração no solo ( $\lambda_{b})$ e por decaimento ( $\lambda_{d})$
<b>k</b> ₂₂	Perdas do compartimento 2 devido ao decaimento radioactivo ( $\lambda_{\text{d}})$
k ₃₃	Perdas do compartimento 3 por decaimento ( $\lambda_d$ ) e excreção ( $\lambda_6$ )
<b>k</b> 44	Perdas do compartimento 4 por decaimento ( $\lambda_d$ ) e eliminação pela urina ( $\lambda_7$ )
k ₅₅	Perdas no compartimento 5 devido ao decaimento ( $\lambda_d$ )
k ₆₆	Perdas no compartimento 6 devido ao decaimento ( $\lambda_d$ )
<b>k</b> 77	Perdas no compartimento 7 devido ao decaimento ( $\lambda_d$ )

Tabela 7-6: Parâmetros envolvidos na transferência de RDN no modelo biocinético.

O parâmetro  $k_{12}$  representa a ressuspensão do solo para a superfície da vegetação e o parâmetro  $k_{21}$  representa as perdas do compartimento 2 devido à meteoração.

## 7.3.2 Pressupostos e simplificações

Para o caso em que se considera a transferência de RDN pelas raízes:

 Os RDN são distribuídos homogeneamente em apenas uma camada de solo, na qual estão localizadas as raízes.

- As raízes são descritas como uma parte do compartimento do solo e assumese que estão em equilíbrio com o solo. Pressupõe-se ainda que os RDN transferidos do solo para a vegetação são rapidamente incorporados nas partes comestíveis das plantas.
- Assume-se que o consumo de pasto contaminado e o volume da pastagem são constantes o que implica que a relva cresce ao mesmo ritmo a que é consumida.
- O compartimento referente à erva de pasto é subdividido em dois compartimentos para especificar a contaminação externa (por deposição e por ressuspensão do solo) e para quantificar a contaminação interna (absorção pelas raízes). Relativamente a esta transferência, os dados disponíveis na bibliografia encontram-se na forma do factor de transferência no equilíbrio.
- Para a transferência da concentração da actividade entre os compartimentos solo – pasto, adoptou-se uma transferência bidireccional através da absorção das raízes. Pressupõe-se que o equilíbrio é atingido rapidamente para estar de acordo com a introdução do factor de transferência que implica o estado de equilíbrio.
- O modelo de transferência entre os restantes compartimentos é um processo dinâmico.

#### 7.3.3 Descrição do modelo matemático

Na transferência intercompartimental com processos reversíveis, as constantes cinéticas de 1.^a ordem de transferência do compartimento i para o compartimento j representadas por  $k_{ij}$  e  $k_{ji}$ , relacionam-se entre si e com o tempo característico da transferência do compartimento i para o compartimento j, ( $t_k$ ), através das seguintes expressões (IAEA, 2001):

$$k_{ij} + k_{ji} = \frac{1}{t_k}$$
 (7-5)

$$\frac{k_{ji}}{k_{ij}} = FT_{ij}$$
(7-6)

sendo FT_{ij} o factor de transferência no equilíbrio do compartimento i para o j. Se substituirmos estas igualdades no diagrama de transferências obtemos as seguintes expressões:

$$k_{13} + k_{31} = \frac{1}{t_k} e \frac{k_{31}}{k_{13}} = FT_{solo-raizes}$$

#### 7.3.3.1 O modelo de transferência na trajectória pasto-vaca-leite

As equações que descrevem o modelo podem ser enunciadas em termos de um balanço de massa. Para cada compartimento vamos ter uma equação de balanço de massa, especificando os fluxos de entrada e de saída nesse mesmo compartimento. Os fluxos entre os compartimentos são estimados multiplicando uma constante cinética de transferência (k_{ij}) pela quantidade (massa ou actividade) de RDN existente no compartimento. Definiram-se 12 constantes cinéticas de transferência para o diagrama da Figura 7-1, sendo alguns dos valores atribuídos estimados e outros adoptados directamente da bibliografia consultada (IAEA, 2004). A variação da actividade em cada compartimento ao longo do tempo pode ser traduzida pelo seguinte sistema de equações diferenciais:

$$\begin{cases} \frac{dA_1}{dt} = A_d \cdot (1 - F) \cdot A_{solo} - k_{11}A_1 - k_{13}A_1 - k_{12}A_1 + k_{21}A_2 + k_{31}A_3 \\ \frac{dA_2}{dt} = A_d \cdot F \cdot A_{pasto} + k_{12}A_1 - k_{22}A_2 - k_{21}A_2 - k_{24}A_2 + k_{32}A_3 \\ \frac{dA_3}{dt} = k_{13}A_1 - k_{33}A_3 - k_{32}A_3 - k_{31}A_3 \\ \frac{dA_4}{dt} = k_{24}A_2 - k_{44}A_4 - k_{45}A_4 \\ \frac{dA_5}{dt} = k_{45}A_4 - k_{55}A_5 \end{cases}$$

em que A_{solo} representa a área do compartimento solo (m²) e A_{pasto} representa a área do compartimento pasto (m²). Organizando os termos segundo a ordem crescente dos compartimentos, o sistema de equações pode ser escrito da seguinte forma:

$$\begin{cases} \frac{dA_{1}}{dt} = A_{1} \cdot (-k_{11} - k_{13} - k_{12}) + A_{2}k_{21} + A_{3}k_{31} + A_{d} \cdot (1 - F) \cdot A_{solo} \\ \frac{dA_{2}}{dt} = A_{1}k_{12} + A_{2} \cdot (-k_{22} - k_{21} - k_{24}) + A_{3}k_{32} + A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ \frac{dA_{3}}{dt} = A_{1}k_{13} + A_{3} \cdot (-k_{33} - k_{32} - k_{31}) \\ \frac{dA_{4}}{dt} = A_{2}k_{24} + A_{4} \cdot (-k_{44} - k_{45}) \\ \frac{dA_{5}}{dt} = A_{4}k_{45} + A_{5} \cdot (-k_{55}) \end{cases}$$

Este sistema de equações constitui um modelo matemático do processo de transferência de compartimento para compartimento e a sua resolução vai traduzir a

evolução do sistema ao longo do tempo. As variáveis de estado deste processo de ordem 5 são designadas por A₁, A₂, A₃, A₄, A₅. Estas equações exprimem as derivadas de cada variável de estado em ordem ao tempo, em função das variáveis de estado e das entradas externas ou perturbações. As equações diferenciais que definem o processo geral podem ser escritas na forma matricial.

$$\begin{bmatrix} \frac{dA_{1}}{dt} \\ \frac{dA_{2}}{dt} \\ \frac{dA_{3}}{dt} \\ \frac{dA_{4}}{dt} \\ \frac{dA_{5}}{dt} \\ \frac{dA_{5}}{dt} \\ \frac{dA_{5}}{dt} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -k_{11} - k_{13} - k_{12} + k_{21} & + k_{31} & 0 & 0 \\ +k_{12} & -k_{22} - k_{21} - k_{24} & + k_{32} & 0 & 0 \\ +k_{13} & 0 & -k_{33} - k_{32} - k_{31} & 0 & 0 \\ 0 & +k_{24} & 0 & -k_{44} - k_{45} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & + k_{45} & -k_{55} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_{1} \\ A_{2} \\ A_{3} \\ A_{4} \\ A_{5} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot (1 - F) \cdot A_{solo} \\ A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{4} \\ A_{5} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot (1 - F) \cdot A_{solo} \\ A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{5} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot (1 - F) \cdot A_{solo} \\ A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{5} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot (1 - F) \cdot A_{solo} \\ A_{d} - F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot (1 - F) \cdot A_{solo} \\ A_{d} - F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \\ A_{d} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} \\ A_{d} \\ A_{d}$$

As saídas do sistema são normalmente as quantidades que podem ser observadas e medidas. O vector de saída é uma combinação linear do estado e da entrada sendo também designado por vector de observação e pode ser representado pela seguinte equação de observação:  $||Y|| = I \cdot ||A||$ , sendo I a matriz identidade de ordem 5.

A actividade inicial (t = 0) pode ser definida para os dois primeiros compartimentos, solo e pasto, respectivamente. Nos restantes compartimentos a contaminação será nula no instante t = 0.

$$A_{1}(0) = A_{d} \left( Bq \cdot m^{-2} \cdot d^{-1} \right) \cdot \left( 1 - F \right) \cdot A_{solo} \left( m^{2} \right) , \left( \frac{Bq}{d} \right)$$
(7-7)

$$A_{2}(0) = A_{d} \left( Bq \cdot m^{-2} \cdot d^{-1} \right) \cdot F \cdot A_{pasto} \left( m^{2} \right) , \left( \frac{Bq}{d} \right)$$
(7-8)

#### 7.3.3.2 Fluxos, constantes cinéticas de transferência e perdas do sistema

Os parâmetros envolvidos no processo de transferência dos RDN na cadeia alimentar que traduzem os fluxos, as constantes cinéticas de transferência e/ou as perdas do sistema podem ser estimados com as seguintes expressões, que se referem à Figura 7-1, e que cujo conceito e dedução já foram descritos no capítulo 6.

#### • A_s: Deposição no solo

$$A_{s} = A_{d} \cdot (1 - F), (Bq \cdot m^{-2} \cdot d^{-1})$$
 (7-9)

$$F = 1 - e^{(-\mu Y)}, (-)$$
(7-10)

$$A_{d} = C_{ar} \cdot V_{d}, \left(Bq \cdot m^{-2} \cdot d^{-1}\right)$$
(7-11)

$$C_{ar} = C_{s} \cdot R_{e}, (Bq \cdot m^{-3})$$
(7-12)

$$R_{e} = R_{e1} \cdot e^{(-0,15 \cdot \sqrt{t})} + R_{e2}, (m^{-1})$$
(7-13)

Tabela 7-7: Parâmetros necessários à estimativa da deposição de RDN no solo.

Símbolo	Descrição	Unidades
μ	Coeficiente de retenção	m²/kg (peso seco)
Y	Biomassa da erva	kg/m ²
$V_{d}$	Velocidade de deposição	m/d
C _{ar}	Concentração nos aerossóis	Bq/m ³
C _{so}	Concentração no solo superficial	Bq/m ²
R _e	Factor de ressuspensão	m ⁻¹
$R_{e1}, R_{e2}$	Constantes de Anspaugh	m ⁻¹

• A_p: Deposição na erva de pasto

$$A_{p} = A_{d} \cdot F, \left( Bq \cdot m^{-2} \cdot d^{-1} \right)$$
(7-14)

• A_t: Deposição total

$$A_{1} = A_{s} \cdot y + A_{p} \cdot M_{s} \left( Bq \cdot m^{-2} \cdot d^{-1} \right)$$

#### k₁₂: Transferência por ressuspensão dos RDN do solo para a vegetação

A transferência da actividade depositada na superfície do solo para a superfície da vegetação pela acção do vento é obtida pelo produto entre o factor ou coeficiente de ressuspensão ( $R_e$ , m⁻¹) e a velocidade de deposição ( $V_d$ , m/d) (Anspaugh, 1975):

$$k_{12} = R_e \cdot V_d \cdot F, \ d^{-1}$$
 (7-15)

#### • *k*₂₁: Perdas que ocorrem na erva de pasto (factores ambientais ou meteoração)

Estes processos removem a actividade da superfície da vegetação para o solo através da acção do vento e da água da chuva. Também inclui a diminuição da actividade devido à diluição pelo crescimento. Normalmente é adoptado um valor de  $\lambda_w$  = 4,95 x 10^{-2} d^{-1} para quase todos os RDN o que corresponde a uma semi-vida (t_w) de 14 dias.

$$k_{21} = \lambda_w = \frac{\ln(2)}{t_w}, d^{-1}$$
 (7-16)

#### • k₁₃: Absorção pelas raízes

Como o factor de transferência (FT) pressupõe um estado de equilíbrio a constante cinética  $\lambda_{er}$  vai representar a constante de equilíbrio na transferência do solo para as raízes (Teale, 2003). A translocação dos RDN em ambos os sentidos (ascendente ou descendente) do ponto de entrada, ou seja do solo para as raízes e destas para o solo, já foi referida no Anexo H.

$$k_{13} = FT \cdot \left(\frac{M_p}{M_s}\right) \cdot \lambda_{er}, d^{-1}$$
(7-17)

$$M_{s} = \rho_{s} \cdot s_{d}, kg/m^{2}$$
(7-18)

Tabela 7-8: Parâmetros necessários à estimativa da constante cinética de transferência.

Símbolo	Descrição	Unidades
FT	Factor de transferência solo/pasto	(Bq/kg erva)/(Bq/kg solo)
Mp	Biomassa das raízes	kg/m ²
$\lambda_{er}$	Constante de equilíbrio solo/raízes	d ⁻¹
Ms	Massa de solo no compartimento 1	kg/m ²
ρ _s	Densidade do solo	kg/m ³
Sd	Profundidade das raízes	m

Este parâmetro k₁₃ também pode ser estimado pela expressão (7-19) (IAEA, 2001):

$$k_{13} = FT \cdot \left(\frac{W_p}{M_s}\right), d^{-1}$$
(7-19)

O parâmetro W_p representa a produção anual de erva (raízes) devendo posteriormente o resultado ser convertido em unidades de kg.m⁻².d⁻¹. Por analogia com a expressão (7-17) W_p pode ser descrito por:

$$W_{p} = M_{p} \cdot \lambda_{er}$$
(7-20)

#### • k₃₁: Cinética do equilíbrio raízes/solo

Como a introdução do FT implica o estado de equilíbrio ( $\lambda_{er}$ ) representa a constante de equilíbrio raízes/solo:

$$k_{31} = \lambda_{er}, d^{-1}$$
 (7-21)

## • k₃₂: Cinética de transferência das raízes para as partes comestíveis (folhas)

Considerou-se que toda a actividade absorvida pelas raízes é transferida para as partes comestíveis da erva de pasto, ou seja, a actividade é totalmente translocada para as folhas.

$$k_{32} = \frac{\ln 2}{0,693}, d^{-1}$$
 (7-22)

## • k₂₄: Transferência de actividade da erva de pasto para a vaca por ingestão

O parâmetro f₁ tem implícito o factor de transferência erva/leite pela seguinte expressão (Baes et al., 1984):

$$f_{1} = F_{m}\left(\frac{d}{L}\right) \cdot m_{p}\left(L\right) \cdot \lambda_{1/2b}\left(\frac{1}{d}\right) = (-)$$
(7-23)

$$k_{24} = f_1 \cdot \frac{Q_f\left(\frac{kg}{d}\right)}{A_{pasto}\left(m^2\right) \cdot Y\left(\frac{kg}{m^2}\right)} = (d^{-1})$$
(7-24)

Tabela 7-9: Parâmetros envolvidos na transferência dos RDN da erva de pasto para a vaca por ingestão.

Símbolo	Descrição	Unidades
F _m	Factor de transferência pasto/leite	(Bq/L)/(Bq/d)
m _p	Produção de leite (por exemplo, em cada ordenha)	L
$\lambda_{1/2b}$	Constante cinética de transferência para o leite	d ⁻¹
t _{1/2b}	Semi-vida biológica	d
f ₁	Fracção do RDN ingerido transferido para o leite	
Q _f	Ingestão diária de erva de pasto	kg/d
A _{pasto}	Área do pasto	m ²

O factor de transferência pasto/leite representa a fracção da actividade ingerida diariamente no pasto contaminado transferida para o leite.

• k₄₅: Cinética de transferência dos RDN ingeridos na alimentação para o leite

$$k_{45} = \lambda_{1/2b} = \frac{\ln(2)}{T_{1/2b}}, d^{-1}$$
 (7-25)

 k₁₁: Perda de actividade no solo por decaimento (λ_d) e pelos processos ambientais (λ_b - lixiviação e migração no solo)

$$\mathbf{k}_{11} = \lambda_{d} + \lambda_{b}, \, \mathbf{d}^{-1} \tag{7-26}$$

 k₂₂: Perda de actividade por decaimento radioactivo no compartimento 2 (superfície do pasto)

$$k_{22} = \lambda_{d.} d^{-1}$$
 (7-27)

• k₃₃: Perda de actividade por decaimento radioactivo no compartimento 3 (raízes)

$$k_{33} = \lambda_d, d^{-1}$$
 (7-28)

•  $k_{44}$ : Perdas na vaca por decaimento  $(\lambda_d)$ , excreção  $(\lambda_6)$  e eliminação  $(\lambda_7)$ 

$$k_{44} = \lambda_d + \lambda_6 + \lambda_7, d^{-1}$$
 (7-29)

• *k*₅₅: Perda de actividade por decaimento radioactivo no compartimento 5 (leite)

$$k_{55} = \lambda_d, \quad d^{-1}$$
 (7-30)

#### 7.3.3.3 O modelo biocinético de transferência do ²²⁶Ra

No caso de se considerar o modelo biocinético de transferência de RDN no interior do organismo descrito na Figura 7-2, é necessário incluir as equações que descrevem a transferência de RDN para os compartimentos no interior do herbívoro:

$$\begin{cases} \frac{dA_{1}}{dt} = A_{d} \cdot (1 - F) \cdot A_{solo} - k_{11}A_{1} - k_{12}A_{1} + k_{21}A_{2} \\ \frac{dA_{2}}{dt} = A_{d} \cdot F \cdot A_{pasto} + k_{12}A_{1} - k_{22}A_{2} - k_{21}A_{2} - k_{23}A_{2} \\ \frac{dA_{3}}{dt} = A_{2}k_{23} - A_{3}k_{34} - A_{3}k_{33} \\ \frac{dA_{4}}{dt} = A_{3}k_{34} - A_{4}k_{44} - A_{4}k_{45} - A_{4}k_{47} + A_{5}k_{54} \\ \frac{dA_{5}}{dt} = A_{4}k_{45} - A_{5}k_{56} - A_{5}k_{55} - A_{5}k_{54} \\ \frac{dA_{6}}{dt} = A_{5}k_{56} - A_{6}k_{66} \\ \frac{dA_{7}}{dt} = A_{4}k_{47} - A_{7}k_{77} \end{cases}$$

Da mesma forma, podemos adoptar a forma matricial para representar este sistema de equações diferenciais de ordem 7.

$\left[ \underline{dA_1} \right]$		$-k_{11}-k_{12}$	k ₂₁	0	0	0	0	0 ]	A ₁		$d \cdot (1 - F) \cdot A_s$
$\frac{dt}{dA_2}$		k ₁₂	$-k_{22}-k_{21}-k_{23}$	0	0	0	0	0			$d\cdot F\cdot A_p$
$\frac{dt}{dA_3}$		0	k ₂₃	$-k_{34} - k_{33}$	0	0	0	0	A ₂		0
$\left  \frac{dt}{dA_4} \right $	=	0	0	k ₃₄	$-k_{44} - k_{45} - k_{47}$	k ₅₄	k ₆₄	0	A.	+	0
$\left  \frac{dA_5}{dt} \right $		0	0	0	k ₄₅	$-k_{56} - k_{55} - k_{54}$	0	0			0
$\frac{dA_6}{dt}$		0	0	0	0	k ₅₆	$-k_{66}-k_{64}$	0	Δ.		0
$\left\lfloor \frac{dA_7}{dt} \right\rfloor$		0	0	0	k ₄₇	0	0	- k ₇₇	A_		0

Para especificar a transferência dos RDN ingeridos para o tecido muscular, sendo esta a parte que poderá vir a ser consumida (sob a forma de carne contaminada), o processo de transferência é o mesmo adaptando os parâmetros relativos à transferência para o leite aos parâmetros de transferência para o tecido muscular. O grande problema em quantificar esta transferência parece ser a lacuna que se verifica na estimativa da constante de semi-vida dos RDN no tecido muscular e que se traduz pelo facto da estimativa das cinéticas de transferência para o tecido muscular não se encontrarem descritas na bibliografia, mais ainda, a questão de que a concentração atinge o equilíbrio no tecido muscular ao fim de determinado tempo ainda não está totalmente esclarecida.

Na falta de dados referentes às constantes cinéticas a única abordagem possível consiste no recurso aos factores de transferência descritos na bibliografia (FT_{erva - carne}) para a estimativa da concentração da carne para consumo (Staven et al., 2003).

## 7.3.3.4 Fluxos, constantes cinéticas de transferência e perdas do sistema no modelo biocinético

Relativamente ao diagrama da Figura 7-2, os parâmetros  $k_{12}$ ,  $k_{21}$  e  $k_{11}$  têm a mesma designação e a mesma expressão de cálculo do diagrama da Figura 7-1. A designação e a estimativa dos restantes parâmetros do diagrama da Figura 7-2 são descritas a seguir.

$$k_{23} = \frac{Q_{f}\left(\frac{kg}{d}\right)}{A_{pasto}\left(m^{2}\right) \cdot Y\left(\frac{kg}{m^{2}}\right)} = (d^{-1})$$
(7-31)

k₂₃: Cinética de transferência para a vaca através da ingestão da erva de pasto
k₃₄: Cinética de transferência do sistema gastrointestinal (GIT) para o plasma
k₄₅: Cinética de transferência do plasma para a superfície do osso
k₅₄: Cinética de transferência da superfície do osso para o plasma
k₄₇: Cinética de transferência do plasma para o leite
k₅₆: Cinética de transferência do superfície do osso para o volume o osso
k₃₃: Perdas do GIT por decaimento (λ_d) e excreção (λ₆)
k₄₄: Perdas do plasma por decaimento (λ_d) e eliminação (λ₇)
k₅₅: Perdas na superfície do osso devido ao decaimento (λ_d)
k₆₆: Perdas no volume do osso devido ao decaimento (λ_d).

## 7.3.3.5 Estimativa da concentração dos radionuclídeos

A concentração da actividade dos RDN em cada compartimento pode ser calculada pelas seguintes expressões com os dados necessários descritos na Figura 7-10 e na Figura 7-11.

#### Concentração no compartimento 1 (solo), C₁

$$C_1 = \frac{A_1}{A_{\text{solo}} \cdot \rho. \, s_d}$$
(7-32)

Símbolo	Descrição	Unidades
<b>C</b> ₁	Concentração do RDN no solo	Bq/kg (dw ¹ )
<b>A</b> ₁	Actividade do RDN no solo	Bq
ρ	Densidade do solo	kg (dw)/m ³
A _{solo}	Área do compartimento 1 (solo)	m²
S _d	Altura da camada das raízes	m

Tabela 7-10: Parâmetros relativos à estimativa da concentração no solo.

• Concentração no compartimento 2 (erva de pasto), C₂

$$C_2 = \frac{A_2}{A_{\text{pasto}} \cdot Y}$$
(7-33)

Tabela 7-11: Parâmetros relativos à estimativa da concentração na erva de pasto.

Símbolo	Descrição	Unidades
<b>C</b> ₂	Concentração de RDN na erva de pasto	
<b>A</b> ₂	Actividade do RDN na erva de pasto	Bq
A _{pasto}	Área do compartimento 2 (pasto)	m²
Y	Biomassa da erva de pasto	kg (dw)/m ²

A concentração no compartimento 3 (raízes), pode ser obtida substituindo na expressão anterior a biomassa da erva de pasto, Y, (kg (dw)/m²) pela biomassa das raízes, Y_r, (kg (dw)/m²).

## • Concentração nos herbívoros (vaca), C_h

Alguns autores sugerem uma abordagem cinética-alométrica para prever a concentração de RDN nos animais (Higley, 2003). A uma escala biológica esta abordagem consiste em considerar o efeito do peso ou massa dos organismos nas variáveis biológicas. Podemos usar esta abordagem para estimar a concentração de RDN nos herbívoros relacionando a concentração de RDN no pasto ingerido (C_{pa}, Bq/kg, dw) com a concentração do RDN presente no organismo do herbívoro (C_h, Bq/kg, fw) (Avila & Facilia, 2006):

$$R_{c} = \frac{C_{h}}{C_{pa}}$$
(7-34)

$$R_{c} = f_{1}.a_{m}.W_{h}^{b_{m}}$$
 (7-35)

¹ dw - "dry weight", peso seco; fw - "fresh weight", peso húmido.

Símbolo	Descrição
f ₁	Fracção de RDN absorvido
a _m	Coeficiente da relação alométrica
<b>b</b> _m	Expoente da relação alométrica
W _h	Peso do herbívoro ou massa da vaca, kg (fw) ( $W_p = M_v$ )

Tabela 7-12: Parâmetros relativos à estimativa da concentração no herbívoro.

A relação alométrica  $R_c = f_1 \cdot a_m W_h^{b_m}$  pressupõe que (Avila & Facilia, 2006):

- O débito de eliminação do RDN do herbívoro é proporcional à actividade total no seu organismo e ao débito efectivo de eliminação;
- A concentração de RDN no herbívoro mantém-se constante durante a sua vida;
- A diluição devido ao crescimento do herbívoro pode ser desprezada;
- As variações com a idade no consumo de matéria seca e a semi-vida biológica podem ser desprezadas;
- A concentração inicial (na altura do nascimento) no herbívoro é nula.

Desta forma, o quociente entre a concentração de RDN no herbívoro e a concentração de RDN no pasto ingerido pode ser expresso por (Avila & Facilia, 2006):

$$R_{c} = \frac{C_{h}}{C_{pa}} = \frac{Q_{f} \cdot f_{1} \cdot T_{eff}}{0,693 \cdot W_{h}} \cdot \left(1 - e^{\left(-0.6931 \cdot \frac{T_{life}}{T_{eff}}\right)}\right)$$
(7-36)

$$Q_{f} = a_{m1} \cdot W_{h}^{b_{m1}}$$
 (7-37)

 $T_{b} = a_{m2} \cdot W_{b}^{b_{m2}}$  (7-38)

$$T_{life} = a_{m3} \cdot W_{h}^{b_{m3}}$$
 (7-39)

$$T_{eff} = \frac{0,6931}{\lambda_{eff}} = \frac{T_{b} \cdot T_{d}}{T_{b} + T_{d}}$$
 (7-40)

Símbolo	Descrição	Unidades
C _h	Concentração no herbívoro	Bq/kg (fw)
C _{pa}	Concentração no pasto	Bq/kg (dw)
<b>Q</b> _f	Consumo diário de erva de pasto = Q _f	kg (dw)/d
T _b	Semi-vida biológica do RDN	d
T _d	Semi-vida física do RDN	d
T _{life}	Esperança média de via do herbívoro	d
a _{mi} , b _{mi}	Coeficiente e expoente da relação alométrica	

Tabela 7-13: Parâmetros relativos à estimativa das relações alométricas.

## 7.3.4 Conclusões

Os processos independentes dos RDN e os parâmetros relacionados com estes processos podem ser facilmente obtidos através de um programa de caracterização local. O principal problema reside nos processos dependentes dos RDN e nos seus respectivos parâmetros tais como a sorção nos solos, a transferência solo/vegetação e/ou a transferência vegetação/animais.

Os processos de sorção e de fixação no solo influenciam a mobilidade e a disponibilidade dos RDN no solo e por isso são importantes para estimar a lixiviação do RDN e a sua absorção pelas plantas. No capítulo 6 foram descritos em pormenor todos os processos envolvidos na transferência de RDN do solo para a vegetação. Nestes, a sorção dos RDN é descrita através das equações de Langmuir e Freudlich em que a inclinação de uma isotérmica linear corresponde ao coeficiente de distribuição, K_d. Apesar das limitações, este continua a ser o modelo disponível mais prático e conveniente para quantificar a sorção. Outros modelos foram propostos na bibliografia consultada descrevendo a cinética do processo em mais detalhe, mas o seu uso é limitado devido à falta de dados para a sua parametrização (Avila & Facilia, 2006). Seria muito útil se fosse possível determinar valores de K_d representativos de cada local específico que se pretende estudar. Mais uma vez, como a trajectória de principal interesse é a deposição de RDN no pasto e não a absorção destes pelas raízes e uma vez que este assunto já foi abordado em capítulos anteriores não nos debruçaremos em mais detalhe sobre este processo.

O quociente da concentração do RDN solo/planta é um dos parâmetros para os quais existem lacunas substanciais de dados e consequentemente intervalos de confiança pouco fiáveis relativamente a estes valores (Avila & Facilia, 2006). Algumas destas lacunas poderiam, eventualmente, ser suprimidas pela obtenção de dados locais. Contudo, os dados experimentais seriam sempre e apenas representativos de um conjunto de condições ambientais muito limitadas. Por outro lado, se se pretende que o modelo seja usado para simulações a médio ou longo prazo é necessário que o mesmo suporte as variações ambientais previstas. Como no presente caso de estudo a trajectória de contaminação mais significativa ocorre através da deposição atmosférica, não entraremos em pormenores acerca do processo de absorção de contaminantes pelas raízes.

O modelo de transferência para os animais poderia ser testado se fossem medidas as concentrações dos elementos nos animais e na sua alimentação. O mesmo tipo de dados pode ser usado para estimar os coeficientes alométricos em falta para alguns dos RDN com interesse em estudar. O modelo apenas considera neste caso de estudo a transferência através da ingestão de pasto contaminado, mas podem ser adicionadas outras trajectórias de entrada dos RDN tais como a ingestão de água contaminada e a inalação. O modelo tem duas variantes: na primeira, representada no esquema da Figura 7-1, é estimada a concentração total no organismo do herbívoro e na segunda, representada no esquema da Figura 7-2, havendo dados disponíveis da cinética de transferência no interior do organismo, é estimada a concentração nos respectivos órgãos que se comportam como órgãos alvo ou preferenciais.

## 7.4 Exploração do modelo

Os elementos de interesse neste estudo são o ²³⁸U, ²³⁰Th, ²²⁶Ra, ²²²Rn, ²¹⁰Po e o ²¹⁰Pb. No caso do ²¹⁰Pb e o ²¹⁰Po, a contaminação de pasto deve-se essencialmente à deposição directa. No caso do ²³⁸U, ²³⁰Th e do ²²⁶Ra, além da deposição, também pode ocorrer a absorção pelas raízes.

#### 7.4.1 Parâmetros independentes dos radionuclídeos

Os valores para os parâmetros independentes do RDN encontram-se nas tabelas seguintes. Estes parâmetros medem as características ambientais e ecológicas e variam de local para local. Os parâmetros relacionados com a vegetação, com o solo e com a fauna podem ser obtidos através de um programa de caracterização ou estimados com modelos simples. Contrariamente, os parâmetros

relacionados com as características hidrológicas são mais difíceis de obter ou de estimar e podem ter um papel importante na transferência dos RDN do solo para a vegetação através da absorção pelas raízes, nas perdas no solo por lixiviação e na remoção dos RDN da superfície pela água da precipitação. Na tabela seguinte encontram-se descritos os parâmetros independentes do RDN usados no modelo de transferência.

Símbolo	Descrição dos parâmetros	Unidades	Valor	
	Parâmetros relativos à vegetação			
Y	Biomassa	kg/m²	1	
	Parâmetros relativos ao solo			
M _s	Massa de solo no compartimento	kg/m ²	32	
S _d	Profundidade do solo	m	0,10	
$\rho_{s}$	Densidade do solo	kg/m ³	320	
	Parâmetros relativos à fauna			
Q _f	Consumo diário de erva	kg/d	50	
M _v	Massa da vaca	kg	500	
	Parâmetros relativos à deposição			
As	Deposição na superfície do solo	Bq.m ⁻² .d ⁻¹	0,577	
Ap	Deposição na superfície da relva	Bq.m ⁻² .d ⁻¹	0,423	
V _d	Velocidade de deposição	m/d	684	
t	Tempo decorrido após a deposição	d	365	
R _{e1}	Constante de Anspaugh	m⁻¹	10 ⁻³	
R _{e2}	Constante de Anspaugh	m⁻¹	10 ⁻⁸	
μ	Coeficiente de absorção ou de retenção	m²/kg	0,55	
t _w	Semi-vida da meteoração	d	14	

Tabela 7-14: Valores dos parâmetros independentes do RDN (IAEA, 2004), (Makhon 'ko, 1996).

## 7.4.2 Parâmetros dependentes dos radionuclídeos

Os parâmetros que dependem do RDN encontram-se descritos nas tabelas seguintes. Estes são os parâmetros relativos aos processos responsáveis pela diferente distribuição dos RDN em cada compartimento e pela sua saída ou eliminação dos mesmos.

Tabela 7-15: Factores de transferência (FT), coeficientes de distribuição (K _d ), coeficiente (a _m )	) e
expoente (b _m ) das relações alométricas para o Ra, U, e Th (Brown et al., 2003), (Avila & Facil	lia,
2006), (Temerin, 1984), (Teale, 2003).	

RDN	FT	K _d (m³/kg)	<b>a</b> _m (-)	<b>b</b> _m (-)	<b>F</b> ₁ (-)
Ra	2,7	2	14,1	0,08	0,2
U	0,14	0,4	18	0,041	0,0002
Th	0,09	10	0,48	0,013	0,05

O parâmetro f₁ (-) define a fracção absorvida pelo sistema gastrointestinal.

O coeficiente  $\mathbf{a}_m$  e o expoente  $\mathbf{b}_m$  foram estimados com as expressões já descritas anteriormente usando os seguintes valores para cada um dos componentes da expressão (7-35):

- a_{m1} = 0,066 e b₁ = 0,63 para todos os RDN (Nagy, 2001);
- a_{m2} e de b_{m2} encontram-se tabela seguinte para cada RDN (Brown et al., 2003);
- $a_{m3} = 370 \text{ e } b_{m3} = 0,35 \text{ para todos os RDN (Temerin, 1984)}.$

Tabela 7-16: Valores dos parâmetros relativos às relações alométricas (Brown et al., 2003).

RDN	a _{m2}	b _{m2}
Ra	280	0,28
U	5,5	0,28
Th	890	0,8

Os valores da constante cinética de transferência são dependentes do RDN e, consequentemente, da fracção absorvida dependente do RDN em questão. A fracção de absorção para cada RDN encontra-se na representada na Tabela 7-17 de acordo com a *International Commission on Radiological Protection* (Leggett & Eckerman, 2003):

Tabela 7-17: Fracção de absorção de vários RDN pelo sistema gastrointestinal.

Absorção GIT (Leggett & Eckerman, 2003)	f ₁
Rádio (Ra)	0,2
Chumbo (Pb)	0,2
Polónio (Po)	0,5
Tório (Th)	0,0002
Urânio (U)	0,05

# 7.4.3 Exploração do modelo para o rádio (²²⁶Ra)

A tabela seguinte representa os resultados estimados para os coeficientes da matriz, referente ao diagrama da Figura 7-1, em particular para o ²²⁶Ra sendo este o RDN com mais informação descrita na bibliografia, relativamente às constantes cinéticas de transferência. A descrição detalhada dos cálculos efectuados para cada parâmetro é apresentada mais à frente.

Símbolo	Descrição dos Parâmetros				
	Constantes cinéticas de transferência (d ⁻¹ )				
<b>k</b> ₁₂	Ressuspensão do solo para o pasto	0,016			
<b>k</b> ₁₃	Cinética da transferência do solo para as raízes	4,69 x 10 ⁻⁴			
<b>k</b> ₂₁	Cinética de transferência do pasto para o solo por processos ambientais	0,0495			
<b>k</b> ₃₂	Cinética da transferência das raízes para as folhas	1			
<b>k</b> ₃₁	Constante cinética do equilíbrio entre as raízes e o solo ( $\lambda_r$ )	1			
<b>k</b> ₂₄	Cinética da transferência para a vaca por ingestão do pasto contaminado	0,01			
<b>k</b> 45	Cinética de transferência da vaca para o leite	0,2			
	Constantes cinéticas de perdas (d ⁻¹ )				
<b>k</b> ₁₁	Perdas no solo (decaimento, lixiviação e migração)	2,82 x 10 ⁻⁵			
<b>k</b> 22	Perdas por decaimento radioactivo na superfície	1,17 x 10 ⁻⁶			
<b>k</b> 33	Perdas por decaimento radioactivo nas raízes	1,17 x 10 ⁻⁶			
<b>k</b> 44	Perdas na vaca (decaimento, excreção e eliminação pela urina)	2,5			
<b>k</b> 55	Perdas por decaimento radioactivo no leite	1,17 x 10 ⁻⁶			
$\lambda_{d}$	Perda por decaimento radioactivo	1,17 x 10 ⁻⁶			
$\lambda_{\rm b}$	Perda de actividade no solo pelos processos ambientais	2,7 x 10 ⁻⁵			
$\lambda_6$	Cinética de eliminação da vaca através da excreção	2			
$\lambda_7$	Cinética de eliminação da vaca através da urina	0,5			
	Outros parâmetros				
Car	Concentração no ar (ressuspensão do solo) (Bq.m ⁻³ )	1,5 x 10 ⁻³			
As	Deposição no solo (Bq.m ⁻² .d ⁻¹ )	0,577			
Ap	Deposição no pasto (Bq.m ⁻² .d ⁻¹ )	0,423			
Cs	Concentração na superfície do solo ( <i>Input</i> ) (Bq.m ⁻² )	26			
FT	Factor de transferência do solo para a erva de pasto	0,015			
f1	Fracção da absorção do rádio pelo sistema gastrointestinal (GIT)	0,20			

Tabela 7-18: Parâmetros necessários à exploração do modelo na trajectória pasto-vaca-leite.

Na tabela seguinte estão representadas as constantes cinéticas de transferência para o modelo biocinético entre o sistema gastrointestinal (GIT) e os restantes compartimentos para o ²²⁶Ra, sendo este o RDN para o qual foi possível obter mais informação relativamente a estes parâmetros.

Cinética de Transferência ²²⁶ Ra (IAEA, 2004)	Média (d ⁻¹ )	Mínimo (d ⁻¹ )	Máximo (d⁻¹)
$\lambda_1$ (GIT – plasma)	0,2	0,05	0,5
$\lambda_2$ (plasma – superfície dos ossos)	10	3	25
$\lambda_3$ (superfície dos ossos – plasma)	0,5	0,1	1,5
$\lambda_4$ (superfície dos ossos – tecido ósseo)	0,3	0,1	1
$\lambda_5$ (plasma – leite)	0,2	0,05	0,5
$\lambda_6$ (GIT – fezes)	2	0,5	5
$\lambda_7$ (plasma – urina)	0,5	0,15	1,5

Tabela 7-19: Constantes cinéticas de transferência para o ²²⁶Ra.

Relativamente ao diagrama da Figura 7-2, os coeficientes da respectiva matriz encontram-se descritos na tabela seguinte.

Tabela 7-20: Parâmetros necessários à simulação do modelo biocinético para o ²²⁶Ra.

	Constantes cinéticas de transferência (d ⁻¹ ) (IAEA, 2004)	Valor
<b>k</b> ₂₃	Cinética de transferência para a vaca através da ingestão do pasto	5 x 10 ⁻²
<b>k</b> ₃₄	Cinética de transferência do GIT para o plasma	0,2
<b>k</b> 45	Cinética de transferência do plasma para a superfície do osso	10
<b>k</b> 54	Cinética de transferência da superfície do osso para o plasma	0,5
<b>k</b> 47	Cinética de transferência do plasma para o leite	0,2
<b>k</b> 56	Cinética de transferência da superfície para o volume do osso	0,3
	Constantes cinéticas de perdas (d ⁻¹ ) (IAEA, 2004)	Valor
<b>k</b> ₃₃	Perdas do GIT por decaimento ( $\lambda_d$ ) e excreção ( $\lambda_6$ )	2
<b>k</b> 44	Perdas do plasma por decaimento ( $\lambda_d$ ) e eliminação pela urina ( $\lambda_7$ )	0,5
<b>k</b> 55	Perdas na superfície do osso devido ao decaimento ( $\lambda_d$ )	1,17 x 10 ⁻⁶
<b>k</b> 66	Perdas no volume do osso devido ao decaimento ( $\lambda_d$ )	1,17 x 10 ⁻⁶
<b>k</b> 77	Perdas no leite devido ao decaimento ( $\lambda_d$ )	1,17 x 10 ⁻⁶

## 7.4.3.1 Exploração do modelo na trajectória pasto-vaca-leite para o ²²⁶Ra

O modelo foi implementado em Matlab (Control System Toolbox). Foi feita uma simulação para um *input* constante de 1 Bq.m⁻².d⁻¹ na camada de solo superficial. O sistema linear de equações diferenciais que descrevem o sistema dinâmico foi resolvido em Matlab utilizando a abordagem denominada na teoria por "espaço dos estados".

Considerou-se um cenário rural em que a contaminação do pasto resulta apenas da deposição atmosférica não havendo irrigação pois a água da precipitação é

suficiente para a manutenção do pasto. A deposição ocorre com um fluxo de 1 Bq.m⁻ ².d⁻¹. Numa primeira fase, os processos envolvidos na transferência da contaminação para o pasto são a deposição atmosférica, a ressuspensão e a absorção pelas raízes.

O tempo de meteoração (t_w) representa o tempo necessário para a remoção da actividade na superfície da vegetação devido aos processos ambientais (vento, chuva, diluição pelo crescimento, etc.) e por defeito o valor atribuído a este parâmetro é de 14 dias (já referido no capítulo 6).

A remoção da actividade do solo por processos ambientais (migração no solo, lixiviação, erosão, etc.) é representada por  $\lambda_b$  e por defeito o seu valor é de 2,7 x 10⁻⁵ d⁻¹ (já referido no capítulo 6).

A absorção pelas raízes é estimada com o factor de transferência ou de concentração (FT) que representa o quociente entre a concentração da actividade na relva (Bq/kg de pasto) e a concentração da actividade no solo (Bq/kg de solo). Como este factor refere-se ao estado de equilíbrio, considerou-se que este é atingido rapidamente (1 dia) para que seja legítimo usar o FT, no entanto, uma vez que a principal fonte de contaminação resulta da deposição, a absorção pelas raízes não representa uma trajectória de transferência de grande expressão. Nos casos em que a absorção pelas raízes constitui uma importante trajectória de contaminação do pasto, considera-se que a absorção depende da variação da biomassa ao longo do tempo (dY/dt) (Abbott & Rood, 1993). A diminuição da actividade em cada compartimento devido ao decaimento radioactivo é representada por  $\lambda_d$ .

A actividade inicial pode ser definida para os dois primeiros compartimentos: solo e pasto. Nos restantes compartimentos a contaminação será nula no instante inicial, t = 0. Atribui-se a actividade inicial de  $A_1(0) = 577$  Bq para a contaminação no solo superficial e de  $A_2(0) = 423$  Bq para a actividade inicial no pasto. A pastagem tem uma área de 1 000 m² e uma quantidade de relva de 1 kg/m². Considerou-se a biomassa das raízes igual à biomassa das folhas e igual a 1 kg/m². Uma vaca alimenta-se neste pasto consumindo 50 kg/d de relva e produz 12 kg/d de leite.

O sistema de equações que descreve o sistema de transferência na cadeia alimentar pode ser representado pela matriz:

d	$A_1^-$		$\begin{bmatrix} -k_{11} - k_{13} - k_{12} \end{bmatrix}$	+ k ₂₁	+ k ₃₁	0	0	A ₁		577	
<u>d</u>	$\frac{ A_2 }{ A_2 }$		+k ₁₂	$-k_{22} - k_{21} - k_{24}$	+ k ₃₂	0	0	A 2		423	
<u>d</u>	$\frac{dt}{dt}$	=	+ k ₁₃	0	$-k_{33} - k_{32} - k_{31}$	0	0	Α ₃	+	0	
d	A ₄ dt		0	+ k ₂₄	0	$-k_{44} - k_{55}$	0	Α4		0	
	A ₅ dt_		0	0	0	$+k_{45}$	- k ₅₅ _	A ₅		0	

Os coeficientes do sistema de equações e os parâmetros associados podem agora ser quantificados. Alguns dos valores atribuídos aos parâmetros já foram descritos e justificados no capítulo 6.

• F: Fracção de intercepção (capítulo 6)

$$F = 1 - e^{(-\mu Y)}$$

 $\mu = 0.55 \text{ m}^2/\text{kg}$  (peso seco)

Y (erva) =  $1 \text{ kg/m}^2$ 

F = 0,42

• A_s: Deposição no solo (compartimento 1) (Chamberlain, 1970), (Anspaugh, 1975)

$$A_{s} = (1 - F) \cdot A_{d}$$

$$A_{d} = C_{ar} \cdot V_{d}$$

$$C_{ar} = C_{s} \cdot R_{e}$$

$$R_{e} = R_{e1} \cdot e^{(-0.15 \cdot \sqrt{t})} + R_{e2}, m^{-1}$$

$$A_{s} = 0.577 \text{ (Bq.m}^{-2}.d^{-1})$$

Tabela 7-21: Valores dos parâmetros necessários para estimar o fluxo de deposição no solo.

Símbolo	Descrição	Unidades	Valor
A _s	Deposição no solo (superfície)	Bq.m ⁻² .d ⁻¹	0,577
1-F	Intercepção pelo solo	(-)	0,58
F	Intercepção pelo pasto (superfície)	(-)	0,42
A _d	Deposição total no solo e no pasto (Teale, 2003)	Bq.m ⁻² .d ⁻¹	1
V _d	Velocidade de deposição (Makhon, 1996)	m/d	684
C _{ar}	Concentração nos aerossóis (capítulo 6)	Bq/m ³	0,001462
Cs	Concentração no solo superficial (capítulo 6)	Bq/m ²	26
R _e	Factor de ressuspensão (capítulo 6)	m⁻¹	5,7 x 10 ⁻⁵

• A_p: Deposição na erva de pasto (compartimento 2)

 $A_{p} = F \cdot A_{d}, (Bq \cdot m^{-2} \cdot d^{-1})$  $A_{p} = 0,423 (Bq \cdot m^{-2} \cdot d^{-1})$ 

 k₁₁: Perda de actividade do solo (decaimento, λ_d, lixiviação e migração no solo λ_b) (capítulo 6)

 $k_{11} = \lambda_d + \lambda_b \quad d^{-1}$   $\lambda_d (^{226}Ra) = 1,17 \times 10^{-6} d^{-1}$   $\lambda_b = 2,7 \times 10^{-5} d^{-1}$  $k_{11}: 2,82 \times 10^{-5} d^{-1}$ 

• k₁₂: Ressuspensão do solo para a vegetação (capítulo 6), (Makhon, 1996)

 $k_{12} = R_e \cdot V_d \cdot F, d^{-1}$  $R_e = 5.7 \times 10^{-5} m^{-1}$  $V_d = 684 m/d$  $k_{12} = 0.016 d^{-1}$ 

• k₂₁: Perdas que ocorrem na erva de pasto por meteoração (capítulo 6)

$$k_{21} = \lambda_w = \frac{\ln(2)}{t_w}, d^{-1}$$
$$t_w = 14 d$$
$$\lambda_w = 0,0495 d^{-1}$$
$$k_{21} = 0,0495 d^{-1}$$

• k₃₁: Cinética do equilíbrio raízes – solo

$$k_{31} = \lambda_r d^{-1}$$
  
 $k_{31} = 1 d^{-1}$ 

• k₁₃: Absorção pelas raízes (capítulo 6), (Teale, 2003), (IAEA, 2004)

$$\mathbf{k}_{13} = \mathsf{FT} \cdot \left(\frac{\mathsf{Y}}{\mathsf{M}_{\mathsf{s}}}\right) \cdot \mathbf{k}_{31}, \, \mathsf{d}^{-1}$$

$$\begin{split} M_{s} &= \rho_{s} \cdot s_{d}, kg/m^{2} \\ s_{d} &= 0,10 \text{ m} \\ \rho_{s} &= 320 \text{ kg/m}^{3} \\ \text{FT} (^{226}\text{Ra}) &= 0,015 \text{ (Bq/kg de erva)/(Bq/kg de solo)} \\ \text{Y} (raízes) &= 1 \text{ kg/m}^{2} \\ k_{13} &= 4,69 \text{ x } 10^{-4} \text{ d}^{-1} \end{split}$$

• k₂₂: Perda de actividade no pasto (superfície) por decaimento radioactivo

$$k_{22} = \lambda_d, d^{-1}$$
  
 $k_{22} = 1,17 \times 10^{-6} d^{-1}$ 

• k₃₂: Transferência das raízes para as partes comestíveis do pasto (Teale, 2003)

Assume-se que toda a actividade absorvida pelas raízes é incorporada nas folhas, o que equivale a somar a actividade que se deposita nas folhas com a actividade absorvida pelas raízes para estimar a actividade total na relva.

$$k_{32} = \frac{\ln 2}{0,693}, d^{-1}$$

 $k_{32} = 1 d^{-1}$ 

 k₂₄: Transferência de actividade do pasto para a vaca por ingestão (IAEA, 2004), (Baes et al., 1984)

$$k_{24} = f_1 \frac{Q_f}{A_{pasto} \cdot Y}, d^{-1}$$

 $f_1 = 0,2$  (fracção da actividade ingerida que é absorvida pela vaca)

 $A_{pasto}$  = 1000 (área), m²

$$Y = 1, kg/m^2$$

$$Q_f = 50 \text{ kg/d}$$

 $k_{24} = 0,01 \text{ d}^{-1}$ 

• k₃₃: Perda de actividade nas raízes por decaimento radioactivo

 $k_{33} = \lambda_d, d^{-1}$ 

 $k_{33} = 1,17 \times 10^{-6} d^{-1}$ 

 k₄₅: Cinética de transferência dos RDN ingeridos na alimentação para o leite (IAEA, 2004)

$$k_{45} = \lambda_{1/2:b} = \frac{\ln(2)}{T_{1/2:b}}, d^{-1}$$

 $\lambda_{1/2b}$  = 0,2 e t_{1/2b} = 3,465 d (estimado a partir de  $\lambda_{1/2b}$ )

 $k_{45} = 0,2$ 

•  $k_{44}$ : Perdas na vaca (decaimento,  $\lambda_{d}$ , excreção,  $\lambda_{6}$ , e eliminação,  $\lambda_{7}$ ) (IAEA, 2004)

$$k_{44} = \lambda_d + \lambda_6 + \lambda_7, \ d^{-1}$$
$$\lambda_6 = 2 \ d^{-1}$$
$$\lambda_7 = 0.5 \ d^{-1}$$
$$k_{44} = (1.17 \times 10^{-6} + 2 + 0.5) = 2.5 \ d^{-1}$$

• k₅₅: Perda de actividade no leite por decaimento radioactivo

 $k_{55} = \lambda_d, \ d^{-1}$  $k_{55} = 1,17 \times 10^{-6} d^{-1}$ 

Substituindo na matriz os valores de k_{ii} e de k_{ij} para esta simulação:

$$\begin{bmatrix} \frac{dA_{1}}{dt} \\ \frac{dA_{2}}{dt} \\ \frac{dA_{3}}{dt} \\ \frac{dA_{4}}{dt} \\ \frac{dA_{5}}{dt} \\ \frac{dA_{5}}{dt} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -0,01683 & 0,0495 & 1 & 0 & 0 \\ 0,01648 & -0,0595 & 1 & 0 & 0 \\ 4,69 \times 10^{-4} & 0 & -2 & 0 & 0 \\ 0 & 0,01 & 0 & -2,70 & 0 \\ 0 & 0,01 & 0 & -2,70 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,20 & 1,17 \times 10^{-6} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_{1} \\ A_{2} \\ A_{3} \\ A_{4} \\ A_{5} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} 577 \\ 423 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}$$

A actividade do compartimento 1 ou solo é representada por  $A_1$ ; a actividade no compartimento 2 ou pasto/folhas é representada por  $A_2$ ; a actividade no compartimento 3 ou pasto/raízes é representada por  $A_3$ ; a actividade no compartimento 4 ou herbívoro/vaca é representada por  $A_4$  e por fim, a actividade no compartimento 5 ou leite é representada por  $A_5$ . A actividade resultante em cada

compartimento (A_i, Bq), para diferentes horizontes temporais, encontra-se representada nas figuras seguintes.



Figura 7-3: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 1000 dias.



Figura 7-4: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 1000 dias, ampliada no eixo dos yy.



Figura 7-5: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 100 dias.

As concentrações de ²²⁶Ra em cada compartimento (e a sua variação ao longo do tempo) podem ser obtidas dividindo a actividade pelo volume do respectivo compartimento. Considerou-se que a relva cresce ao mesmo ritmo que é consumida, logo o volume da pastagem é constante. Também se considerou a massa de uma vaca adulta constante e igual a 500 kg.

• A concentração no compartimento 1 (C₁ - solo)

$$C_{1} = \frac{A_{1}}{(A_{solo} \cdot \rho_{s} \cdot s_{d})} = \frac{A_{1}}{1000 \text{ m}^{2} \cdot 320 \frac{\text{kg}}{\text{m}^{2}} \cdot 0,10 \text{ m}} = \frac{A_{1}}{32000} \frac{\text{kg}}{\text{kg}}$$

A1: actividade no compartimento 1, Bq;

A_{solo}: área do compartimento 1, 1000 m²;

 $\rho_s$ : densidade do solo, 320 kg/m³;

s_d: altura do compartimento 1 (profundidade da camada de solo superficial) 0,10 m.

• A concentração nos compartimentos 2 e 3 (C₂ – folhas e C₃ raízes)

$$C_{2} = \frac{A_{2}}{\left(A_{pasto} \cdot Y\right)} = \frac{A_{2}}{1000 (m^{2}) \cdot 1 \left(\frac{kg}{m^{2}}\right)} \left(\frac{Bq}{kg}\right) = \frac{A_{2}}{1000} \left(\frac{Bq}{kg}\right)$$

$$C_{3} = \frac{A_{3}}{\left(A_{\text{pasto}} \cdot Y_{\text{r}}\right)} = \frac{A_{3}}{1000 \text{ m}^{2} \cdot 1\left(\frac{\text{kg}}{\text{m}^{2}}\right)} \left(\frac{\text{Bq}}{\text{kg}}\right) = \frac{A_{3}}{1000} \left(\frac{\text{Bq}}{\text{kg}}\right)$$

A₂: actividade no compartimento 2, (Bq)

A₃: actividade no compartimento 3, (Bq)

A_{pasto}: área do compartimento, 1000 (m²⁾

- Y: biomassa da erva do pasto, 1 (kg/m²)
- Y_r: biomassa das raízes, 1 (kg/m²)
  - A concentração no compartimento 4 (C₄ herbívoro)

$$C_{4} = \frac{A_{4}}{M_{herbivoro}} = \frac{A_{4}}{500} \left(\frac{Bq}{kg}\right)$$

Existe alguma controvérsia quanto ao uso das relações alométricas para a estimativa da concentração nos ruminantes. De facto, a revisão de alguns estudos relativos a este assunto levou à conclusão que não há qualquer dependência entre a concentração e o peso ou a massa do organismo para determinados RDN, nos quais

se incluem o urânio, o rádio e o tório (Brown et al., 2003), (Beresford et al., 2004). Por este motivo, optamos por estimar a concentração no herbívoro ( $C_4$ ) a partir do quociente entre a actividade obtida para este compartimento ( $A_4$ ) e a massa do herbívoro ( $M_{herbívoro}$ ).

• A concentração no compartimento 5 (C₅ - leite)

$$C_{5} = \frac{A_{5}(t) - A_{5}(t-1)}{V_{L}} = \frac{A_{5} - A_{5}(t-1)}{12} \left(\frac{Bq}{kg}\right)$$

Tabela 7-22: Parâmetros necessários à estimativa da concentração de ²²⁶Ra em cada compartimento.

Símbolo	Descrição	Unidades	Valor
A _{solo}	Área do compartimento 1	m²	1000
<b>A</b> _{pasto}	Área do compartimento 2	m²	1000
ρ _s	Densidade do solo	kg/m ³	320
S _d	Profundidade da camada de solo	m	0,10
M _{herbívoro}	Massa da vaca	kg	500
VL	Produção de leite	kg	12

A solução para a concentração em cada um dos compartimentos, para diferentes horizontes temporais, está representada nas figuras seguintes:



Figura 7-6: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 1000 dias.



Figura 7-7: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 100 dias (Figura 7-6 ampliada no eixo dos xx).



Figura 7-8: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 50 dias.



Figura 7-9: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 50 dias, ampliada.

A concentração da actividade nas raízes é muito pequena o que vem confirmar, que no caso da deposição ser a principal trajectória de contaminação, a absorção pelas raízes é desprezável.

A concentração da actividade no solo é muito inferior à do pasto pois as folhas da relva interceptam as partículas contaminadas que se depositam. Apenas uma pequena fracção cai no solo e por ressuspensão deposita-se na superfície das folhas. Os valores máximos da concentração são atingidos rapidamente, em menos de 5 dias. Após atingir o máximo, a concentração diminui gradualmente durante vários dias.

## 7.4.3.2 Exploração do modelo biocinético para o ²²⁶Ra

Consideraram-se as mesmas condições anteriores, ou seja, a fonte de contaminação do pasto resulta da deposição atmosférica que ocorre com um fluxo de 1 Bq.m⁻².d⁻¹, bem como as características relativas ao pasto e à vaca. Desprezou-se a absorção pelas raízes tendo em consideração que a deposição é a principal trajectória de contaminação do pasto. Atribui-se a actividade inicial de 580 Bq para a contaminação no solo superficial e de 420 Bq para a actividade inicial no pasto.

As equações de balanço da actividade para o ²²⁶Ra em cada compartimento já foram descritas anteriormente. A seguir são estimados os valores dos coeficientes da matriz composta pelas equações de balanço.

• As condições iniciais:

 $A_{1}(0) = 580 \text{ Bq} - \text{Solo}; A_{2}(0) = 420 \text{ Bq} - \text{Pasto}$   $A_{3}(0) = 0 \text{ Bq} - \text{GIT} \text{ (tracto gastrointestinal)}; A_{4}(0) = 0 \text{ Bq} - \text{Plasma (sangue)}$   $A_{5}(0) = 0 \text{ Bq} - \text{Osso (superfície)}; A_{6}(0) = 0 \text{ Bq} - \text{Osso (volume)}$   $A_{7}(0) = 0 \text{ Bq} - \text{Leite}$ 

• As características locais:

 $A_{solo}$  = área do compartimento solo, m² = 1000 m²

 $A_{\text{pasto}}$  = área do compartimento pasto, m² = 1000 m²

As constantes cinéticas de transferência e perdas do sistema (capítulo 6), (IAEA, 2004), (IAEA, 1994)

 $\lambda_6 = 2 d^{-1}$ 

$\lambda_7 = 0.5 d^{-1}$	
$\lambda_d = 1,17 \times 10^{-6} d^{-1}$	
$\lambda_{b} = 2,7 \times 10^{-5} d^{-1}$	
$k_{11} = \lambda_d + \lambda_b = 1,17 \times 10^{-6} + 2,7 \times 10^{-5} = 2,82 \times 10^{-5} d^{-5}$	1
$k_{22} = 1,17 \times 10^{-6} d^{-1}$	
$k_{33} = \lambda_6 + \lambda_d = 2 + 1,17 \times 10^{-6} = 2 d^{-1}$	
$k_{44} = \lambda_7 + \lambda_d = 0,5 + 1,17 \text{ x } 10^{-6} = 0,5 \text{ d}^{-1}$	
$k_{55} = \lambda_d = 1,17 \times 10^{-6} d^{-1}$	
$k_{66} = \lambda_d = 1,17 \times 10^{-6} d^{-1}$	
$k_{77} = \lambda_d = 1,17 \times 10^{-6} d^{-1}$	
$k_{12} = 1,64 \times 10^{-2} d^{-1}$	
$k_{21} = \ln(2)/t_w = 2,77 \times 10^{-2} d^{-1}$	
$k_{23} = 50 (kg/d)/(1000 \text{ m}^2 \text{ x1 } kg/m^2) = 5 \text{ x } 10^{-2} \text{ d}^{-1}$	
$k_{34} = 0,2 d^{-1}$	
$k_{45} = 10 d^{-1}$	
$k_{65} = 0.5 d^{-1}$	
$k_{47} = 0,2 d^{-1}$	
$k_{56} = 0.3 d^{-1}$	
$k_{54} = 0.5 d^{-1}$	

Substituindo os valores dos coeficientes na matriz para esta simulação, obtemos:

$\left[ \underline{dA_1} \right]$		- 0,0164	0,0495	0	0	0	0	0 ]	$\begin{bmatrix} A_1 \end{bmatrix}$		580	
$\frac{dt}{dA_2}$		0,0164	- 0,0995	0	0	0	0	0	A ₂		420	
dt $dA_3$		0	0,05	- 2,2	0	0	0	0	A ₃		0	
$\frac{dt}{dA_4}$	=	0	0	0,2	-10,7	0,5	0	0	. A ₄	+	0	
$\frac{dt}{dA_5}$		0	0	0	10	- 0,8	0	0	A ₅		0	
$\frac{dA_6}{dt}$		0	0	0	0	0,3	- 1,16 x 10 ⁻⁶	0	A ₆		0	
$\begin{bmatrix} dA_7 \\ dt \end{bmatrix}$		0	0	0	0,2	0	0	$-1,16 \times 10^{-6}$	A ₇		0	

A actividade resultante em cada compartimento (Bq) para esta simulação encontra-se representada nas figuras seguintes.



Figura 7-10: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 700 dias.



Figura 7-11: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 700 dias, ampliada no eixo dos yy.



Figura 7-12: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 450 dias.

As concentrações de ²²⁶Ra em cada compartimento podem ser obtidas da mesma forma já descrita anteriormente, ou seja, dividindo a actividade pelo volume. Considerou-se também que a relva cresce ao mesmo ritmo que é consumida e que a massa da vaca adulta é constante e igual a 500 kg.

#### • A concentração no compartimento 1 (solo)

 $C_1 = A_1/(A_{solo}.\rho_s.s_d) = A_1/(1000 \text{ m}^2 \text{ x } 320 \text{ kg/m}^3 \text{ x } 0,10 \text{ m}) = (A_1/32000) \text{ Bq/kg}$ 

 $A_1$  = actividade no compartimento 1, Bq;

 $A_{solo}$  = área do compartimento 1, 1000 m²;

 $\rho_s$  = densidade do solo, 320 kg/m³;

s_d = altura do compartimento 1 (profundidade da camada de solo superficial) 0,10 m.

#### • A concentração no compartimento 2 (pasto)

$$C_2 = A_2/(A_{pasto} Y) = A_2/(1000 \text{ m}^2 \text{ x 1 kg/m}^2) = (A_1/1000) \text{ Bq/kg}$$

 $A_2$  = actividade no compartimento 2, Bq;

A_{pasto} = área do compartimento 2, 1000 m²;

Y = biomassa da relva, 1 kg/m²;

#### • A concentração nos compartimentos 3 (GIT), 4 (plasma), 5 (osso-sup.) e 6 (osso)

$$C_{3} = A_{3}/(M_{vaca}) = A_{3}/(500 \text{ kg}) = (A_{3}/500) \text{ Bq/kg}$$

$$C_{4} = A_{4}/(M_{vaca}) = A_{4}/(500 \text{ kg}) = (A_{4}/500) \text{ Bq/kg}$$

$$C_{5} = A_{5}/(M_{vaca}) = A_{5}/(500 \text{ kg}) = (A_{5}/500) \text{ Bq/kg}$$

$$C_{6} = A_{6}/(M_{vaca}) = A_{6}/(500 \text{ kg}) = (A_{6}/500) \text{ Bq/kg}$$

M_{vaca} = massa da vaca, 500 kg

A concentração estimada nos compartimentos no interior do organismo são relativos ao peso total da vaca, a rigor deveria ser dividido pela massa do respectivo órgão só assim se obtém a concentração relativa a este compartimento (Salmon et al., 1999).

• A concentração no compartimento 7 (leite)

$$C_7 = \frac{A_7(t) - A_7(t-1)}{V_L}, \frac{Bq}{kg}$$

Produção diária de leite (V_L) = 12 kg

A solução para cada um dos compartimentos encontra-se representada nas figuras seguintes em que a concentração em cada compartimento é representada por:  $C_1$  (solo);  $C_2$  (pasto);  $C_3$  (GIT - tracto gastrointestinal);  $C_4$  (plasma);  $C_5$  (osso - superfície);  $C_6$  (osso - volume) e  $C_7$  (leite).



Figura 7-13: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento.



Figura 7-14: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 500 dias.



Figura 7-15: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 500 dias, ampliada.





Verifica-se que os valores máximos da concentração em cada compartimento (com excepção do compartimento "osso") ocorrem nos primeiros 20 dias.



Figura 7-17: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 120 dias.



Figura 7-18: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 100 dias.



Figura 7-19: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento ao longo de 30 dias (Figura 7-18 ampliada no eixo do xx).

Inicialmente, a concentração na relva é elevada mas ao fim de pouco mais de 1 ano é praticamente nula. A concentração no solo é muito inferior à concentração na relva já que as folhas interceptam a maior parte da actividade que se deposita, além de que a área superficial do solo encontra-se coberta pela pastagem, portanto a deposição no solo é bastante inferior à da pastagem. Nos restantes compartimentos, à excepção do compartimento "osso - volume", a concentração atinge o máximo ao fim de aproximadamente 13 dias, a partir do qual decresce até ser praticamente nula. No caso do compartimento "osso - volume" a concentração aumenta até atingir um patamar o que significa que há retenção do rádio até se atingir um equilíbrio, como ocorreria no caso do cálcio. As perdas deste compartimento devem-se apenas ao decaimento radioactivo com uma cinética de 1,17 x  $10^{-6}$  d⁻¹ o que é praticamente desprezável.

Nos modelos biocinéticos desenvolvidos pela International Commission on Radiological Protection relativamente à absorção, distribuição e excreção do rádio no organismo, os resultados obtidos indicam que cerca de 15 a 21 % do rádio ingerido é absorvido no tracto gastrointestinal (Leggett & Eckerman, 2003).

Os modelos biocinéticos caracterizam matematicamente o movimento, a translocação, o destino, a deposição e a excreção de uma substância no organismo tentando prever o seu destino final e o tempo que permanece no interior do organismo. Os modelos biocinéticos assumem transferências cinéticas de 1.ª ordem de um compartimento para o seguinte através de simples equações de balanço de massas.

O rádio é um elemento e nesta forma não é metabolizado. Quimicamente é semelhante ao cálcio (Grupo II da tabela periódica dos elementos) pelo que é depositado em sistemas biológicos semelhantes aqueles em que se deposita o cálcio sendo mesmo classificado como um "pesquisador de ossos" (*bone-seeking radionuclide*), pois o tecido ósseo é o seu órgão alvo (Leggett & Eckerman, 2003).

Quando administrado nos humanos para fins terapêuticos, ou nos animais para fins experimentais, o rádio encontra-se na forma de uma solução de cloreto de rádio ou outra forma rapidamente solúvel em compostos iónicos. Não existe, no entanto, muita informação acerca da forma química do rádio nos fluidos do corpo humano (BEIR, 1988).

Após a entrada no organismo, o rádio é distribuído rapidamente pelos tecidos havendo um decréscimo da sua quantidade no sangue. Posteriormente aparece na urina e nas fezes. A retenção nos tecidos, incluindo os tecidos das glândulas mamárias através dos quais uma parte do rádio é eliminada pela secreção no leite, diminui ao longo do tempo após ter atingido um valor máximo pouco tempo depois da sua entrada no sangue. As perdas são mais rápidas nos tecidos moles e os ossos são o principal depósito do rádio no organismo. A razão fundamental para este facto devese à semelhança química entre o rádio e o cálcio. A quantificação do rádio no osso é feita relativamente à quantidade de cálcio presente: 0,037 Bq ²²⁶Ra/g Ca, e esta relação ²²⁶Ra/Ca permanece praticamente constante ao longo de toda a vida do organismo (Harley, 2003).

Quanto à distribuição do rádio do transferido do GIT para o sangue, o seu percurso é semelhante ao do cálcio apesar dos fluxos entre os compartimentos considerados serem diferentes nos dois casos. Após a exposição por via oral, cerca de 80 % do rádio absorvido passa do sangue para os intestinos e é eliminado pelas fezes numa primeira fase. Na segunda fase, a maioria dos restantes 20 % é eliminada muito lentamente. O rádio deposita-se em muito maior quantidade nos ossos do que no tecidos moles. Grande parte do rádio depositado nos ossos regressa ao plasma ao fim de algumas semanas, mas uma fracção (± 16 %) é retida e move-se para fora do osso mais lentamente, provavelmente devido à já referida remodelação do osso. Em humanos adultos a retenção do rádio no esqueleto diminui até cerca de 10 % da quantidade injectada ao fim de 1 mês. Após 25 anos, a retenção no esqueleto diminui cerca de 1 % (Leggett & Eckerman, 2003)

Apesar da grande parte do rádio presente no interior do organismo ser excretada em pouco tempo, existe uma parte que permanece no organismo para toda a vida. A deposição nos ossos ocorre em dois compartimentos: "osso-superfície", no qual o rádio é retido por curtos períodos de tempo ocorrendo constantes trocas com o plasma, e o compartimento "osso-volume" no qual o rádio e retido por longos períodos de tempo. Não é possível efectuar observações directas da retenção de rádio nestes compartimentos e a informação disponível resulta de estudos "*postmortem*" e dos resultados dos modelos biocinéticos (BEIR, 1988). Segundo o ICRP, o rádio é removido do compartimento "osso-volume" com uma semi-vida de 1205,1 dias o que significa uma cinética de transferência de 5,75 x 10⁻⁴ d⁻¹. O processo de remoção do compartimento "osso-volume" (6) e a sua transferência para o compartimento plasma (4) é descrito pela constante  $k_{64} = 5,75 \times 10^{-4} d^{-1}$  de acordo com a alteração ao modelo conceptual para incluir esta transferência ( $k_{64}$ ) representada na Figura 7-20.


Figura 7-20: Modelo biocinético incluindo a transferência do compartimento 6 para o 4.

Com esta alteração, as equações do balanço de massas entre os compartimentos 4 e 6 dadas pelas expressões diferenciais  $A_4$  e  $A_6$ , passam a ser:

$$\frac{dA_4}{dt} = A_3 k_{34} - A_4 k_{44} - A_4 k_{45} - A_4 k_{47} + A_5 k_{54} + A_6 k_{64}$$
$$\frac{dA_6}{dt} = A_5 k_{56} - A_6 k_{66} - A_6 k_{64}$$

Os resultados obtidos relativos à actividade (Bq) encontram-se representados nas figuras seguintes:



Figura 7-21: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4.

Verifica-se que remoção do rádio depositado no compartimento "osso-volume" ocorre muito lentamente e em pequena quantidade o que parece estar relacionado com o crescimento e com os processos de remodelação do osso (BEIR, 1988).



Figura 7-22: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4, durante 500 dias.



Figura 7-23: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4, durante 500 dias, ampliada no eixo dos yy.



Figura 7-24: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4, durante 300 dias.



Figura 7-25: Variação da actividade (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4, durante 100 dias.

As figuras seguintes representam a concentração considerando a transferência do compartimento "osso-volume" para o plasma:



Figura 7-26: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4.

Da mesma forma, verifica-se que a concentração de ²²⁶Ra no interior do osso decresce muito lentamente. A concentração máxima é atingida o fim de 500 dias, e ao fim de 2500 dias a concentração apenas diminuiu cerca de 13 % do valor máximo.



Figura 7-27: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4, durante 400 dias.



Figura 7-28: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4, durante 100 dias.



Figura 7-29: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4, durante 50 dias.



Figura 7-30: Variação da concentração (²²⁶Ra) em cada compartimento, com a transferência do compartimento 6 para o compartimento 4, durante 30 dias.

O ²²⁶Ra foi o RDN para o qual se conseguiu reunir mais informação relativamente às constantes cinéticas de transferência. Alguns dos valores dos parâmetros que descrevem a translocação da actividade no esqueleto são genéricos e baseados na informação fisiológica da reestruturação do osso. Os valores para outros parâmetros são específicos do elemento e foram seleccionados a partir de dados disponíveis do elemento de interesse em estudar e da sua fisiologia análoga em sujeitos humanos e animais laboratoriais.

#### 7.4.3.3 Discussão dos resultados (²²⁶Ra)

Apresentou-se um modelo multicompartimental dinâmico que descreve a contaminação da cadeia alimentar pela trajectória *pasto-vaca-leite*. A exploração do modelo foi feita para o rádio.

Apesar de o rádio ser um radionuclídeo de ocorrência natural que representa uma elevada preocupação ambiental na mineração e no processamento de urânio bem como em outras indústrias que envolvam também radionuclídeos de ocorrência natural, existe uma lacuna de dados de qualidade fiável que permitam descrever e modelar a sua transferência para a biota e posterior contaminação da cadeia alimentar. Na bibliografia é enfatizado que a incerteza dos parâmetros de transferência constitui o maior contributo na incerteza na avaliação da dose resultante de alguns RDN para a biota (Beresford et al., 2004).

Os modelos matemáticos que descrevem o comportamento biológico de um elemento ou contaminante ambiental são frequentemente descritos por um sistema de equações diferenciais ordinárias com coeficientes constantes. Os esforços recentes para incorporar maior realismo fisiológico e biológico na estrutura dos modelos biocinéticos aumentaram a complexidade matemática destes modelos.

Os modelos dinâmicos podem fornecer uma descrição detalhada do comportamento dos RDN ao longo do tempo na transferência pela trajectória *pasto-vaca-leite*. Os parâmetros usados nos modelos dinâmicos constituem as constantes específicas dos processos envolvidos na transferência. Na grande maioria dos casos estes dados não se encontram disponíveis para um local específico sendo necessário recorrer a valores descritos na bibliografia.

A transferência de RDN a partir da deposição no pasto para o leite da vaca pode ocorrer por várias trajectórias sendo a mais importante a que ocorre segundo a trajectória *pasto-vaca-leite*.

A transferência da contaminação pode ocorrer por outras trajectórias além da deposição no pasto e subsequente ingestão do pasto contaminado, nomeadamente pela ingestão de: i) solo contaminado, ii) água contaminada, iii) produtos contaminados armazenados e vi) por inalação de poeiras contaminadas. No conjunto, estas trajectórias são cerca de 10 vezes menos importantes do que a transferência com origem na deposição no pasto.

Os parâmetros mais relevantes envolvidos na exposição através da trajectória *pasto-vaca-leite* são a interceptação pela vegetação, o tempo médio de retenção na vegetação (T_{eff}), a quantidade de pasto contaminado ingerido pela vaca e as cinéticas de transferência no interior da vaca.

Uma vez que a absorção pelas raízes não é uma trajectória de transferência importante quando a principal origem da contaminação resulta da deposição (IAEA, 2003a), os processos que apresentam maior falta de dados são os processos de transferência dos quais resultam as constantes cinéticas. Estas constantes cinéticas dependem do compartimento de transferência a que se referem e do RDN, principalmente no interior do organismo já que diferentes RDN têm diferentes órgãos alvos.

No caso da absorção pelas raízes ter um contributo importante na transferência, a sua estimativa é dependente do débito do crescimento da planta (dY/dt) e do factor de concentração planta – solo (FT_{solo-pasto}) (Abbott & Rood, 1993).

A variação da concentração no leite foi estimada com base nas cinéticas de transferência para cada compartimento no interior da vaca obtidas pelos modelos biocinéticos da International *Commission on Radiological Protection* (ICRP, 1993).

Os resultados obtidos nas simulações feitas parecem estar coerentes com alguns resultados descritos na bibliografia relativamente à transferência dos RDN pela trajectória *pasto-vaca-leite* (Leggett & Eckerman, 2003), (IAEA, 2004), (Beresford et al., 2004) bem como algumas medições efectuadas durante 8 meses num caso de estudo descrito na bibliografia, em que os níveis de rádio no leite variaram de 10,7 a 35,9 mBq/L, o que equivale a um valor médio de 23,3 mBq/L (IAEA, 2004).

Os valores obtidos no modelo biocinético para a concentração no leite no primeiro caso de exploração variaram entre 19 e 50 mBq/L para o mesmo intervalo de tempo (8 meses ou 245 dias). Nos resultados obtidos para o segundo caso de exploração, a concentração no leite variou entre 8 mBq/L e 40 mBq/L sendo o valor médio resultante (24 mBq/L) muito próximo da média dos valores medidos. É de referir que esta comparação teve por base a exploração do modelo com os valores de alguns parâmetros que constam neste estudo descrito na bibliografia (IAEA, 2004).

Foi feita uma exploração para os restantes radionuclídeos nomeadamente para o urânio, chumbo, polónio e tório. A simulação para cada um destes RDN foi feita com os escassos e dispersos dados existentes na bibliografia consultada referentes à actividade e à concentração no solo superficial e na erva de pasto.

# 7.4.4 Exploração do modelo para o urânio (²³⁵U e ²³⁸U)

O urânio natural é fracamente radioactivo e é composto por 3 isótopos, como já foi referido anteriormente: ²³⁸U (99,27 %), ²³⁵U (0,718 %) e ²³⁴U (0,0056 %). O ²³⁸U constitui mais de 99 % da massa do urânio natural e é o menos radioactivo dos 3 isótopos.

A ingestão de urânio incorporado nos alimentos e na água tem sido amplamente estudada. O urânio que entra no organismo através da ingestão é fracamente absorvido no tracto digestivo, mesmo na forma mais solúvel, apenas 0,2 a 2 % do urânio ingerido nos alimentos ou na água é absorvido no tracto gastrointestinal.

Cerca de 98 % da quantidade de urânio (²³⁸U, ²³⁵U, ²³⁴U) que entra no organismo por ingestão é excretado nas fezes dentro de poucos dias após a ingestão sem entrar na corrente sanguínea e cerca de 90 % do urânio absorvido é eliminado na urina também dentro de poucos dias (Donald, 2001). A semi-vida biológica da eliminação do urânio na urina é de 180 a 360 dias (Donald, 2001). A quantidade exacta eliminada depende da forma química presente na corrente sanguínea.

A fracção que permanece no organismo é transferida para a corrente sanguínea sendo uma pequena quantidade transferida para os rins, ossos e tecidos moles (WHO, 2003). O urânio acaba por ser um problema toxicológico antes de ser um problema radiológico, apresentando uma acumulação a longo prazo nestes órgãos, em particular nos rins. A deposição de urânio nos rins ocorre em quantidades normalmente consideradas triviais do ponto de vista radiológico mas este órgão é

afectado principalmente pela sua toxicidade química uma vez que grande parte do urânio é excretada através da urina. Esta é a principal preocupação na saúde pública a curto prazo enquanto que a longo prazo o urânio incorporado afecta os ossos: os rins são o órgão alvo e ossos são o principal reservatório do urânio.

A sua distribuição no organismo ocorre geralmente da seguinte forma: 66 % no esqueleto, 16 % no fígado, 8 % nos rins e os restantes 10 % distribuem-se nos tecidos moles. A absorção típica de urânio no organismo é de 2 % se este estiver na forma solúvel ou 0,2 % se o urânio estiver na forma insolúvel (WHO, 2003). Os compostos insolúveis de urânio com taxa de absorção muito baixas apresentam menor toxicidade para os rins. O ICRP (2006) recomenda que se use na estimativa da dose, a fracção de urânio absorvida e posteriormente transportada e retida nos órgãos alvo (f₁) igual a 0,02 para todas as formas ingeridas.

Garner (1963) (NCRP, 1980) estudou a toxicidade do urânio nos animais e a sua potencial transferência para a cadeia alimentar e consequentemente para o homem. Nos seus estudos este autor concluiu que o urânio não é significativamente acumulável nos tecidos comestíveis dos animais nem excretado em quantidades significativas no leite. Outros autores, Chapman & Hammons (1963) (NCRP, 1980) são mais precisos e quantificam a transferência do urânio para o leite de vaca em 0,2 % da quantidade de urânio que entra no organismo diariamente, enquanto que cerca de 99 % é excretado nas fezes (NCRP, 1980).

O urânio pode ser um elemento extremamente tóxico se entrar no organismo na forma solúvel apesar de não haver muita informação acerca do conteúdo de urânio na dieta dos animais e pouca ou mesmo nenhuma informação relativa à toxicidade do urânio nos animais de pasto. Na bibliografia existem referências da actividade de ²³⁸U natural medida no leite em diversos locais e este parâmetro encontra-se dentro do intervalo de 0,1 a 17 mBq/kg sendo cerca de 20 vezes inferior para o ²³⁵U (IAEA, 2003b).

### 7.4.4.1 Exploração do modelo na trajectória pasto-vaca-leite para ²³⁵U e ²³⁸U

Os parâmetros dependentes do RDN, nomeadamente, k₁₃, k₃₁, k₃₂, k₂₄, k₄₅, k₁₁, k₂₂, k₃₃, k₄₄ e k₅₅ terão de ser recalculados. Todos os outros parâmetros que não dependam do RDN serão iguais à exploração do modelo para o rádio. Na tabela seguinte estão representados os resultados estimados para os coeficientes da matriz no modelo simples.

Tabela 7-23: Constantes cinéticas de transferência para o ²³⁵U e ²³⁸U (Braithwaite, 1997), (NCRP, 1980), (Leggett & Pellmar, 2003).

Constantes cinéticas de transferência	(d ⁻¹ )
Ressuspensão do solo para o pasto	0,041
Cinética da transferência do solo para as raízes	9 x 10 ⁻⁷
Cinética de transferência do pasto para o solo por processos ambientais	0,0495
Cinética da transferência das raízes para as partes comestíveis	1
Constante cinética do equilíbrio entre as raízes e o solo ( $\lambda_r$ )	2,4 x 10 ⁻³
Cinética da transferência para a vaca por ingestão	0,0001
Cinética de transferência da vaca para o leite	0,002
	Constantes cinéticas de transferênciaRessuspensão do solo para o pastoCinética da transferência do solo para as raízesCinética de transferência do pasto para o solo por processos ambientaisCinética da transferência das raízes para as partes comestíveisConstante cinética do equilíbrio entre as raízes e o solo ( $\lambda_r$ )Cinética da transferência para a vaca por ingestãoCinética de transferência da vaca para o leite

Tabela 7-24: Constantes cinéticas de perdas para o ²³⁵U e ²³⁸U (Leggett & Pellmar, 2003), (ICRP, 2006).

	Constantes cinéticas de perdas	(d ⁻¹ )
<b>k</b> ₁₁	Perdas no solo (decaimento, lixiviação e migração no solo)	2,70 x 10 ⁻⁵
<b>k</b> ₂₂	Perdas por decaimento radioactivo na superfície	2,67 x 10 ⁻¹²
<b>k</b> ₃₃	Perdas por decaimento radioactivo nas raízes	2,67 x 10 ⁻¹²
$k_{44}$	Perdas na vaca (decaimento, excreção e eliminação pela urina)	1,56 x 10 ¹
<b>k</b> 55	Perdas por decaimento radioactivo no leite	2,67 x 10 ⁻¹²
$\lambda_{d}$	Constante física de decaimento radioactivo	2,67 x 10 ⁻¹²
$\lambda_{b}$	Perda de actividade no solo pelos processos ambientais	2,70 x 10 ⁻⁵
$\lambda_6$	Cinética de eliminação da vaca através da excreção	1,20 x 10 ⁻¹
λ7	Cinética de eliminação da vaca através da urina	1,54 x 10 ¹

Tabela 7-25: Outros parâmetros necessários à exploração do modelo para o ²³⁵U e ²³⁸U.

	Outros parâmetros	Valor
C _{ar}	Concentração no ar (ressuspensão do solo) (Bq.m ⁻³ )	5,05 x 10 ⁻⁷
$\mathbf{A}_{\mathbf{s}}$	Deposição no solo (Bq.m ⁻² .d ⁻¹ )	0,577
$\mathbf{A}_{\mathbf{p}}$	Deposição no pasto (Bq.m ⁻² .d ⁻¹ )	0,423
Cs	Concentração na superfície do solo (Input) (Bq.m ⁻² )	9,0 x 10 ⁻³
FT	Factor de transferência do solo para a erva de pasto	0,012
f ₁	Fracção da absorção do urânio pelo sistema gastrointestinal (GIT)	0,002

Na bibliografia consultada não foi possível encontrar um valor para a cinética de transferência do ²³⁵U para o leite, apesar da Agência Internacional de Energia Atómica (IAEA, 2003b) referir que cerca de 0,2 % da quantidade de urânio que entra no organismo é efectivamente transferida para o leite. A cinética de transferência pode ser estimada combinando a semi-vida da remoção com a fracção que se deposita

neste compartimento (Leggett & Pellmar, 2003). Se considerarmos que 0,2 % de urânio é transferido para o leite e que a semi-vida do metabolismo do urânio no leite é de 0,693 d então a cinética de transferência para o leite pode ser estimada pela seguinte expressão (Baes et al., 1984):

$$k_{45} = \frac{0.2}{100} \cdot \frac{\ln(2)}{0.693} = 0.002 \text{ d}^{-1}$$

Os dados referentes ao urânio não são abundantes, como já foi referido, no entanto no quadro seguinte estão representados alguns valores referentes ao ²³⁵U compilados da bibliografia consultada.

Fonte	Bq/kg	Bq
MinUrar (Urgeiriça) (Falcão et al., 2005)		
Solo superficial (excluindo as zonas mineiras)	26,3	8,42 x 10 ⁵
Aerossóis (μBq.m⁻³)	0,505	
Exmin (Urgeiriça) (EXMIN, 2003)		
Solo superficial	0,082	2,62 x 10 ³
IAEA (IAEA, 2003b)		
Solo superficial	1,152	3,69 x 10 ⁴
Plantas	0,0553	55,3
Leite de vaca	4,2 x 10 ⁻⁴	
Aerossóis (µBq.m ⁻³ )	0,0144	
"Fernald site" (DOE, 2003)		
Solo superficial	30,24	9,68 x 10⁵
Plantas	1,9 x 10 ⁻⁴	0,19
Leite (valor máximo)	0,407	

Tabela 7-26: Valores da concentração de ²³⁵U referentes a diversos locais.

Foi feita uma simulação com um *input* constante de 1 Bq.m⁻².d⁻¹ para a deposição em cada um dos casos descritos na tabela anterior.

Na bibliografia consultada referente à zona mineira da Urgeiriça (Falcão et al., 2005) não há valores referentes à concentração de urânio no pasto, apenas há valores para a concentração de ²²⁶Ra e para o ⁴⁰K nos vegetais, por isso considerou-se nula a actividade inicial no pasto, nos casos em que não há informação relativamente a este parâmetro.

A velocidade de deposição (V_d, m.s⁻¹) foi estimada a partir da taxa de deposição ( $t_{xd} = 8,6 \text{ g.m}^{-2}.d^{-1}$ ) obtida na zona da Urgeiriça para uma densidade dos aerossóis (d_a, g.m⁻³) igual a 5 µg/m³, valor típico para zonas rurais (EXMIN, 2003):

$$V_{d} = \frac{t_{xd}}{d_{a}} = \frac{8,6x10^{-3} \frac{g}{m^{2} \cdot d}}{5x10^{-6} \frac{g}{m^{3}}} = 1720 \frac{m}{d}$$

Em cada caso de exploração considerou-se o valor médio da actividade no solo e no pasto para a actividade inicial nos respectivos compartimentos.

Para o primeiro caso, a concentração de ²³⁵U medida no solo da Urgeiriça (excluindo as zonas mineiras) e que consta no relatório MinUrar é igual a 26,3 Bq/kg (Falcão et al., 2005). Adoptou-se para a actividade inicial no solo 8,42 x  $10^5$  Bq de forma a obter esta concentração inicial. A actividade na vegetação foi considerada nula. A figura seguinte representa os resultados obtidos no modelo para as condições iniciais:  $A_{1(0)} = 8,42 \times 10^5$  Bq e  $A_{2(0)} = 0$  Bq.



Figura 7-31: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto ( 235 U), respectivamente: A₁₍₀₎ = 8,42 x 10⁵ Bq e A₂₍₀₎ = 0 Bq.

A actividade resultante no leite de vaca aumenta até 0,53 Bq e a respectiva concentração aumenta até 0,00044 Bq/kg, para o horizonte temporal de 120 dias (figuras a; b; c; d). Estabeleceu-se o limite temporal de 100 000 dias na exploração representada nas figuras e; f (ampliação da figura e) para verificar a diminuição da actividade no leite ao longo do tempo uma vez que a semi-vida deste RDN é igual a 1 x  $10^9$  anos o que implica muito tempo para que se verifique a sua diminuição no organismo. Apesar de poucos destes animais (menos que 25 %) viverem mais do que

7 anos, podem chegar aos 25 anos (9125 dias). O valor máximo obtido no modelo para a concentração no leite é de 0,371 Bq/kg. No segundo caso, a concentração de ²³⁵U no solo superficial na zona da Urgeiriça é igual a  $A_{1(0)} = 0,082$  Bq/kg (EXMIN, 2003). Adoptou-se para a actividade inicial no solo o valor de 2,62 x 10³ Bq e considerou-se a actividade na vegetação igual a zero  $A_{2(0)} = 0$  Bq/kg.



Figura 7-32: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto ( 235 U), respectivamente: A₁₍₀₎ = 2,62 x 10³ Bq e A₂₍₀₎ = 0 Bq.

A actividade resultante no leite aumenta até 0,0017 Bq e a respectiva concentração aumenta até 1,40 x  $10^{-6}$  Bq/kg, para o horizonte temporal de 120 dias

(figuras a; b; c; d). Estabeleceu-se o limite temporal de 100 000 dias na exploração representada nas figuras e; f (ampliação do figura e). O valor máximo obtido no modelo para a concentração no leite é de 0,0012 Bq/kg. No terceiro caso de exploração, os dados iniciais foram adoptados da IAEA cujos valores são referentes à radioactividade natural:  $A_{1(0)} = 1,152$  Bq/kg e  $A_{2(0)} = 0,0553$  Bq/kg (IAEA, 2003b). Adoptou-se para a actividade inicial no solo 3,69 x 10⁴ Bq e para a actividade inicial na vegetação 55,3 Bq.



Figura 7-33: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto ( 235 U), respectivamente: A₁₍₀₎ = 3,69 x 10⁴ Bq e A₂₍₀₎ = 55,3 Bq.

A actividade resultante no leite de vaca aumenta até 0,023 Bq e a respectiva concentração aumenta até 1,9 x 10⁻⁵ Bq/kg, para o horizonte temporal de 120 dias (figuras a; b; c; d). Estabeleceu-se o limite temporal de 100 000 dias na exploração representada nas figuras e; f (ampliação do figura e). O valor máximo obtido no modelo para a concentração no leite é de 0,016 Bq/kg.

Para o último caso de exploração, os dados iniciais referem-se a um local contaminado em fase de remediação, resultante do processamento de urânio (DOE, 2003). Adoptou-se para a actividade inicial no solo e na vegetação 9,68 x 10⁵ Bq e 0,19 Bq, respectivamente.



Figura 7-34: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto ( 235 U), respectivamente: A₁₍₀₎ = 9,68 x 10⁵ Bq e A₂₍₀₎ = 0,19 Bq.

A actividade resultante no leite aumenta até 0,61 Bq e a respectiva concentração aumenta até 0,00051 Bq/kg, para o horizonte temporal de 120 dias. Estabeleceu-se o limite temporal de 100 000 dias na exploração do modelo representada nas figuras e; f (ampliação do figura e). O valor máximo obtido no modelo para a concentração no leite é de 0,43 Bq/kg.

Fez-se ainda a exploração do modelo com os dados disponíveis para o ²³⁸U. Na tabela seguinte encontram-se os dados iniciais compilados da bibliografia consultada.

Fonte	Bq/kg	Bq
1. Exmin (Urgeiriça) (EXMIN, 2003)		
Solo superficial	11,4	3,65 x 10⁵
2. Wismut (Schmidt, 2004)		
Material estéril do desmonte	1000	3,2 x 10 ⁷
Plantas	50	4 x 10 ⁴
3. Harley e Foulkes (Harley et al., 2000)		
Leite	0,001	
Vegetais	0,02	20
Ar (µBq.m ⁻³ )	1	
4. IAEA (IAEA, 2003b)		
Solo	23,04	7,49 x 10⁵
Plantas	1,1	1100
Leite	0,0086	
Aerossóis (µBq.m ⁻³ )	2	
5. "Fernald site" (DOE, 2003)		
Solo	1295	4,14 x 10 ⁷
Plantas	27	2,70 x 10 ⁴
Leite	0,407	

Tabela 7-27: Valores da concentração de ²³⁸U referentes a diversos locais.

No primeiro caso de exploração a concentração no solo superficial é igual a 11,4 Bq/kg. Adoptou-se o valor de 3,65 x 10⁵ Bq para a actividade inicial no solo de modo a obter esta concentração e considerou-se a actividade inicial nula nos restantes compartimentos.

O segundo caso de exploração refere-se aos locais contaminados na Alemanha resultantes da intensa exploração do urânio durante décadas. O termo "Wismut Project" representa o projecto de reabilitação ambiental. A concentração no solo superficial é igual a 1000 Bq/kg e a concentração inicial na vegetação é igual a 50 Bq/kg. Adoptou-se para a actividade no solo 3,2 x  $10^7$  Bq e para a actividade na vegetação 4 x  $10^4$  Bq.

O terceiro caso de exploração refere-se a um local descrito por Harley et al., (2000) com concentração inicial igual a 0,02 Bq/kg para a vegetação. Considerou-se neste caso que a concentração no solo superficial é zero. Adoptou-se a actividade inicial de 20 Bq na vegetação. Fez-se ainda uma exploração com este valor inicial para a vegetação mas adoptando a concentração no solo superficial da Urgeiriça (Falcão et al., 2005).

No quarto caso de exploração foram usados os valores da IAEA (2003) para a concentração no solo superficial e a concentração na vegetação igual a 23,04 Bq/kg e 1,1 Bq/kg, respectivamente (IAEA, 2003a). Adoptou-se o valor de 7,49 x 10⁵ Bq para a actividade inicial no solo e 1100 Bq para a actividade inicial na vegetação.

O último caso de exploração refere-se ao "Fernald Site", um local onde existiu durante 37 anos (até 1989) uma instalação de processamento de urânio e que se encontra em fase final de reabilitação ambiental. A concentração no solo superficial é igual a 1295 Bq/kg e na vegetação igual a 27 Bq/kg (DOE, 2003). Estimou-se a actividade inicial no solo em 4,14 x 10⁷ Bq e na vegetação 2,7 x 10⁴ Bq, de forma a obter a concentração medida no local. As figuras seguintes representam os resultados obtidos na simulação do modelo para os dados iniciais de cada caso da tabela anterior para o ²³⁸U.



Figura 7-35: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²³⁸U), respectivamente:  $A_{1(0)} = 3,65 \times 10^5$  Bq e  $A_{2(0)} = 0$  Bq.

A actividade resultante no leite aumenta até 0,23 Bq e a respectiva concentração aumenta até 0,00019 Bq/kg para o horizonte temporal de 120 dias (figuras a; b: c; d). Estabeleceu-se o limite temporal de 100 000 dias na exploração representada nas figuras e; f (ampliação da figura e) pelo mesmo motivo do caso do



²³⁵U, pois a semi-vida do ²³⁸U é 6,51 x 10⁹ anos. O valor máximo obtido no modelo para a concentração no leite é de 0,16 Bq/kg (figura f).

Figura 7-36: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²³⁸U), respectivamente:  $A_{1(0)} = 3.2 \times 10^7$  Bq e  $A_{2(0)} = 4 \times 10^4$  Bq.

A actividade resultante no leite aumenta até 20,34 Bq e a respectiva concentração aumenta até 0,017 Bq/kg para o horizonte temporal de 120 dias (figuras a; b; c; d). Estabeleceu-se o limite temporal de 100 000 dias na exploração



representada nas figuras e; f. O valor máximo obtido no modelo para a concentração no leite é de 14,28 Bq/kg (figura f).

Figura 7-37: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto ( 238 U), respectivamente: A₁₍₀₎ = 0 Bq e A₂₍₀₎ = 20 Bq.

A actividade resultante no leite aumenta até  $1,59 \times 10^{-5}$  Bq e a respectiva concentração aumenta até  $2,2 \times 10^{-8}$  Bq/kg para o horizonte temporal de 120 dias (figuras a; b; c; d). Estabeleceu-se o limite temporal de 100 000 dias na exploração

representada nas figuras e; f. O valor máximo obtido no modelo para a concentração no leite é de 0,1 x  $10^{-4}$  Bq/kg (figura f).

Fez-se ainda uma simulação deste último caso mas adoptando a concentração no solo superficial da zona da Urgeiriça:  $A_{0(1)} = 3,65 \times 10^5$  Bq e  $A_{0(2)} = 20$  Bq.



Figura 7-38: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto ( 238 U), respectivamente: A₀₍₁₎ = 3,65 x 10⁵ Bq e A₀₍₂₎ = 20 Bq.



Figura 7-39: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²³⁸U), respectivamente:  $A_{1(0)} = 7,49 \times 10^5$  Bq e  $A_{2(0)} = 1100$  Bq.



Figura 7-40: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²³⁸U), respectivamente:  $A_{1(0)} = 4,14 \times 10^7$  Bq e  $A_{2(0)} = 2,7 \times 10^4$  Bq.

Referente à Figura 7-39, a actividade no leite aumenta até 0,48 Bq e a respectiva concentração aumenta até 0,0004 Bq/kg para o horizonte temporal de 120 dias (figuras a; b; c; d). Estabeleceu-se o limite temporal de 100 000 dias na exploração representada nas figuras e; f; g. O valor máximo obtido no modelo para a concentração no leite é de 0,33 Bq/kg (figura g). A estimativa da concentração no leite obtida pelo modelo coincide com a concentração inicial de 0,0086 Bq/kg ao fim de cerca de 25 dias (figura h).

Referente à Figura 7-40, a actividade resultante no leite aumenta até 26,3 Bq e a respectiva concentração aumenta até 0,022 Bq/kg para o horizonte temporal de 120 dias (figuras a; b; c; d). Estabeleceu-se o limite temporal de 100 000 dias na exploração representada nas figuras e; f; g. O valor máximo da concentração no leite é 18,46 Bq/kg (figura g). A estimativa da concentração no leite obtida pelo modelo coincide com a concentração inicial de 0,407 Bq/kg ao fim de cerca de 22 dias (figura h).

## 7.4.4.2 Discussão dos resultados (²³⁵U e ²³⁸U)

Dado que apenas 0,2 % a 2 % da quantidade ingerida é absorvida e como a maior parte do urânio é eliminado do organismo rapidamente, a sua transferência entre os compartimentos não é quantitativamente significativa e por isso não é preocupante a longo prazo, sendo-o antes a curto prazo devido à sua toxicidade.

Existem poucos dados relativamente às constantes cinéticas de transferência entre os compartimentos considerados no modelo para os ruminantes e nomeadamente para o compartimento que representa o leite. O modelo biocinético apresentados pela *International Commission on Radiological Protection* para o urânio é muito mais complexo do que o modelo apresentado para o rádio uma vez que se considera a recirculação entre os compartimentos (Leggett & Eckerman, 2003). O modelo é composto por 5 compartimentos principais, 16 subcompartimentos e mais de 25 fluxos de entrada e de saída entre os subcompartimentos, tendo sido este modelo desenvolvido especificamente para os humanos. Assim, não se considerou o modelo biocinético para o urânio pelo facto de não ser significativo do ponto de vista radiológico devido à fraca absorção gastrointestinal; pela falta de dados para as constantes cinéticas de transferência entre os compartimentos no caso dos animais de pasto; e devido à complexidade do modelo biocinético existente especificamente desenvolvido para os humanos com os resultados laboratoriais obtidos em estudos com animais e medições da eliminação pelo corpo humano.

Relativamente ao primeiro caso (MinUrar) e ao último caso de exploração ("Fernald site"), os resultados obtidos no modelo para a concentração de ²³⁵U no leite são semelhantes:  $4,4 \times 10^{-4}$  e  $5,1 \times 10^{-4}$  Bq/kg, respectivamente. A actividade inicial no solo também é semelhante para ambos os casos ( $8,42 \times 10^5$  e  $9,58 \times 10^5$  Bq, respectivamente) e apesar de no primeiro caso a actividade inicial na vegetação ser nula, o valor considerado para o último caso é desprezável (0,19 Bq).

No terceiro caso de exploração, em que foram usados valores da actividade natural deste RDN adoptados da IAEA (2003), o valor obtido para a concentração no leite (1,9 x  $10^{-5}$  Bq/kg) encontra-se dentro do intervalo referido pela IAEA para o ²³⁵U (5 x  $10^{-6}$  a 8,5 x  $10^{-4}$  Bq/kg) para os locais com actividade no solo e na vegetação desta ordem de grandeza.

O segundo caso de exploração difere bastante do primeiro caso apesar de se referir ao mesmo local, ou seja, aos solos da área mineira da Urgeiriça, cuja contaminação é bastante heterogénea e variável espacialmente. No entanto, o valor obtido para a concentração no leite (1,4 x 10⁻⁶ Bq/kg) encontra-se dentro do intervalo definido pela IAEA, o que se verifica também para os resultados obtidos em todos os casos de exploração para o ²³⁵U, relativamente ao horizonte temporal de 120 dias.

Relativamente ao ²³⁸U, sendo o isótopo mais abundante mas o menos radioactivo, o valor mais baixo da concentração no leite (2,2 x 10⁻⁸ Bq/kg) foi obtido na exploração com os dados de Harley et al. (2000) o que pode ser justificado pelo facto de se considerar a actividade inicial no solo igual a zero e a actividade inicial no pasto ser muito pequena (20 Bq).

Os resultados para a concentração no leite no primeiro e no terceiro caso (Figura 7-38), considerando a actividade inicial no solo igual à do primeiro caso, são semelhantes ( $1,9 \times 10^{-4}$  Bq/kg). A actividade inicial no solo é a mesma para ambos os casos ( $3,65 \times 10^{5}$  Bq), mas no primeiro caso a concentração é nula para o pasto e 20 Bq no terceiro caso, o que em termos de actividade, pode ser desprezável.

No quarto caso de exploração, os dados foram fornecidos pela IAEA e referemse à radioactividade natural. Os resultados do modelo para a concentração no leite (4 x 10⁻⁴ Bq/kg) estão dentro do intervalo 0,1 a 17 mBq/kg que se refere a uma amostragem em vários locais com contaminação de origem natural. Os resultados mais elevados da concentração no leite verificaram-se nos casos de exploração referentes ao "Fernald Site" (0,022 Bq/kg) e ao "Wismut Project" (0,017 Bq/kg). Os resultados obtidos são da mesma ordem de grandeza, excedendo o intervalo definido pela IAEA no caso do "Fernald Site". Deve realçar-se que estes dois exemplos são casos extremos de contaminação: por um lado, os dados usados do "Fernald site" referem-se a um local contaminado com origem no processamento de urânio, por outro, os dados do "Wismut Project" referem-se à actividade existente nas pilhas do material de desmonte resultantes da exploração do urânio.

# 7.4.5 Exploração do modelo para o chumbo (²¹⁰Pb)

O ²¹⁰Pb é um elemento natural persistente na água e no solo. O ²¹⁰Pb bem como o ²¹⁰Po são descendentes radioactivos directos do ²²⁶Ra que por sua vez descende do ²³⁸U. O decaimento rápido do ²²²Ra na atmosfera gera o ²¹⁰Pb e o ²¹⁰Po que são absorvidos pelos aerossóis atmosféricos e regressam à superfície terrestre na forma particulada através dos processos de transporte e de deposição atmosférica.

A contaminação do pasto e a ingestão deste radionuclídeo pelos animais pode constituir uma via de entrada na cadeia alimentar. A contaminação pode ocorrer através da absorção pelas raízes das plantas ou através da deposição das partículas contaminadas na superfície das plantas. A absorção pelas raízes e a translocação para as partes comestíveis que fazem parte da dieta humana é inferior a 1 % (Schmidt, 2004). O mecanismo dominante é a deposição foliar das partículas que contêm os produtos do decaimento do ²²²Rn, ou seja, o ²¹⁰Pb e o ²¹⁰Po.

Poucos estudos existem acerca da transferência do ²¹⁰Pb e do ²¹⁰Po para os produtos dos animais, nomeadamente para o leite de vaca, a partir da alimentação contaminada. Os estudos existentes baseiam-se na introdução directa nos animais do ²¹⁰Pb ou na colheita de amostras de produtos de animais cuja alimentação ocorreu em locais próximos de fontes industriais de ²¹⁰Pb, como por exemplo, locais de exploração do urânio ou de exploração de fosfatos.

Praticamente não há transferência do ²¹⁰Pb ingerido na alimentação contaminada para o tecido muscular, já que este RDN é também, como acontece com o rádio, um "pesquisador" dos ossos (*bone seeker*). O seu principal depósito no organismo vai ser o esqueleto, acumulando cerca de 90 % do ²¹⁰Pb absorvido, onde aparenta ser relativamente imóvel.

A grande parte do ²¹⁰Pb existente nos animais tem origem na alimentação contaminada. Um dos grandes problemas na avaliação da transferência deste elemento na cadeia alimentar é a falta de trabalhos experimentais que relacionem a contaminação na alimentação com a concentração resultante nos produtos dos animais. Os estudos existentes e descritos na bibliografia baseiam-se em experiências com pequenos animais de laboratório (ratos) e apesar dos resultados serem qualitativamente relevantes para os humanos, a sua extrapolação para outros animais com propriedades digestivas e fisiológicas muito diferentes dos roedores (como é o caso dos ruminantes) não é clara (Harley et al. 2000).

Os pontos mais importantes para a exposição interna ao ²¹⁰Pb são o tracto gastrointestinal (ingestão) e os pulmões (inalação). O ²¹⁰Pb ingerido é fracamente absorvido no tracto gastrointestinal: os animais não ruminantes absorvem cerca de 10 % da quantidade ingerida e os ruminantes menos de 3 %. Nos humanos, apenas 5 a 10 % do ²¹⁰Pb é absorvido (NCRP, 1980). A quantidade absorvida depende da trajectória de exposição, da idade e do estado nutricional do organismo exposto. Em alguns adultos humanos a absorção pode ocorrer até 15 % da quantidade ingerida enquanto nas crianças a absorção pode ir até 50 %, dependendo também da forma em que se encontra o ²¹⁰Pb. Aproximadamente 90 % das partículas depositadas no tracto respiratório são absorvidas na circulação sistémica (Kowetha, 2004).

O ²¹⁰Pb absorvido é distribuído por 3 grandes compartimentos: sangue, tecidos moles e ossos. A semi-vida do ²¹⁰Pb nos ossos é de cerca de 20 anos e no sangue é de 25 a 28 dias. Os tecidos moles são constituídos pelo fígado, rins, cérebro e músculos. O ²¹⁰Pb não é metabolizado no organismo e a sua exposição pode ser evidenciada pelas elevadas concentrações no sangue. Aproximadamente 75 % do ²¹⁰Pb absorvido é excretado na urina e menos de 25 % é excretado nas fezes. Também é excretado no leite ficando, portanto, disponível para ser ingerido e prosseguir a sua transferência na cadeia alimentar.

Parte do ²¹⁰Pb pode ser acumulado ou depositado no esqueleto com a subsequente libertação gradual no sangue para a excreção durante um longo período de tempo. Os efeitos crónicos da toxicidade do ²¹⁰Pb nos animais são raros havendo, no entanto, alguns casos documentados da toxicidade em animais ruminantes e não ruminantes, sendo mais frequente nestes últimos. A toxicidade do ²¹⁰Pb nos animais pode ser agravada pela exposição simultânea a outros metais pesados tais como mercúrio, cádmio, molibdénio, cobre ou outros microelementos. Os órgãos mais

afectados são os rins e o fígado. Os níveis de ²¹⁰Pb no leite são variáveis e normalmente baixos (NCRP, 1980). A eliminação nos humanos é feita pela urina, fezes, pele, cabelo e unhas (Leggett, 1993).

O modelo biocinético que descreve a distribuição do ²¹⁰Pb absorvido entre o sangue e os outros tecidos bem como a eliminação do organismo consiste num compartimento central, o sangue, que inclui outro compartimento, os glóbulos vermelhos (RBC - *red blood cells*), cinco compartimentos periféricos: osso trabecular, osso cortical, fígado, rins e outros tecidos moles e três trajectórias de eliminação: do plasma para a urina, do fígado para as fezes e de outros tecidos moles para a pele, cabelo e unhas. O fígado e os rins são os órgãos alvos de toxicidade (Harley et al. 2000).

#### 7.4.5.1 Exploração do modelo na trajectória pasto-vaca-leite para o ²¹⁰Pb

À semelhança do que foi feito para o urânio, os parâmetros dependentes do RDN terão de ser recalculados. A tabela seguinte representa as constantes cinéticas e os parâmetros estimados para ²¹⁰Pb no modelo simples.

Tabela 7-28: Constantes cinéticas de transferência do ²¹⁰Pb (NCRP, 1980), (Baes et al., 1984).

	Constantes cinéticas de transferência	(d ⁻¹ )
<b>k</b> ₃₂	Cinética da transferência das raízes para as partes comestíveis	0,01
<b>k</b> ₂₄	Cinética da transferência para a vaca por ingestão	0,01
<b>k</b> 45	Cinética de transferência da vaca para o leite	0,000079

Tabela 7-29: Constantes cinéticas de perdas do ²¹⁰Pb (Leggett & Eckerman, 1994).

	Constantes cinéticas de perdas	(d⁻¹)
<b>k</b> ₁₁	Perdas no solo (decaimento, lixiviação e migração no solo)	1,13 x 10 ⁻⁴
<b>k</b> ₂₂	Perdas por decaimento radioactivo na superfície	8,63 x 10⁻⁵
<b>k</b> 33	Perdas por decaimento radioactivo nas raízes	8,63 x 10⁻⁵
$\mathbf{k}_{44}$	Perdas na vaca (decaimento, excreção, urina e transpiração)	5,5
<b>k</b> 55	Perdas por decaimento radioactivo no leite	8,63 x 10⁻⁵
$\lambda_{d}$	Constante física de decaimento radioactivo	8,63 x 10⁻⁵
$\lambda_{b}$	Perda de actividade no solo pelos processos ambientais	2,70 x 10 ⁻⁵
$\lambda_6$	Cinética de eliminação da vaca através da excreção	0,731
λ7	Cinética de eliminação da vaca através da urina	4,3
λ8	Cinética de eliminação da vaca através da transpiração	0,42

Tabela 7-30: Outros parâmetros necessários à simulação para o ²¹⁰Pb.

	Outros parâmetros	Valor
C _{ar}	Concentração no ar (ressuspensão do solo) (Bq.m ⁻³ )	0,4895
FT	Factor de transferência do solo para a erva de pasto	0,05
f ₁	Fracção da absorção do ²¹⁰ Pb pelo sistema gastrointestinal (GIT)	0,2

A fracção de absorção gastrointestinal (GIT) é cerca de 20 % nos humanos adultos e inferior a 3 % para os ruminantes (NCRP, 1980). Uma vez que as constantes cinéticas adoptadas se referem ao modelo biocinético para os humanos, o valor usado para a absorção intestinal na exploração do modelo foi de 20 % ou  $f_1 = 0,2$ .

Na bibliografia consultada não foi possível encontrar um valor para a cinética de transferência do ²¹⁰Pb para o leite. No entanto, adoptamos como valor para a cinética de transferência a combinação da semi-vida da remoção no leite,  $t_{1/2} = 3,3$  dias (Baes et al., 1984) com a fracção que se deposita neste compartimento, estimada pela seguinte expressão (Baes et al., 1984):

$$f_1 = \frac{\ln(2)}{t_{1/2b}} \cdot FT_2 \cdot V_L = \frac{\ln(2)}{3.3} \frac{1}{d} \cdot 1.5 \times 10^{-4} \frac{d}{L} \cdot 12L = 0.000378 = 0.0378\%$$

em que f₁ é fracção do ²¹⁰Pb ingerido transferido para o leite (adimensional), t_{1/2b} é a semi-vida da remoção do leite (dias), FT₂ é o factor de transferência para o leite no equilíbrio ((Bq/L)/(Bq/d)) e V_L a produção de leite (kg). Combinando a fracção que se deposita com a semi-vida da remoção, a cinética de transferência para o leite é dada por:

$$k_{45} = \lambda_{1/2b} \cdot f_1 = \frac{\ln(2)}{3,3} 0,000378 = 0,000079 \text{ d}^{-1}$$

Segundo o modelo biocinético apresentado pelo ICRP (Leggett, 1993) são ainda definidas mais três trajectórias de eliminação: cabelo, unhas e pele. Consideramos a perda directa do plasma para transpiração (0,42 d⁻¹) incluída nas perdas  $k_{44}$ .

Na simulação do modelo para o ²¹⁰Pb adoptaram-se três locais da exploração do caso anterior: MinUrar, Exmin e "Wismut Project". Os restantes locais designados por "Olen site" referem-se a um local contaminado de uma antiga fábrica de processamento de rádio cujos valores de contaminação no solo e no pasto também já foram usados na exploração do modelo para o rádio. Neste local, os valores da

concentração de ²¹⁰Pb no solo superficial, na vegetação e no leite de vaca são elevados e muito variáveis (IAEA, 2004).

Na tabela seguinte encontram-se representados os valores dos dados iniciais compilados da bibliografia com as respectivas referências.

Tabela 7-31: Valores da concentração de ²¹⁰Pb referentes a diversos locais.

Fonte	Bq/kg	Bq
MinUrar (Urgeiriça) (Falcão et al., 2005)		
Solo superficial	215	6,88 x 10 ⁶
Aerossóis (µBq.m⁻³)	489,5	
Exmin (Urgeiriça) (EXMIN, 2003)		
Solo superficial	32,75	1,05 x 10 ⁶
"Wismut Project" (Schmidt, 2004)		
Solo agrícola	64	2,05 x 10 ⁶
Erva	140	1,4 x 10 ⁵
"Olen site" (I) (IAEA, 2004)		
Solo	23,4	748 800
Pasto	1,2	1200
Leite	0,0109	
"Olen site" (II) (IAEA, 2004)		
Solo	299	9 568 000
Pasto	14,58	14 580
Leite	0,067	
"Olen site" (III) (IAEA, 2004)		
Solo	200	6 400 000
Pasto	10	10 000
Leite	3,6 x 10 ⁻²	
"Olen site" (IV) (IAEA, 2004)		
Solo	2130	68 160 000
Pasto	106	106 000
Leite	0,2	
"Olen site" (V) (IAEA, 2004)		
Solo	5,17 x 10	1 654 400
Pasto	2,59	2 590
Leite	0,012	

As figuras seguintes representam os resultados obtidos na simulação com o conjunto de dados apresentados.





A actividade resultante no leite aumenta até 82,85 Bq (figuras a; c; e) e a respectiva concentração aumenta até 0,15 B/kg para o horizonte temporal de 500 dias (figuras b; d; f). O valor máximo da concentração no leite (0,15 Bq/kg) é obtida ao fim de 20 dias e após um ano, a concentração média no leite diminui para 0,035 Bq/kg (figura f).



Figura 7-42: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²¹⁰Pb), respectivamente:  $A_{1(0)} = 1,05 \times 10^{6}$  Bq e  $A_{2(0)} = 0$  Bq.

A actividade resultante no leite aumenta até 12,64 Bq (figuras a; c; e) e a respectiva concentração aumenta até 0,023 Bq/kg (figuras b; d; f) para o horizonte temporal de 500 dias. O valor máximo da concentração no leite (0,023 Bq/kg) é obtida ao fim de 25 dias e após um ano, a concentração média no leite diminui para 0,005 Bq/kg (figura f).





A actividade resultante no leite aumenta até 26,37 Bq (figuras a; c; e) e a respectiva concentração aumenta até 0,01 Bq/kg (figuras b; d; f) para o horizonte temporal de 500 dias. O valor máximo da concentração no leite (0,01 Bq/kg) é obtida ao fim de 30 dias e após um ano, a concentração média no leite diminui para 0,0025 Bq/kg (figura f).



Figura 7-44: Resultados da simulação para os dados iniciais referentes ao "Olen site I".

A actividade resultante no leite aumenta até 9 Bq (figuras a; c; e) e a respectiva concentração aumenta até 0,0166 Bq/kg (figuras b; d; f) para o horizonte temporal de 500 dias. O valor máximo da concentração no leite (0,0166 Bq/kg) é obtida ao fim de 30 dias e após um ano, a concentração média no leite diminui para 0,0038 Bq/kg (figura f). A concentração média resultante da monitorização no leite de vaca neste local é de 0,011 Bq/kg (IAEA, 2004).



Figura 7-45: Resultados da simulação para os dados iniciais referentes ao "Olen site II".

A actividade resultante no leite aumenta até 115,4 Bq (figuras a; c; e) e a respectiva concentração aumenta até 0,21 Bq/kg (figuras b; d; f) para o horizonte temporal de 500 dias. O valor máximo da concentração no leite (0,21 Bq/kg) é obtida ao fim de 30 dias e após um ano, a concentração média no leite diminui para 0,05 Bq/kg (figura f). A concentração média resultante da monitorização no leite de vaca neste local é de 0,067 Bq/kg (IAEA, 2004).
Uma vez que o *output* final de interesse para comparar com o valor resultante da monitorização do leite de vaca em cada local é a concentração, optou-se por representar apenas estes resultados para os restantes locais do "Olen site".



Figura 7-46: Resultados da simulação para os dados iniciais referentes ao "Olen site III".

A concentração resultante no leite aumenta até 0,14 Bq/kg para o horizonte temporal de 500 dias. O valor máximo da concentração no leite é obtida ao fim de 30 dias e após um ano, a concentração média no leite diminui para 0,03 Bq/kg (figura b). A concentração média resultante da monitorização no leite de vaca neste local é de 0,036 Bq/kg (IAEA, 2004).



Figura 7-47: Resultados da simulação para os dados iniciais referentes ao "Olen site IV".

A concentração resultante no leite aumenta até 1,5 Bq/kg para o horizonte temporal de 500 dias. O valor máximo da concentração no leite é obtida ao fim de 25 dias e após um ano, a concentração média no leite diminui para 0,35 Bq/kg (figura b). A concentração média resultante da monitorização no leite de vaca neste local é de 0,2 Bq/kg (IAEA, 2004).



Figura 7-48: Resultados da simulação para os dados iniciais referentes ao "Olen site V".

A concentração no leite aumenta até 0,04 Bq/kg para o horizonte temporal de 500 dias. O valor máximo da concentração no leite é obtida ao fim de 20 dias e após um ano, diminui para 0,008 Bq/kg (figura b). A concentração média resultante da monitorização no leite de vaca neste local é de 0,012 Bq/kg (IAEA, 2004).

#### 7.4.5.2 Discussão dos resultados (²¹⁰Pb)

O ²¹⁰Pb é fracamente absorvido no tracto gastrointestinal nos animais ruminantes sendo a quantidade absorvida inferior a 3 %. Pode ser excretado no leite sendo os níveis de ²¹⁰Pb no leite geralmente variáveis mas baixos. Os coeficientes de transferência usados no modelo simples foram adoptados dos estudos biocinéticos para os humanos e não especificamente obtidos para os ruminantes. Pelos mesmos motivos descritos para o urânio não se apresentou o modelo biocinético também para este RDN.

Relativamente aos dois primeiros casos de exploração que se referem à zona da Urgeiriça não dispomos de valores da concentração no leite de vaca deste local para comparar com os resultados obtidos no modelo. No entanto, no segundo caso de exploração, em que se usou os valores da Exmin para a actividade inicial, a concentração no leite é ligeiramente inferior ao primeiro caso, o que está de acordo com o valor da actividade inicial também inferior.

No terceiro caso de exploração os resultados da concentração no leite são cerca de 50 % inferiores aos resultados obtidos no segundo caso, o que também coincide com a relação da concentração inicial no solo para estes dois casos.

Na exploração do modelo com os dados iniciais do "Olen Site", nomeadamente para o primeiro caso ("Olen Site I") rapidamente se atinge o valor da concentração no leite obtido na monitorização do local. Nos restantes casos (II, III, IV e V), ao fim de aproximadamente um ano obtêm-se os valores respectivos para cada caso coincidentes com os valores da monitorização local.

## 7.4.6 Exploração do modelo para o polónio (²¹⁰Po)

O ²¹⁰Po tem cerca de 25 isótopos com número de massa de 192 a 218 e ocorre naturalmente na natureza. Todos os isótopos são radioactivos com semi-vida muito curta e predominantemente emissores de partículas α. O ²¹⁰Po resulta do decaimento radioactivo do ²²²Rn que por sua vez tem origem no decaimento do ²²⁶Ra. Encontra-se no final da cadeia radioactiva do ²³⁸U e desintegra-se para o isótopo estável ²⁰⁶Pb. Pode ter origem no processamento químico do minério de urânio mas em pequenas quantidades uma vez que o minério de urânio apenas contém cerca de 75 μg de ²¹⁰Po por tonelada (1,2 x 10¹⁰ Bq) (ITE, 2006). No solo a sua concentração também é semelhante à concentração do urânio ou seja, cerca de 1 pCi/g ou 37 Bq/kg (ANL, 2005a).

A sua entrada na cadeia alimentar pode ocorrer da mesma forma que para os RDN estudados anteriormente, ou seja pela deposição foliar na superfície da vegetação do pasto que será depois ingerida pelos animais. O ²¹⁰Po resulta do decaimento do ²²²Rn presente na atmosfera e a sua concentração média no ar varia de 0,005 a 0,04 pCi/m³ ou 50 mBq/m³ apesar de ser variável de acordo com a taxa de exalação do ²²²Rn ou da existência de actividade industrial favorável à emissão de ²²²Rn (por exemplo, indústria mineira ou exploração de fosfatos) ou da presença de actividade vulcânica (ANL, 2005a). Nas pilhas de estéreis de urânio a concentração de ²¹⁰Po pode variar de 15 000 a 22 000 Bq/kg (IRSN, 2006).

A absorção pelas raízes é desprezável bem como a translocação para as partes comestíveis (< 1 %), sendo a principal trajectória de contaminação a deposição foliar, onde o ²¹⁰Po resultante do decaimento do ²²²Rn é absorvido (Watson, 1983). No caso dos animais, a ingestão é a principal trajectória de entrada, no entanto, na bibliografia é sugerido que grande parte dos RDN presentes no leite de vaca aparentam ter origem mais na ingestão directa de solo contaminado do que na ingestão de pasto contaminado (Paridaens, 2005). A inalação de poeiras contendo ²¹⁰Po constitui outra trajectória importante devido à sua acumulação preferencial nos

pulmões. A exposição externa não é relevante tratando-se de um emissor de partículas α.

Quando ingerido o ²¹⁰Po é depositado em grandes quantidades no baço e nos rins e a sua eliminação ocorre preferencialmente através do tracto urinário. No caso de administração intravenosa a maioria do ²¹⁰Po é excretado nas fezes (BEIR, 1988).

O polónio também é excretado através do leite dos animais lactantes. A semivida efectiva para a excreção do ²¹⁰Po na vaca é de 3,7 dias o que equivale a uma cinética de transferência de 0,19 d⁻¹ (BEIR, 1988). A transferência para o leite depende da espécie, da trajectória de entrada e da forma em que se encontra o ²¹⁰Po, mas será sempre um valor inferior a 1. A semi-vida biológica do ²¹⁰Po no corpo humano é de 20 a 50 dias ao fim do quais terá sido excretado metade da quantidade de ²¹⁰Po existente no organismo (BEIR, 1988).

Poderá ainda ocorrer um acréscimo da quantidade de ²¹⁰Po no organismo devido ao decaimento do ²²⁶Ra depositado no tecido ósseo ou do ²¹⁰Pb depositado nos ossos resultante do ²²²Rn. Em ambos os casos, o ²¹⁰Po é formado no local onde o ²²⁶Ra ou o ²¹⁰Pb se encontra alojado dentro do organismo podendo ou não ser mobilizado para outros órgãos ou compartimentos. Existem evidências que o ²¹⁰Po pode ser excretado pelo cabelo dos humanos mas para os animais só esporadicamente se verificou a existência de ²¹⁰Po no respectivo pêlo (BEIR, 1988).

O ²¹⁰Po não é um "caçador" de ossos (*bone-seeker*), mas acumula-se na medula óssea e também no fígado. A sua distribuição no organismo após entrar na corrente sanguínea é aproximadamente de 30 % no fígado, 10 % nos rins, 5 % no baço, 10 % na medula óssea e 45 % pelos restantes tecidos moles. A semi-vida da retenção para todos os órgãos é de 50 dias e a fracção de absorção gastrointestinal é de 0,5 para os casos de ingestão com os alimentos e de 0,1 no caso de inalação (Leggett & Eckerman, 2003). A cinética total de transferência do plasma é de 100 d⁻¹ que corresponde a uma semi-vida de remoção de 10 minutos. O coeficiente de transferência a que corresponde determinada fracção de deposição (f₁) num dado compartimento é igual a f₁ x 100 d⁻¹ (Leggett & Eckerman, 2001).

Não existem dados qualitativos nem quantitativos relativamente à transferência dos elementos ingeridos na dieta alimentar para os produtos dos animais (leite e carne). Os estudos que existem baseiam-se na introdução directa de ²¹⁰Po nos ruminantes ou na recolha de amostras de produtos de animais de pasto próximos de

instalações industriais contaminadas como por exemplo, locais de exploração de urânio ou de fosfatos.

## 7.4.6.1 Exploração do modelo na trajectória pasto-vaca-leite para o ²¹⁰Po

A tabela seguinte representa os resultados estimados para os coeficientes da matriz referente ao ²¹⁰Po, para o modelo simples.

Tabela 7-32: Constantes cinéticas de perdas para o ²¹⁰Po (Leggett & Eckerman, 2001).

	Constantes cinéticas de perdas	(d ⁻¹ )			
<b>k</b> ₁₁	Perdas no solo (decaimento, lixiviação e migração no solo)	0,00503			
<b>k</b> 22	Perdas por decaimento radioactivo na superfície	0,005			
k ₃₃	Perdas por decaimento radioactivo nas raízes				
<b>k</b> 44	Perdas na vaca (decaimento, excreção, urina e transpiração)				
<b>k</b> 55	Perdas por decaimento radioactivo no leite	0,005			
$\lambda_{d}$	Constante física de decaimento radioactivo	0,005			
$\lambda_{b}$	Perda de actividade no solo pelos processos ambientais	0,000027			
$\lambda_6$	Cinética de eliminação da vaca através da excreção	0,139			
λ7	Cinética de eliminação da vaca através da urina	0,2			
λ ₈	Cinética de eliminação da vaca através pêlo, transpiração e pele	0,00693			

Tabela 7-33: Constantes cinéticas de transferência para o ²¹⁰Po.

	Constantes cinéticas de transferência						
<b>k</b> ₃₂	Cinética da transferência das raízes para as partes comestíveis	0,010					
<b>k</b> ₂₄	Cinética da transferência para a vaca por ingestão do pasto	0,025					
<b>k</b> 45	Cinética de transferência da vaca para o leite (BEIR, 1988)	0,19					

Tabela 7-34: Outros parâmetros necessários à simulação para o ²¹⁰Po.

	Outros parâmetros	Valor
Car	Concentração no ar (ressuspensão do solo) (Bq.m ⁻³ )	0,784
FT	Factor de transferência do solo para a erva de pasto	0,023
f ₁	Fracção da absorção do ²¹⁰ Pb pelo sistema gastrointestinal (GIT)	0,5

Na primeira simulação, os dados usados como *input* para a actividade inicial resultaram da estimativa da actividade de ²¹⁰Po libertada por um resíduo de um minério de urânio, apresentada no capítulo 2, obtida pela distribuição da actividade pelos radioisótopos. A actividade de ²¹⁰Po neste resíduo e que consideramos

corresponder ao compartimento 1 é igual a  $A_{1(0)} = 6,55 \times 10^{-7}$  Bq. Considerou-se a actividade no compartimento 2 nula ( $A_{2(0)} = 0$  Bq).

Numa segunda simulação considerou-se a concentração de ²¹⁰Po no minério com teor de 1 kg  $U_3O_8$ /ton, lixiviado a 90 %, igual a 10 375 Bq/kg. A actividade ²¹⁰Po no minério de urânio lixiviado é igual a:

10 
$$375\left(\frac{Bq}{kg}\right) \cdot 1000 (m^2) \cdot 320\left(\frac{kg}{m^3}\right) \cdot 0,10 m = 3,32 \times 10^8 Bq$$

Admitimos que a actividade de ²¹⁰Po no solo superficial é cerca de 15 ppm, logo a actividade no solo superficial ou no compartimento 1 é igual a:

$$A_{1(0)} = \frac{15}{1000\,000} \cdot 3,32 \, x \, 10^8 = 4980 \, \text{Bq}$$

No terceiro caso de exploração estimou-se a actividade de ²¹⁰Po no solo superficial, resultante da deposição das poeiras contaminadas, a partir da concentração de ²¹⁰Po nos aerossóis (748 µBq.m⁻³) (Falcão et al., 2005) e considerou-se a actividade inicial no pasto igual a zero. As expressões usadas já foram descritas anteriormente para a simulação do rádio:

$$C_{solo} = \frac{C_{ar}}{R_{e}} \left( \frac{Bq \cdot m^{-3}}{m^{-1}} \right) = \frac{0,000748}{0,000057} \left( \frac{Bq}{m^{2}} \right) = 13,134 \left( \frac{Bq}{m^{2}} \right)$$
$$A_{1(0)} = 13,134 \left( \frac{Bq}{m^{2}} \right) \cdot 1000 \left( m^{2} \right) = 13,134 Bq$$

Nas figuras seguintes encontram-se representados os resultados obtidos para cada caso de exploração com as diferentes condições iniciais.



Figura 7-49: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²¹⁰Po), respectivamente:  $A_{1(0)} = 6,55 \times 10^{-7}$  Bq e  $A_{2(0)} = 0$  Bq.

A actividade resultante no leite aumenta até atingir o máximo de 0,84 x  $10^{-7}$  Bq e partir deste valor diminui até zero (figuras a; c). A respectiva concentração aumenta até atingir o máximo de 2,64 x  $10^{-10}$  Bq/kg obtida ao fim de 20 dias, a partir deste valor diminui sendo nula ao fim de 120 dias (figuras b; d). Repetiu-se a simulação mas adoptando como limite do horizonte temporal 500 dias (figuras e; f). A concentração máxima no leite é de 1,24 x  $10^{-10}$  Bq/kg obtida no modelo ao fim de aproximadamente 20 dias (figura f).



Figura 7-50: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto ( 210 Po), respectivamente: A₁₍₀₎ = 4980 Bq e A₂₍₀₎ = 0 Bq.

A actividade resultante no leite aumenta até atingir o máximo de 630 Bq e partir deste valor diminui até zero (figuras a; c). A respectiva concentração aumenta até atingir o máximo de 2 Bq/kg obtida ao fim de 20 dias, a partir deste valor diminui sendo nula ao fim de 120 dias (figuras b; d). Repetiu-se a simulação mas adoptando como limite do horizonte temporal 500 dias (figuras e; f). A concentração máxima no leite é de 0,94 Bq/kg obtida no modelo ao fim de aproximadamente 20 dias.



Figura 7-51: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto ( 210 Po), respectivamente: A₁₍₀₎ = 13 134 Bq e A₂₍₀₎ = 0 Bq.

A actividade resultante no leite aumenta até atingir o máximo de 1700 Bq e a partir deste valor diminui até zero para um horizonte temporal de 500 dias (figura a). A respectiva concentração aumenta até atingir o máximo de 1,75 Bq/kg obtida ao fim de 20 dias, a partir deste valor diminui sendo nula ao fim de 120 dias (figura b).

Por último, considerou-se que a concentração inicial de ²¹⁰Po no pasto igual a 1650 Bq/kg (Watson, 1983) para a mesma actividade inicial no solo do caso anterior estabelecendo um horizonte temporal de 200 dias. O resultado desta simulação encontra-se representado na figura seguinte.





A actividade máxima no leite subiu ligeiramente, de 1700 Bq para 2000 Bq, para o mesmo período de tempo enquanto que o aumento do valor da concentração máxima neste compartimento foi muito mais significativo, ou seja de 1,75 para 6,75 Bq/kg. Apesar de não existirem dados que quantifiquem a relação entre a quantidade de ²¹⁰Po ingerida na dieta alimentar e a quantidade transferida para o leite da vaca, existem dados na bibliografia para a constante cinética de transferência deste RDN para o leite. Também se encontram descritas as constantes cinéticas de transferência dentro do organismo, mas são relativas ao corpo humano e não aos animais, apesar de terem sido obtidas a partir destes.

O ²¹⁰Po apresenta uma elevada radiotoxicidade. Devido à sua curta semi-vida, 138 dias, a actividade específica por unidade de massa é muito elevada (1,7 x 10¹⁴ Bq/g). A dose letal média é apenas de 50 nanogramas no caso de ingestão ou de 10 nanogramas no caso de inalação. A massa de 0,1 μg de ²¹⁰Po corresponde a uma actividade de 1,7 x 10⁷ Bq, ou 50 nanogramas correspondem à actividade de 3,5 x 10⁶ Bq. O coeficiente de dose por ingestão para o ²¹⁰Po é igual a 1,2 x 10⁻⁶ Sv.Bq⁻¹ e a dose resultante da ingestão de 50 nanogramas é 4,2 Sv = 3,5 MBq x 1,2 μSv.Bq⁻¹. Como termo de comparação para a magnitude deste valor sabe-se que 4 Sv são suficientes para destruir o sistema neurológico e provocar a morte em 24 horas (ITE, 2006). Alguns estudos desenvolvidos em animais revelaram que a ingestão de 8,7 nanogramas de ²¹⁰Po por kg de peso pode levar à morte em apenas 30 dias. Não existem estudos da exposição acidental por ingestão de ²¹⁰Po nos humanos (IRSN, 2006).

Devido à relevância deste RDN quer pela sua radiotoxicidade (potencial capacidade causar danos nos tecidos vivos devido às emissões radioactivas) quer pelo facto de existirem na bibliografia valores das constantes cinéticas de transferência de todos os compartimentos envolvidos no modelo completo, e também pela fácil leitura da representação gráfica dos resultados obtidos na simulação do modelo simples, apresenta-se a simulação para o modelo biocinético completo. No entanto, há que ter em atenção que o modelo biocinético definido pelo ICRP foi adaptado para os humanos com base em limitados dados laboratoriais de estudos em animais e em medições da excreção do ²¹⁰Po em humanos. Isto implica que as previsões do modelo biocinético poderão ter inerentes incertezas substanciais, quer sejam resultantes do processo de medição de ²¹⁰Po excretado, quer pela extrapolação dos dados laboratoriais referentes aos animais, já que o comportamento do ²¹⁰Po dentro do organismo pode variar com a espécie, com a trajectória de exposição e com a forma química do ²¹⁰Po (Leggett & Eckerman, 2001).

#### 7.4.6.2 Exploração do modelo biocinético para o ²¹⁰Po

O modelo completo apresentado para este RDN é composto por 14 compartimentos, 14 constantes cinéticas de perdas e 19 constantes cinéticas de transferência. Definiu-se um sistema de 14 equações diferenciais de 1.ª ordem cuja representação matricial é composta por 14 linhas e por 14 colunas. Cada compartimento foi numerado de 1 a 14 correspondendo o primeiro ao solo, o segundo ao pasto, o terceiro ao GIT (*gastrointestinal system*), onde se dá a absorção, e o quarto compartimento corresponde ao plasma onde se inicia a distribuição para os órgãos internos a que correspondem os restantes compartimentos conforme a legenda da Figura 7-53.

Os coeficientes de transferência ou as constantes cinéticas de transferência representam uma transferência fraccionada por unidade de tempo de um compartimento para o outro. O coeficiente de transferência total de um compartimento para o outro refere-se à soma dos coeficientes de transferência que descrevem a translocação a partir desse compartimento para todos os outros. O coeficiente de transferência total do plasma é de 100 d⁻¹ o que corresponde a uma semi-vida de remoção de 10 minutos.

Os coeficientes de transferência resultam, na maioria das vezes, da combinação da semi-vida de remoção com a fracção de deposição. A semi-vida da remoção refere-se à semi-vida biológica que ocorreria se o *outflow* de um compartimento continuasse e a alimentação ou o *inflow* aos outros compartimentos fosse interrompida. A fracção de deposição representa a repartição do RDN pelos órgãos a partir do plasma e é usada principalmente para incluir dados experimentais nos coeficientes de transferência, uma vez que representam a fracção de RDN administrado que pode ser encontrado num dado compartimento algumas horas após a administração ou da absorção no sangue.

Algumas constantes cinéticas já foram definidas anteriormente como é o caso de k₁₁, perdas do compartimento 1 por decaimento radioactivo ( $\lambda_d$ ) e por migração No solo ( $\lambda_2$ ); k₂₂, perdas do compartimento 2 por decaimento radioactivo ( $\lambda_d$ ); k₂₃, cinética de transferência por ingestão;  $\lambda_3$ , perdas por excreção;  $\lambda_9$ , eliminação pela urina e  $\lambda_7$ , excreção pela pele, cabelo e unhas. As restantes cinéticas de transferência foram adoptadas da bibliografia consultada (Leggett & Eckerman, 2001) ou estimadas a partir das expressões que figuram na bibliografia como é o caso do coeficiente de

transferência do sistema gastrointestinal para o plasma (k₃₄) estimado pela expressão (Leggett & Eckerman, 2003):

$$k_{34} = \frac{6 \cdot f_1}{1 - f_1} d^{-1} = \frac{6 \cdot 0.5}{1 - 0.5} = 6 d^{-1}$$

Para o primeiro caso de exploração consideraram-se as mesmas condições iniciais de um dos casos do modelo simples,  $A_{1(0)} = 13\ 134$  Bq e  $A_{2(0)} = 1650$  Bq.

Para o segundo caso de exploração adoptou-se para o compartimento 2 o valor máximo medido num local específico e adoptou-se para o compartimento 1 um valor de forma a obter a concentração no leite igual a 180 mBq/L, valor referente a Portugal resultante da radioactividade natural (Kannan, 2001).

Para os seguintes casos de exploração adoptou-se para a actividade no pasto um valor de forma a obter a concentração no pasto de  $C_{2(0)} = 344$  mBq/kg, referente a um local específico descrito na bibliografia e considerou-se para a actividade no solo um valor de forma a obter igual concentração no leite nos animais de pasto deste mesmo local, ou seja, a concentração no compartimento número 14:  $C_{14} = 8$  a 12 mBq/L (Kannan, 2001). A estrutura do modelo encontra-se representada na figura seguinte, bem como o sistema de equações e a matriz resultante.



1 - Solo; 2 - Pasto; 3 - GIT; 4 - Sangue; 5 - Fígado 1; 6 - Fígado 2; 7 - Pele; 8 - Outros; 9 - Rins 1; 10 - Rins 2; 11 - Baço; 12 - Medula; 13 - Ossos; 14 - Leite.

Figura 7-53: Modelo biocinético para o ²¹⁰Po segundo Leggett and Eckerman (adaptado) (Leggett & Eckerman, 2001).

O sistema de equações que define o modelo biocinético:

$$\begin{aligned} \frac{dA_1}{dt} &= d(1-F) \cdot A_{solo} - A_1 k_{12} - A_1 k_{11} + A_2 k_{21} \\ \frac{dA_2}{dt} &= dF + A_1 k_{12} - A_2 k_{21} - A_2 k_{22} - A_2 k_{23} \\ \frac{dA_3}{dt} &= A_2 k_{23} - A_3 k_{33} - A_3 k_{34} + A_5 k_{53} \\ \frac{dA_4}{dt} &= A_3 k_{34} + A_6 k_{64} + A_7 k_4 7 + A_8 k_{48} + A_{10} k_{10.4} + A_{11} k_{11.4} + A_{12} k_{12.4} + A_{13} k_{13.4} - A_4 k_{44} \\ - A_4 k_{45} - A_4 k_{46} - A_4 k_{47} - A_4 k_{48} - A_4 k_{49} - A_4 k_{4.10} - A_4 k_{4.11} - A_4 k_{4.12} - A_4 k_{4.13} - A_4 k_{4.14} \\ \frac{dA_5}{dt} &= A_4 k_{45} - A_5 k_{53} - A_5 k_{55} \\ \frac{dA_6}{dt} &= A_4 k_{46} - A_6 k_{64} - A_6 k_{66} \\ \frac{dA_7}{dt} &= A_4 k_{47} - A_7 k_{74} - A_7 k_{77} \\ \frac{dA_8}{dt} &= A_4 k_{48} - A_8 k_{88} \\ \frac{dA_9}{dt} &= A_4 k_{49} - A_9 k_{99} \\ \frac{dA_{10}}{dt} &= A_4 k_{4.10} - A_{10} k_{10.4} - A_{10} k_{10.10} \\ \frac{dA_{11}}{dt} &= A_4 k_{4.11} - A_{11} k_{11.4} - A_{11} k_{11.11} \\ \frac{dA_{12}}{dt} &= A_4 k_{4.12} - A_{12} k_{12.4} - A_{12} k_{12.12} \\ \frac{dA_{13}}{dt} &= A_4 k_{4.13} - A_{13} k_{13.4} - A_{13} k_{13.13} \\ \frac{dA_{14}}{dt} &= A_4 k_{4.14} - A_{14} k_{14.14} \end{aligned}$$

A forma matricial deste sistema de equações encontra-se representada nas páginas seguintes, bem como o resultado da estimativa dos respectivos coeficientes de transferência.

i		A ₁	A ₂	A ₃	A4	A ₅	A ₆	A ₇	A ₈	A ₉	A ₁₀	A ₁₁	A ₁₂	A ₁₃	A ₁₄		ī		
<u>dA</u> 1 dt		- <b>k</b> 11- <b>k</b> 12	<b>k</b> 21	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0		A ₁		Ad.(1-F).Asolo
<u>dA₂</u> dt		<b>k</b> 12	- <b>k</b> 21- <b>k</b> 22- <b>k</b> 23	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0		A ₂		Ad.(F).A _{pasto}
dA ₃		0	<b>k</b> 23	-k ₃₄ -k ₃₃	0	k ₅₃	0	0	0	0	0	0	0	0	0		A ₃		0
dA₄ dt		0	0	<b>k</b> 34	-K44-K45-K46-K47-K48-K49-K4.10-K4.11 -K4.12-K4.13-K4.14	0	<b>k</b> 64	k74	<b>k</b> 84	0	<b>k</b> 10.4	<b>k</b> _{11.4}	<b>k</b> 12.4	<b>k</b> 13.4	0		A ₄		0
<u>dA₅</u> dt		0	0		k45	-k ₅₃ -k ₅₅	0	0	0	0	0	0	0	0	0		A ₅		0
<u>dA</u> ₀ dt		0	0		<b>k</b> 46	0	-k ₆₄ -k ₆₆	0	0	0	0	0	0	0	0		A ₆		0
<u>dA</u> z dt	=	0	0		K47	0	0	-k74-k77	0	0	0	0	0	0	0	*	A ₇	+	0
<u>dA</u> ₅ dt		0	0		k ₄₈	0	0	0	- <b>k</b> 84- <b>k</b> 88	0	0	0	0	0	0		A ₈		0
<u>dA</u> ₀ dt		0	0		<b>K</b> 49	0	0	0	0	- <b>k</b> 99	0	0	0	0	0		A9		0
dA10 dt		0	0		K4.10	0	0	0	0	0	- <b>k</b> 10.4- <b>k</b> 10.10	0	0	0	0		A ₁₀		0
<u>dA₁ı</u> dt		0	0		<b>K</b> 4.11	0	0	0	0	0	0	- <b>k</b> 11.4- <b>k</b> 11.11	0	0	0		A ₁₁		0
<u>dA₁₂</u> dt		0	0		<b>K</b> 4.12	0	0	0	0	0	0	0	<b>-k</b> 12.4 <b>-k</b> 12.12	0	0		A ₁₂		0
<u>dA₁₃</u> dt		0	0		k _{4.13}	0	0	0	0	0	0	0	0	<b>-k</b> 13.4 <b>-k</b> 13.13	0		A ₁₃		0
<u>dA₁₄</u> dt		0	0		K4.14	0	0	0	0	0	0	0	0	0	<b>-k</b> 14.14		A ₁₄		0

<u>dA1</u>		-0,0545	0,0414	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0		A ₁		577
dt																			
$dA_2$		0,0495	-0,0965	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0		A ₂		423
dt																			
<u>dA</u> 3		0	0,050	-6,144	0	0,139	0	0	0	0	0	0	0	0	0		A ₃		0
dt																			
<u>dA4</u>		0	0	6	-90,33	0	0,099	0,0069	0,099	0	0,099	0,099	0,099	0,0231	0		<b>A</b> 4		0
dt																			
$dA_5$		0	0	0	17,50	-0,144	0	0	0	0	0	0	0	0	0		$A_5$		0
dt																			
<u>dA₆</u>		0	0	0	17,50	0	-0,104	0	0	0	0	0	0	0	0		A ₆		0
dt																			
<u>dA7</u>	=	0	0	0	5,00	0	0	-0,0189	0	0	0	0	0	0	0	*	<b>A</b> 7	+	0
dt																			
<u>dA8</u>		0	0	0	32,50	0	0	0	-0,104	0	0	0	0	0	0		A ₈		0
dt																			
<u>dA9</u>		0	0	0	5,00	0	0	0	0	-0,178	0	0	0	0	0		A ₉		0
dt																			
<u>dA₁₀</u>		0	0	0	5,00	0	0	0	0	0	-0,104	0	0	0	0		A ₁₀		0
dt																			
<u>dA₁₁</u>		0	0	0	0,10	0	0	0	0	0	0	-0,104	0	0	0		A ₁₁		0
dt																			
<u>dA₁₂</u>		0	0	0	4,00	0	0	0	0	0	0	0	-0,104	0	0		A ₁₂		0
dt																			
<u>dA₁₃</u>		0	0	0	1,50	0	0	0	0	0	0	0	0	-0,0281	0		A ₁₃		0
dt																			
<u>dA₁₄</u>		0	0	0	0,32	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-0,005		A ₁₄		0
dt																			

Página 586

Os valores das constantes cinéticas de transferência e de perdas a usar na exploração do modelo para o ²¹⁰Po encontram-se representadas na Tabela 7-35. Os resultados da simulação estão representados na Figura 7-54; Figura 7-55; Figura 7-56, Figura 7-57 e Figura 7-58, sendo, respectivamente o 1.º, 2.º, 3º, 4.º e 5.º casos de exploração.

Constantes cinéticas (Leggett & Eckerman, 2001)		(d ⁻¹ )
Excreção	$\lambda_3$	0,139
Eliminação do organismo	λ ₉	0,173
Excreção pelo cabelo, pele, suor e unhas	λ ₇	0,00693
Perdas por migração no solo	λ ₂	0,000025
Perdas por decaimento	$\lambda_{d}$	0,005
Constantes cinéticas – perdas totais (Leggett & Eckerman, 2001)		d ⁻¹
k ₁₁ - perdas do compartimento 1 por decaimento e migração no solo	$\lambda_d + \lambda_2$	0,005025
k ₂₂ - perdas do compartimento 2 por decaimento	$\lambda_{d}$	0,005
$k_{33}$ - perdas do compartimento 3 por decaimento e excreção nas fezes	$\lambda_d + \lambda_3$	0,144
k ₄₄ - perdas do compartimento 4 por decaimento	$\lambda_{d}$	0,005
k ₅₅ - perdas do compartimento 5 por decaimento	$\lambda_{d}$	0,005
k ₆₆ - perdas do compartimento 6 por decaimento	$\lambda_d$	0,005
k77 - perdas do compartimento 7 por decaimento e excreção	$\lambda_d + \lambda_7$	0,01193
k ₈₈ - perdas do compartimento 8 por decaimento	$\lambda_{d}$	0,005
k ₉₉ - perdas do compartimento 9 por decaimento e eliminação na urina	$\lambda_d + \lambda_9$	0,178
k _{10.10} - perdas do compartimento 10 por decaimento	$\lambda_{d}$	0,005
k _{11.11} - perdas do compartimento 11 por decaimento	$\lambda_{d}$	0,005
k _{12.12} - perdas do compartimento 12 por decaimento	$\lambda_{d}$	0,005
k _{13.13} - perdas do compartimento 13 por decaimento	$\lambda_{d}$	0,005
k _{14.14} - perdas do compartimento 14 por decaimento	$\lambda_{d}$	0,005
Constantes cinéticas – transferência (Leggett & Eckerman, 2001)		d ⁻¹
k ₂₃ - cinética de transferência por ingestão	k ₂₃	0,05
$k_{34}$ - cinética de transferência do compartimento 3 para o compartimento 4	k ₃₄	6
$k_{53}$ - cinética de transferência do compartimento 5 para o compartimento 3	k ₅₃	0,139
$k_{45}$ - cinética de transferência do compartimento 4 para o compartimento 5	k ₄₅	17,5
k ₄₆ - cinética de transferência do compartimento 4 para o compartimento 6	k ₄₆	17,5
k ₆₄ - cinética de transferência do compartimento 6 para o compartimento 4	k ₆₄	0,099
$k_{47}$ - cinética de transferência do compartimento 4 para o compartimento 7	k ₄₇	5
k ₇₄ - cinética de transferência do compartimento 7 para o compartimento 4	k ₇₄	0,00693
k ₄₈ - cinética de transferência do compartimento 4 para o compartimento 8	k ₄₈	32,5
$k_{84}$ - cinética de transferência do compartimento 8 para o compartimento 4	k ₈₄	0,099
$k_{49}$ - cinética de transferência do compartimento 4 para o compartimento 9	k ₄₉	5
$k_{4.10}$ - cinética de transferência do compartimento 4 para o compartimento 10	<b>k</b> _{4.10}	5
$k_{10.4}$ - cinética de transferência do compartimento 10 para o compartimento 4	k _{10.4}	0,099
$k_{4.11}$ - cinética de transferência do compartimento 4 para o compartimento 11	<b>k</b> _{4.11}	2
$k_{11.4}$ - cinética de transferência do compartimento 11 para o compartimento 4	k _{11.4}	0,099
$k_{4.12}$ - cinética de transferência do compartimento 4 para o compartimento 12	k _{4.12}	4
$k_{12\!.4}$ - cinética de transferência do compartimento 12 para o compartimento 4	<b>k</b> _{12.4}	0,099
$k_{4.13}$ - cinética de transferência do compartimento 4 para o compartimento 13	<b>k</b> 4 12	1.5
	-4.13	, -
k _{13.4} - cinetica de transferencia do compartimento 13 para o compartimento 4	k _{13.4}	0,0231

Tabela 7-35: Constantes cinéticas necessárias à exploração do modelo para o ²¹⁰Po.



Figura 7-54: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²¹⁰Po), respectivamente:  $A_{1(0)} = 13 \ 134 \ Bq \ e \ A_{2(0)} = 1650 \ Bq.$ 





Figura 7-55: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto ( 210 Po), respectivamente: A₁₍₀₎ = 7000 Bq e A₂₍₀₎ = 400 Bq.



Figura 7-56: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto ( 210 Po), respectivamente: A₁₍₀₎ = 200 Bq e A₂₍₀₎ =344 Bq.



Figura 7-57: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²¹⁰Po), respectivamente:  $A_{1(0)} = 0$  Bq e  $A_{2(0)} = 344$  Bq.



Figura 7-58: Resultados da simulação para as condições iniciais de actividade no solo e no pasto (²¹⁰Po), respectivamente:  $A_{1(0)} = 400$  Bq e  $A_{2(0)} = 344$  Bq.

## 7.4.6.3 Discussão dos resultados (²¹⁰Po)

A concentração máxima de ²¹⁰Po no leite dos animais de pasto (concentração no compartimento 14 - C₁₄) obtida em cada caso de exploração é, respectivamente:  $C_{14} = 0,3 \text{ Bq/L}, C_{14} = 0,14 \text{ Bq/L}, C_{14} = 0,0126 \text{ Bq/L}, C_{14} = 0,0106 \text{ Bq/L} e C_{14} = 0,016 \text{ Bq/L}$ . Podemos calcular a dose para os humanos resultante da ingestão de leite, partindo do pressuposto de que esta é a única componente radiológica. Se o consumo médio anual da população for igual a 120 kg/ano, a ingestão anual de actividade será:

$$I_{nk} = C_{14} \left(\frac{Bq}{kg}\right) x 19 \left(\frac{kg}{ano}\right) = \left(\frac{Bq}{ano}\right)$$

e a dose resultante obtém-se multiplicando este valor pelo coeficiente de dose efectiva de ingestão para o ²¹⁰Po que é igual a 1,2 µSv/Bq (Kannan et I., 2001):

$$D_{ing} = I_{nk} \left( \frac{Bq}{ano} \right) x DC_{ing} \left( \frac{\mu Sv}{Bq} \right) = \left( \frac{\mu Sv}{ano} \right)$$

Os valores resultantes para a dose por ingestão referentes a cada caso encontram-se na Tabela 7-36.

C ₁₄ (Bq/kg)	I _{nk} (Bq/ano)	D _{ing} (uSv/ano)	D _{ing} (mSv/ano)
0,30	36,00	43,20	0,0432
0,14	16,80	20,16	0,0202
0,0126	1,51	1,81	0,0018
0,0106	1,27	1,53	0,0015
0,0160	1,92	2,30	0,0023

Tabela 7-36: Dose resultante da ingestão anual de leite contaminado com ²¹⁰Po.

Se adoptarmos como limite de dose o valor recomendado pela União Europeia, para a exposição do público em geral à radioactividade artificial, igual a 1 mSv/ano, verifica-se que os valores obtidos são muito inferiores ao valor limite. No entanto, esta comparação não é totalmente legítima porque há que considerar a contribuição de outras trajectórias para a dose total, nomeadamente a inalação de radão, a exposição externa à radiação  $\gamma$  e a contribuição de outros produtos contaminados que fazem parte da dieta alimentar, como por exemplo, vegetais, água, carne, etc., sendo que a ingestão de leite contaminado contribuirá com uma pequena fracção para a dose total. Na bibliografia consultada referente ao "Olen Site, o local situado na Bélgica, contaminado com resíduos radioactivos resultantes da produção de rádio, a dose

anual resultante da ingestão de leite contaminado com ²¹⁰Po é igual a 0,041 mSv/ano e, neste caso, a ingestão de leite contaminado representa apenas 1% da dose total (Paridaens, 2005). Analogamente, se considerarmos que os valores anteriores estimados para a dose correspondem a 1% da dose total então os restantes 99% da dose total para cada um dos casos explorados seriam: 4,28 mSv/Bq; 2,0 mSv/Bq; 0,18 mSv/Bq; 9,15 mSv/Bq e 0,23 mSv/Bq.

D _{ing} (mSv/ano) 99%	D _{ing} (mSv/ano) 1%	D _{ing} total (mSv/ano)	Classificação
4,28	0,0432	4,32	>1 (mSv/ano)
2,00	0,0202	2,02	>1 mSv/ano)
0,18	0,0018	0,18	<1 (mSv/ano)
0,15	0,0015	0,15	<1 (mSv/ano)
0,23	0,0023	0,23	<1 (mSv/ano)

Tabela 7-37: Dose total resultante da exposição ao ²¹⁰Po.

Nos dois primeiros casos o valor da dose total é superior ao valor máximo recomendado de 1 mSv/ano que é cerca de metade da dose recebida anualmente, para a maioria da população, resultante do fundo natural. No local referido como comparação, o *background* varia entre 0,384 e 0,768 mSv/ano e as zonas que originam uma dose de 2 mSv/ano foram classificadas como levemente contaminadas e as que originam uma dose de 5 mSv/ano foram classificadas como medianamente contaminadas (Paridaens, 2005).

Fazendo a correspondência dos resultados com a exploração do modelo, no primeiro caso foi usado para concentração no solo o valor da concentração de ²¹⁰Po resultante da deposição dos aerossóis contaminados na Urgeiriça e os resultados do modelo completo quer da actividade, quer da concentração de ²¹⁰Po no leite são cerca de uma ordem de grandeza inferiores aos do modelo simples. No segundo caso foi usado para a concentração no solo um valor supostamente da mesma ordem de grandeza ao da radioactividade natural nos solos portugueses, para se obter o valor documentado na bibliografia referente à concentração de ²¹⁰Po no leite de vaca igual a 180 mBq/kg: o resultado do modelo completo para estas condições iniciais foi de 140 mBq/kg (Kannan et al., 2001).

Os restantes casos também correspondem a situações de radioactividade natural e por isso a dose total resultante é bastante inferior a 1 mSv/ano, apesar de existirem locais em que a radioactividade natural origina uma dose efectiva total superior a este valor.

# 7.4.7 Exploração do modelo para o tório (²³²Th, ²³⁴Th e ²³⁰Th)

O tório ocorre naturalmente em pequenas concentrações (cerca de 10 ppm) na superfície terrestre, é três vezes mais abundante do que o urânio e com uma abundância igual à ao chumbo. No seu estado natural encontra-se no ambiente na forma de ²³²Th e faz parte da série radioactiva do tório. Encontra-se no solo com uma concentração média de 25 Bq/kg (BEIR, 1988).

Existem 26 isótopos de tório em que doze têm semi-vida superior a um segundo e apenas três têm semi-vida suficientemente elevada para constituírem preocupação ambiental. Estes isótopos decaem muito lentamente com a emissão de partícula  $\alpha$ . A semi-vida dos isótopos ²³⁰Th e ²³²Th é muito elevada (8 x 10⁴ e 1,4 x 10¹⁰ anos, respectivamente) e a sua actividade específica é muito pequena (0,11 µCi/g e 0,020 Ci/g, respectivamente) o que significa que estes radioisótopos não são altamente radioactivos.

O ²³⁰Th é um produto do decaimento do ²³⁸U e encontra-se preferencialmente nos depósitos de urânio, bem como nos estéreis resultantes do processamento de urânio, em pequenas concentrações. Adere preferencialmente às partículas do solo.

A concentração de tório nas plantas é cerca de 0,42 % da concentração existente no solo (ANL, 2005b). Excepcionalmente as plantas podem constituir uma trajectória importante de entrada na cadeia alimentar, especialmente em locais agrícolas próximos de zonas mineiras ou de depósitos de materiais radioactivos. A mobilidade do tório no solo é um factor determinante para que haja absorção pelas plantas. Não existem na bibliografia muitos estudos relativos à absorção do tório pelas plantas, comparativamente com outros radionuclídeos da série radioactiva do urânio.

A trajectória de entrada no organismo pode ocorrer pela ingestão ou pela inalação. A maioria do tório inalado ou ingerido é eliminado dentro de poucos dias após a entrada no organismo mas uma pequena fracção é absorvida pela corrente sanguínea e apenas 0,05 % da quantidade ingerida é absorvida através do tracto gastrointestinal (GIT) (ANL, 2005b).

No caso do radioisótopo ²³²Th em que a absorção gastrointestinal é fraca, a inalação de partículas sólidas ressuspensas representa uma trajectória de entrada no organismo mais preocupante do que a sua ingestão. O produto do decaimento deste radionuclídeo é o ²²⁸Ra que apresenta uma elevada mobilidade no ambiente e ao

contrário do ²³²Th, a sua ingestão constitui a trajectória de entrada no organismo de maior preocupação.

Da quantidade de tório que entra no sangue, cerca de 70 % deposita-se nos ossos onde é retido com uma semi-vida biológica de 22 anos, 4 % deposita-se no fígado com uma semi-vida biológica de 700 dias, 16 % é uniformemente distribuído pelos restantes tecidos onde é eliminado com uma semi-vida biológica de 700 dias. Os restantes 10 % são directamente excretados (Leggett, 1993).

A ingestão é a trajectória de maior preocupação mas a inalação também pode constituir uma trajectória relevante quando na presença de poeiras contendo tório como é o caso das pilhas de estéreis de urânio. No caso de inalação, a absorção no organismo é superior à que ocorre pela ingestão. Poucos dados existem relativamente aos efeitos na saúde pública associados com pequenos níveis de exposição ambiental quer devido à inalação quer devido à ingestão (ANL, 2005b).

O tório deposita-se primeiramente no esqueleto e o seu comportamento aparenta ser controlado pelos mesmos processos de crescimento e de remodelação do osso. Numa versão mais actualizada e pormenorizada do modelo biocinético do ICRP (Leggett, 1993) da quantidade que se deposita no esqueleto (70 %) metade distribui-se na parte cortical e metade na parte trabecular do tecido ósseo, 4 % distribui-se pelo o fígado, 0,7 % pelos rins, 0,4 % no baço e os restantes 24,9 % são distribuídos pelos outros tecidos. O tório deposita-se inicialmente na superfície do osso mas pode gradualmente ser incorporado no volume do osso durante o processo de remodelação (Leggett, 1993).

A estrutura do modelo biocinético divide os fluidos e os tecidos em 5 compartimentos principais: plasma, esqueleto, fígado, rins e outros tecidos moles. À excepção do plasma, cada um dos restantes compartimentos é dividido em pequenos subcompartimentos necessários para descrever a cinética de transferência entre os compartimentos principais.

O esqueleto é dividido na fracção cortical e trabecular e cada um destes compartimentos é dividido em fracções associadas com a superfície dos ossos, volume e medula óssea.

O fígado é dividido em dois compartimentos, consoante a retenção a longo prazo ou a curto prazo. A actividade retida no compartimento a curto prazo é distribuída posteriormente pelo plasma, pelo compartimento de retenção a longo prazo e pelos componentes do tracto gastrointestinal. A actividade eliminada do compartimento a longo prazo é distribuída na corrente sanguínea.

Os rins estão divididos em dois compartimentos: de um dos compartimentos a actividade é directamente transferida para a urina e de outro a actividade regressa ao sangue. O tracto urinário é considerado um meio separado que recebe todo o material que se destina à eliminação por esta trajectória.

### 7.4.7.1 Exploração do modelo na trajectória pasto-vaca-leite: ²³²Th, ²³⁴Th e ²³⁰Th

Na bibliografia consultada foi possível obter valores da actividade para os radioisótopos: ²³⁰Th, ²³²Th e ²³⁴Th, (Leggett & Pellmar, 2003), (Falcão et al., 2005), (EXMIN, 2003).

Tabela 7-38: Constantes cinéticas de transferência para o ²³²Th, ²³⁴Th e ²³⁰Th (Braithwaite, 1997), (NCRP, 1980), (Leggett & Pellmar, 2003).

Constantes cinéticas de transferência	(d ⁻¹ )
Ressuspensão do solo para o pasto	0,041
Cinética da transferência do solo para as raízes	2,48 x 10 ⁻⁸
Cinética de transferência do pasto para o solo por processos ambientais	0,0495
Cinética da transferência das raízes para as partes comestíveis	1
Constante cinética do equilíbrio entre as raízes e o solo ( $\lambda_r$ )	2,4 x 10 ⁻³
Cinética da transferência para a vaca por ingestão do pasto contaminado	2,5 x 10⁻⁵
Cinética de transferência da vaca para o leite	0,2
	Constantes cinéticas de transferênciaRessuspensão do solo para o pastoCinética da transferência do solo para as raízesCinética de transferência do pasto para o solo por processos ambientaisCinética da transferência das raízes para as partes comestíveisConstante cinética do equilíbrio entre as raízes e o solo (λr)Cinética da transferência para a vaca por ingestão do pasto contaminadoCinética de transferência da vaca para o leite

	Constantes cinéticas de perdas (d ⁻¹ )	(d ⁻¹ )
<b>k</b> ₁₁	Perdas no solo (decaimento, lixiviação e migração no solo)	
	²³⁰ Th	2,7 x 10 ⁻⁵
	²³² Th	2,7 x 10 ⁻⁵
	²³⁴ Th	2,88 x 10 ⁻²
<b>k</b> 22	Perdas por decaimento radioactivo na superfície	
	²³⁰ Th	2,37 x 10 ⁻⁸
	²³² Th	1,67 x 10 ⁻¹³
	²³⁴ Th	2,88 x 10 ⁻²
<b>k</b> 33	Perdas por decaimento radioactivo nas raízes	
	²³⁰ Th	2,37 x 10 ⁻⁸
	²³² Th	1,67 x 10 ⁻¹³
	²³⁴ Th	2,88 x 10 ⁻²
$\mathbf{k}_{44}$	Perdas na vaca (decaimento, excreção e eliminação pela urina) (Leggett &	
	Pellmar, 2003), (ICRP, 2006)	0,2
	²³⁰ Th	0,2
	²³² Th	0,3
	²³⁴ Th	
<b>k</b> 55	Perdas por decaimento radioactivo no leite	
	²³⁰ Th	2,37 x 10 ⁻⁸
	²³² Th	1,67 x 10 ⁻¹³
	²³⁴ Th	2,88 x 10 ⁻²
$\lambda_d$	Constante física de decaimento radioactivo	_
	²³⁰ Th	2,37 x 10 ⁻⁸
	²³² Th	1,67 x 10 ⁻¹³
	²³⁴ Th	2,88 x 10 ⁻²
$\lambda_{b}$	Perda de actividade no solo pelos processos ambientais	2,7 x 10 ⁻⁵
$\lambda_6$	Cinética de eliminação da vaca através da excreção	0,084
λ7	Cinética de eliminação da vaca através da urina	0,1

Tabela 7-39: Constantes cinéticas de transferência para o ²³²Th, ²³⁴Th e ²³⁰Th.

	Outros parâmetros	Valor
$\mathbf{C}_{ar}$	Concentração no ar (ressuspensão do solo) (Bq.m ⁻³ )	
	²³⁰ Th	5,0 x 10 ⁻⁶
	²³² Th	3,8 x 10 ⁻⁶
	²³⁴ Th	4,53
Cs	Concentração na superfície do solo ( <i>Input</i> ) (Bq.m ⁻² )	
	²³⁰ Th	8,78 x 10 ⁻²
_	²³² Th	6,67 x 10 ⁻²
	²³⁴ Th	7,95 x 10 ⁴
As	Deposição no solo (Bq.m ⁻² .d ⁻¹ )	0,577
$A_{p}$	Deposição no pasto (Bq.m ⁻² .d ⁻¹ )	0,423
FT	Factor de transferência do solo para a erva de pasto	0,00033
f ₁	Fracção da absorção do urânio pelo sistema gastrointestinal (GIT)	5,0 x 10 ⁻⁴

Tabela 7-40: Outros parâmetros necessários à simulação para o ²³²Th, ²³⁴Th e ²³⁰Th.

Na tabela seguinte encontram-se os dados iniciais usados na exploração do modelo e que foram compilados da bibliografia consultada.

Tabela 7-41: Valores da concentração para o ²³²Th, ²³⁴Th e ²³⁰Th referentes a diversos locais.

Fonte		
MinUrar (Urgeiriça) (Falcão et al., 2005) - Aerossóis	Bq.m ⁻³	Bq
²³⁰ Th	6,5 x 10 ⁻⁶	87,80
²³² Th	3,8 x 10 ⁻⁶	66,72
Exmin (Urgeiriça) (EXMIN, 2003) - Solo	Bq/kg	Bq
²³⁰ Th	1723	5,51 x 10 ⁷
²³² Th	42	1,34 x 10 ⁶
²³⁴ Th	2486	7,96 x 10 ⁷
Hass et al. (1995) - Solo de áreas agrícolas	Bq/kg	Bq
²³² Th e ²²⁸ Th	430	1,38 x 10 ⁷
Leite ²²⁸ Th (Bq/kg)	0,002	
Fernald site (DOE, 2003)	Bq/kg	Bq
Leite ²²⁸ Th ( $\lambda_d = 0,000999 \text{ d}^{-1}$ )	2,6	3,0 x 10 ⁴
Leite ²³⁰ Th	0,6	6,0 x 10 ⁴
Leite ²³² Th	<1,2	2,5 x 10 ⁶

Para o primeiro caso de exploração, a concentração no solo pode ser estimada a partir da actividade nos aerossóis existente no local considerado, uma vez que só dispomos destes dados. Assim, através da expressão usada para o rádio estimou-se a concentração no solo superficial resultante da deposição dos aerossóis contaminados:

$$C_{ar}\left(\frac{Bq}{m^3}\right) = C_{solo}\left(\frac{Bq}{m^2}\right) \cdot R_e\left(\frac{1}{m}\right)$$

e com o valor resultante estimou-se a respectiva actividade no compartimento solo.

$$C_{solo} \left( {^{230}} \text{Th} \right) = \frac{C_{ar}}{R_e} = \frac{6.5 \times 10^{-6}}{5.7 \times 10^{-5}} = 0.0879 \left( \frac{Bq}{m^2} \right)$$
$$A_{solo} \left( {^{230}} \text{Th} \right) = C_{solo} \left( \frac{Bq}{m^2} \right) \cdot A \left( m^2 \right) = 0.0879 \cdot 1000 = 87.9 (Bq)$$
$$C_{solo} \left( {^{232}} \text{Th} \right) = \frac{3.8 \times 10^{-6}}{5.7 \times 10^{-5}} = 0.0667 \left( \frac{Bq}{m^2} \right)$$
$$A_{solo} \left( {^{232}} \text{Th} \right) = C_{solo} \left( \frac{Bq}{m^2} \right) \cdot A \left( m^2 \right) = 0.0667 \cdot 1000 = 66.7 (Bq)$$

Na figura seguinte encontram-se representados os resultados desta simulação para o ²³⁰Th e para o ²³²Th.





Para o horizonte temporal de 100 dias, o valor máximo da actividade no leite é 0,04 Bq/kg e a respectiva concentração é de 4,0 x 10⁻⁴ Bq/kg. Para o horizonte temporal de 100 000 dias, a actividade no leite aumenta até atingir o máximo de 8,6 Bq e a partir deste valor diminui muito lentamente. A respectiva concentração aumenta até atingir o máximo de 0,008 Bq/kg obtida ao fim de 180 dias, a partir deste valor diminui também muito lentamente. Os resultados da exploração para o ²³²Th estão representados na Figura 7-60.



Figura 7-60: Resultados da simulação para a actividade no solo estimada a partir da concentração de  232 Th nos aerossóis na Urgeiriça: A₁₍₀₎ = 66,72 Bq e A₂₍₀ = 0 Bq.

A actividade no leite aumenta até 0,038 Bq (figuras a; c) e a respectiva concentração aumenta também até 3,3 x  $10^{-5}$  Bq/kg (figuras b; d) para o horizonte temporal de 120 dias. Para um horizonte temporal de 300 dias o valor máximo da actividade é de 0,102 Bq (figura e) e o valor máximo para a concentração é de 9,0 x  $10^{-5}$  Bq/kg (figura f). Para um horizonte temporal de 90 000 dias o valor máximo da actividade é de 6,5 Bq e o valor máximo da respectiva concentração é de 0,025 Bq/kg (figuras g, h).

No caso de exploração seguinte foram usados como dados iniciais para a actividade no solo os valores referentes à zona da Urgeiriça para os RDN: ²³⁰Th, ²³²Th e ²³⁴Th.



Figura 7- 61: Resultados da simulação para a concentração inicial de ²³⁰Th no solo e no pasto, respectivamente:  $A_{1(0)} = 5,51 \times 10^7$  Bq e  $A_{2(0)} = 0$  Bq.

Para o horizonte temporal de 2,5 x  $10^8$  dias a concentração no leite é zero. Para o horizonte temporal de 400 dias o valor máximo da concentração no leite é de 20 Bq/kg, obtido ao fim de 50 dias.

Para o ²³²Th, os resultados encontram-se representados na figura seguinte.





A actividade no leite aumenta até 770 Bq (figuras a; c) para um horizonte temporal de 120 dias e a respectiva concentração também aumenta até 0,72 Bq/kg (figuras b, d). Para um intervalo de 900 dias a concentração atinge o valor máximo a 5,3 Bq/kg, valor a partir do qual decresce lentamente até ser nula.

Para o ²³⁴Th, os resultados encontram-se representados na figura seguinte.





Figura 7- 63: Resultados da simulação para a concentração inicial de ²³⁴Th no solo e no pasto, respectivamente:  $A_{1(0)} = 7,96 \times 10^7$  Bq e  $A_{2(0)} = 0$  Bq.

A actividade aumenta até 3750 Bq e a respectiva concentração aumenta até 4,71 Bq/kg ao fim de 13 dias, valor a partir do qual diminui até ser nula, o que acontece ao fim de aproximadamente 45 dias.

O terceiro caso de exploração refere-se a solos agrícolas contaminados essencialmente com ²³²Th e ²²⁸Th de origem natural. Os resultados da simulação do modelo encontram-se representados na figura seguinte.



Figura 7-64: Resultados da simulação para a concentração de ²³²Th em solos agrícolas de origem natural:  $A_{1(0)} = 1,38 \times 10^7$  Bq e  $A_{2(0)} = 0$  Bq.

A actividade aumenta até 0,78 x 10⁴ Bq e a respectiva concentração a atinge o valor máximo de 6,8 Bq/kg ao fim de 70 dias aproximadamente, a partir deste valor a concentração diminui lentamente.

Fez-se ainda uma exploração do modelo para o ²²⁸Th para estimar a actividade inicial no solo que origina uma concentração no leite igual a 0,002 Bq/kg, valor correspondente ao valor medido neste local. O valor obtido para a actividade inicial no solo foi de 500 Bq para um horizonte temporal de 12 000 dias. Os resultados encontram-se representados na figura seguinte.


Figura 7-65: Resultados da simulação para a obter a concentração de ²²⁸Th no leite = 0,002 Bq/kg:  $A_{1(0)} = 500$  Bq e  $A_{2(0)} = 0$  Bq.

400 500 600 Tempo (dias) 1000

0 45

e)

A actividade aumenta até 1,5 Bq (figuras a; c) e a respectiva concentração atinge o valor máximo de 0,0045 Bq/kg ao fim de 45 dias (figuras a; d; e), a partir deste valor a concentração diminui ao longo do tempo até ser nula.

No último caso de exploração usaram-se como valores iniciais da actividade no solo e no pasto os valores referentes ao "Fernald Site", já descrito anteriormente, para os seguintes RDN: ²²⁸Th, ²³⁰Th e ²³²Th. Estes valores foram estimados de forma a obter as respectivas concentrações medidas no leite de vaca.

Para o ²²⁸Th a actividade inicial estimada foi de 300 000 Bq para um horizonte temporal de 12 000 dias de forma a obter a concentração no leite de 2,6 Bq/kg. A representação gráfica destes resultados encontra-se na figura seguinte.



Figura 7-66: Resultados da simulação para a obter a concentração de ²²⁸Th no leite igual a 2,6 Bq/kg:  $A_{1(0)}$ = 3 x 10⁵ Bq e  $A_{2(0)}$  = 0 Bq.

A actividade aumenta até 800 Bq (figuras a; c) e a respectiva concentração a atinge o valor máximo de 2,6 Bq/kg ao fim de 35 dias (figuras d; d), a partir deste valor, a concentração diminui ao longo do tempo até ser nula.

Para o ²³⁰Th a actividade inicial estimada foi de 60 000 Bq para um horizonte temporal de 10 000 dias de forma a obter a concentração no leite de 0,6 Bq/kg. A representação gráfica destes resultados encontra-se na figura seguinte.



Figura 7-67: Resultados da simulação para a obter a concentração de ²³⁰Th no leite igual a 0,6 Bq/kg:  $A_{1(0)}$ = 60 000 Bq e  $A_{2(0)}$  = 0 Bq.

A actividade aumenta até 2900 Bq (figura a) e a respectiva concentração a atinge o valor máximo de 0,53 Bq/kg ao fim de 30 dias (figuras b; c; d), a partir deste valor a concentração diminui ao longo do tempo até ser nula.

Para o ²³²Th a actividade inicial estimada foi de 2 500 000 Bq para um horizonte temporal de 120 dias de forma a obter a concentração no leite inferior a 1,2 Bq/kg. A representação gráfica destes resultados encontra-se na figura seguinte.



Figura 7-68: Resultados da simulação para a obter a concentração de ²³²Th no leite < 1,2 Bq/kg:  $A_{1(0)} = 2,5 \times 10^6$  Bq e  $A_{2(0)} = 0$  Bq.

A actividade aumenta até 1450 (figuras a; c) Bq e a respectiva concentração a atinge o valor máximo de 1,2 Bq/kg ao fim de 40 dias (figuras b; d), a partir deste valor a concentração diminui muito lentamente.

#### 7.4.7.2 Discussão dos resultados (²³²Th, ²³⁴Th e ²³⁰Th)

Dependente do radioisótopo presente, a trajectória de entrada mais significativa pode ser a inalação ou a ingestão. No caso do ²³²Th a absorção gastrointestinal é apenas 0,05% da quantidade ingerida, sendo a inalação muito mais significativa.

O ICRP recomenda o valor de 0,02 % para a absorção gastrointestinal nos humanos de todas as formas de tório, mas estudos mais recentes demonstraram uma absorção superior, variável entre 0,1 e 1 % (ATSDR, 1990). A actividade específica do ²³⁰Th e do ²³²Th não é elevada pelo que estes radioisótopos não são altamente radioactivos.

O modelo biocinético desenvolvido pelo ICRP é bastante complexo como acontece para o modelo dos RDN explorados anteriormente.

Os valores da concentração presentes no leite de vaca resultantes de um estudo de vigilância radiológica efectuado na Polónia, usado como base de comparação, apresentam os seguintes valores:  228 Th = 0,00139 Bq/L,  230 Th = 0,00076 Bq/L e  232 Th = 0,00061 Bq/L (Pietrzak et al., 2001). Consideramos que 1 Bq/L é igual a 1 Bq/kg, pois 1 litro de leite corresponde aproximadamente a 1 quilograma da mesma substância, uma vez que a densidade do leite se aproxima de kg/L (1,03).

Relativamente ao primeiro caso de exploração o valor obtido para o ²³⁰Th é cerca de uma ordem de grandeza superior (0,007 Bq/kg) e para o ²³²Th é cerca de uma ordem de grandeza inferior (0,0000326 Bq/kg).

Para o segundo caso de exploração, a concentração em ²³⁰Th é nula e para o ²³²Th é igual a 0,65 Bq/kg cerca de 1000 vezes superior ao valor de comparação.

Para o terceiro caso apenas o resultado obtido para o ²²⁸Th (0,0045 Bq/kg) se aproxima do valor de comparação.

No último caso de exploração, foi possível obter ao fim alguns dias, 30 a 45 dias, a concentração no leite coincidente com os valores resultante da monitorização do local.

Os valores da concentração para o tório permissíveis na água de ingestão definidos pelo *National Research Council* (BEIR, 1988) são os seguintes: ²²⁸Th = 0,01 Bq/L; ²³⁰Th = 0,03 Bq/L e ²³²Th = 0,04 Bq/L (Hass et al., 1995). Na falta de limites permissíveis para a concentração no leite, comparamos estes limites referentes à água com os valores obtidos no modelo para a concentração no leite de vaca. Isto porque, no seguimento da transferência de RDN na cadeia alimentar, o leite contaminado será ingerido pelos humanos contribuindo para a dose resultante por ingestão. Verifica-se que apenas no segundo caso de exploração o valor de ²³²Th é superior aos limites permissíveis.

"As questões seguintes têm de me interessar ardentemente... Que alvo pode ser desejado e atingido pela ciência a que me dedico? Até que ponto são os seus resultados gerais verdadeiros?"

Albert Einstein

"Temos de tentar adoptar uma atitude altamente crítica em relação àquelas teorias que mais admiramos."

Karl Popper

# **Capítulo 8**

## Conclusões

### 8.1 Conclusões

Chegados a este ponto, torna-se inevitável fazer um balanço relativamente ao que nos propusemos desenvolver no início deste trabalho e até onde conseguimos chegar. Ao longo de cada capítulo foram apresentadas algumas conclusões que surgiram da discussão dos resultados obtidos. Iremos agora, em jeito de resenha final, ressalvar as principais conclusões a que chegamos no final deste trabalho.

O presente trabalho viu cumprido o objectivo principal de desenvolvimento de modelos matemáticos fenomenológicos da distribuição intercompartimental aplicáveis às substâncias radioactivas. Desenvolveu-se um modelo multicompartimental para estimar a concentração da actividade em pontos de exposição predefinidos. O trabalho de investigação prendeu-se essencialmente com o estudo e a modelagem do transporte e do destino dos radionuclídeos no ambiente para a avaliação da exposição ambiental directa a uma fonte de contaminação radioactiva e indirecta às fontes secundárias geradas por esta.

Foi desenvolvido para cada compartimento um modelo matemático de exposição a radioisótopos gerados a partir de uma fonte comum – o armazenamento de escombros ou resíduos; estudaram-se os fenómenos de libertação, os processos de transporte e os mecanismos de transferência entre fases, para cada compartimento considerado: solo, ar, água subterrânea, água superficial, vegetação e, por último o encadeamento da transferência dos radionuclídeos na cadeia alimentar, sendo possível com os resultados obtidos quantificar a exposição resultante para os seres-humanos através da estimativa de doses.

As principais trajectórias de contaminação foram identificadas de forma a determinar a melhor abordagem relativamente aos modelos a desenvolver. Também foram identificados os radionuclídeos de maior relevância em cada compartimento com base nas suas propriedades químicas, físicas e radiológicas.

Em cada capítulo tentámos adoptar a mesma metodologia: descrição e caracterização do compartimento ou meio analisado; desenvolvimento de um modelo conceptual; desenvolvimento do modelo matemático em função do modelo conceptual definido e a exploração do modelo para várias situações definidas, tentando explorar uma ou várias situações teóricas e um caso em particular tomado como "caso de estudo" – a envolvente da zona mineira da Urgeiriça.

A descrição e caracterização de cada compartimento foi feita em função dos dados disponíveis referentes ao local, inicialmente descritos na bibliografia, tendo sido posteriormente disponibilizados pela EXMIN, Companhia de Indústria e Serviços, S.A. Assim pudemos obter e utilizar informações relativas às concentrações de radão no ar e às concentrações de rádio e de urânio nas águas subterrâneas e superficiais, o que permitiu no conjunto corrigir valores de *inputs* anteriores e, especialmente, comparar os resultados obtidos através dos modelos com os dados locais, nos casos do radão no ar, do rádio e do urânio na água subterrânea, do rádio no caso da água superficial e dos sedimentos e do rádio no caso da vegetação. Foi-nos assim possível fazer a validação dos modelos parcelares. Para os casos em que não foi possível obter dados, pesquisamos locais e/ou situações semelhantes, para que pudéssemos comparar os resultados obtidos, nomeadamente no último capítulo da transferência para a cadeia alimentar através da transferência *pasto-vaca-leite*.

Resumimos em seguida as principais conclusões deste estudo em função dos resultados obtidos, do desempenho de cada modelo parcelar e das dificuldades encontradas até chegar a alguns resultados.

O primeiro modelo apresentado no capítulo 2 é constituído por um algoritmo baseado no equilíbrio dinâmico entre os radioisótopos presentes nos resíduos sólidos das operações de mineração e tratamento do minério de urânio. A estimativa é feita assumindo o equilíbrio radioactivo entre as séries do urânio ²³⁸U e ²³⁵U obtendo-se como resultado a concentração da actividade de cada radionuclídeo no resíduo, incluindo o conteúdo em rádio, parâmetro que vai ser necessário para a simulação da libertação de radão para a atmosfera respirável. Os resultados obtidos foram usados nos modelos seguintes sempre que não foi possível obter medições ou valores concretos do local tomado para estudo. Este modelo assume uma contaminação homogénea no resíduo resultante do tratamento de um minério com teor predefinido, no entanto, a actividade em rádio no local tomado como estudo de caso, a barragem de estéreis da mina da Urgeiriça, é bastante heterogénea tendo sido identificadas,

através de sondagens, várias zonas com diferentes valores médios para a actividade em rádio. Em apenas duas destas zonas ( $B_1 e B_2$ ) a actividade em ²²⁶Ra é semelhante ao valor que se obteve no algoritmo da distribuição da actividade pelos radioisótopos para o teor de minério considerado. Face a estes resultados podemos dizer que a estimativa teórica da repartição dos radioisótopos no resíduo traduz uma boa aproximação da actividade de cada radioisótopo, quando aplicado a uma área homogeneamente contaminada, o que implica que todo o material constituinte do resíduo tenha origem no mesmo minério tratado e no mesmo processo de tratamento.

O fluxo de radão que se liberta do resíduo é estimado a partir das equações básicas da difusão num meio poroso o que permite a descrição matemática do transporte do radão através do resíduo e da cobertura, se esta existir. O algoritmo desenvolvido para este compartimento incorpora ainda a atenuação de radão originada por um sistema de cobertura arbitrário dimensionada para o local de deposição. Em alternativa, é possível estimar uma espessura da cobertura que permita um fluxo de radão inferior aos limites aceitáveis estipulados.

Foram efectuadas várias simulações para determinar o fluxo de radão que se liberta do rádio presente nos resíduos, com dados de *inputs* de origem diferente, referentes à envolvente mineira da Urgeiriça. Da comparação dos resultados obtidos com as medições efectuadas no local em estudo podemos concluir o seguinte:

- A estimativa do fluxo de radão depende do coeficiente de difusão, cuja variação é muito sensível relativamente à percentagem de humidade do material e à porosidade: os parâmetros físicos locais, nomeadamente, a porosidade e a humidade, são determinantes para o cálculo do coeficiente de difusão e do fluxo resultante. Estes parâmetros são variáveis ao longo do ano devido às variações climáticas.
- O fluxo estimado depende ainda da quantidade de rádio presente no material constituinte do resíduo, que pode ser variável de local para local e que no caso da Urgeiriça, representa uma contaminação fortemente heterogénea, bem como pela capacidade de retenção de água que é um parâmetro sazonal e também no caso da Urgeiriça apresenta um intervalo de variação muito alargado. A grande dificuldade na estimativa do fluxo de radão resulta da variabilidade dos parâmetros envolvidos, espacial e temporalmente, o que representa uma heterogeneidade natural que não pode ser reduzida, apenas quantificada.

- O fluxo libertado pode ser reduzido até quase à sua totalidade através de um sistema de cobertura eficaz, dependendo grandemente da sua espessura.
- A variação do fluxo com a dimensão da área contaminada não é significativa, pelos menos, nos casos considerados na simulação do modelo. A estimativa do fluxo de radão no modelo pressupõe a ponderação pela área total da fonte de contaminação.
- Existem muitas expressões empíricas disponíveis para o cálculo do coeficiente de difusão, necessário à estimativa do fluxo libertado, mas estas devem ser usadas com especial cuidado pois o significado dos parâmetros é variável consoante a expressão empírica, o que resulta em valores muito diferentes de fluxo para as mesmas condições. Estas diferenças são ainda acentuadas pela adopção indiscriminada do coeficiente de difusão simples e do coeficiente de difusão efectivo.

A dispersão do radão é estimada pelo modelo da pluma de dispersão de Gauss o que implica o conhecimento do histórico da velocidade média do vento, direcção e frequência, estabilidade atmosférica e dados de precipitação local.

A dispersão do radão na atmosfera, segundo cada direcção do vento e em cada sector, origina uma diluição da concentração de radão ao fim de alguns metros. Na direcção dominante do vento, todo o fluxo é dirigido para o sector referente à direcção dominante do vento, sendo nulo nos restantes sectores. A simulação da dispersão do radão na direcção dominante do vento aproxima-se mais da realidade face aos valores obtidos e aos valores medidos, para a variação da concentração de radão com a distância à fonte de contaminação.

Neste modelo efectuamos várias simulações relativamente à dispersão de radão no ar para o local de estudo, nomeadamente com valores medidos para o fluxo de radão em vez de usar os valores estimados, dada a elevada variabilidade e sensibilidade dos parâmetros na sua estimativa. Foi feita a validação deste modelo com a informação disponibilizada pela EXMIN.

Para o transporte hidrológico foi desenvolvido um modelo bidireccional para simular a libertação dos radionuclídeos e o seu transporte sequencialmente em duas direcções: verticalmente através do resíduo e do solo até à água subterrânea e horizontalmente ao longo do aquífero até ao ponto de exposição.

A avaliação da exposição é o principal objectivo do modelo e não se pretende que este seja um modelo exaustivo da simulação do transporte dos RDN na zona insaturada e na zona saturada ou na água subterrânea.

Obtivemos como resultado final a concentração dos radionuclídeos na água subterrânea, em função do tempo decorrido, a uma distância predefinida da fonte de contaminação. Esta distância corresponde ao ponto de exposição, representado por um hipotético poço, onde os radionuclídeos se encontram acessíveis para a exposição através do uso da água para ingestão ou para rega.

A simulação do transporte dos radionuclídeos na trajectória horizontal, ao longo do aquífero, é feita com base nos processos de transporte descritos pela equação genérica de difusão/dispersão – advecção. O modelo usa uma solução analítica da equação de transporte obtida para um transporte em estado estacionário e unidimensional de uma substância reactiva com decaimento radioactivo e retardação. Mediante o desempenho do modelo podemos dizer que:

- As limitações da concepção do modelo resultam da aplicação da solução analítica de transporte, limitada pela forma específica das suas condições fronteira, o que vai gerar algum erro devido à aproximação das condições fronteira; a magnitude do erro vai depender largamente da conformidade entre as condições locais e as condições do modelo teórico.
- A situação ideal no modelo aplica-se a camadas ou estratos geológicos com propriedades constantes, uniformes e horizontais, para que os dados possam ser igualmente atribuídos a todos os estratos.

Considera-se que a libertação do RDN da matriz do resíduo ocorre através da lixiviação pela água da precipitação. Este processo depende de diversos factores: os mais importantes são o débito de infiltração de água e a capacidade de absorção da matriz para reter os constituintes do resíduo. O débito de infiltração de água depende essencialmente do estado de conservação da cobertura, se esta existir.

 A infiltração dos RDN até ao aquífero, no caso da envolvente mineira da Urgeiriça, ocorre através de um sistema de fracturas estando em presença, na realidade, de dois tipos de aquíferos diferentes: um aquífero fracturado (a água circula através de fracturas ou de pequenas fissuras) cuja formação geológica é um granito apresentando-se com a profundidade decomposto a alterado e pouco alterado, e um aquífero poroso (a água circula através dos poros) cujas formações presentes são areias, de grão médio a fino, materiais silto-argilosos e ainda compostos de granulometria muito fina que aparentam ser precipitados de origem química (Exmin, 2003).

A caracterização da fonte de contaminação, nomeadamente a concentração do contaminante na fase sólida e na fase líquida na escombreira da BV, quantifica a contaminação disponível para ser mobilizada, através do coeficiente de distribuição dos RDN entre a fase sólida e a fase líquida no solo, (K_d).

- Este é o parâmetro mais crítico do modelo quer pela sua variabilidade quer pela sua dificuldade de determinação pois muito factores podem influenciar o K_d, incluindo a forma química do RDN, o pH do lixiviado, o tipo de constituintes orgânicos, a presença de material orgânico em solução (pode diminuir o K_d e aumentar o transporte) ou na fase sólida (tende a aumentar o K_d e a diminuir o transporte), o débito de infiltração da água e a presença de outras espécies químicas. Os factores que mais afectam o K_d de um RDN, em particular, são a sua solubilidade e a capacidade de ser adsorvido na fase sólida.
- Os coeficientes de adsorção ou de partição (K_d) de iões inorgânicos como o Ra²⁺ não podem ser previstos à *priori* uma vez que dependem do tipo de adsorvente, do pH da água (a solubilidade dos sais de rádio aumenta com o pH) e da presença de outros iões em solução.

Obtivemos dados das análises radiológicas para o urânio e para o rádio das águas subterrâneas e superficiais, relativamente à envolvente mineira da Urgeiriça, com os quais testamos o modelo hidrológico e comparamos os resultados obtidos com os valores medidos experimentalmente, para a validação deste modelo. Da exploração do modelo podemos dizer o seguinte:

- Dos vários casos simulados, o que se apresenta mais próximo da realidade é o caso dos pontos de água localizados a jusante de barragem velha da mina da Urgeiriça. Dada a variabilidade dos dados analíticos, optou-se pelos valores médios referentes a estes resultados bem como os valores da distância média da localização do ponto de exposição. Nestas condições, obtiveram-se valores aproximados aos valores analíticos nos primeiros 30 anos na simulação do modelo, após ocorrer a contaminação da água subterrânea.
- O tempo necessário para um RDN ser transportado pela água subterrânea depende de muitos parâmetros específicos do solo. Em particular, a água que

transporta os RDN varia com pequenas oscilações das propriedades hidráulicas do meio através do qual ocorre o transporte, e mesmo durante a fase de caracterização da fonte de contaminação, estes dados raramente são conhecidos.

- Os resultados da simulação do modelo estão de acordo com a actividade medida nos piezómetros no interior da escombreira que indicam a existência de duas zonas principais de origem da contaminação em radionuclídeos diferentes: a Norte preferencialmente em urânio e a Sul preferencialmente em rádio. Estes são os pontos de água a jusante da escombreira em que se verificaram os valores mais elevados de actividade o que está de acordo com o que foi concluído em Exmin (2003) sobre a direcção dos fluxos hidrodinâmicos: de NW para NE na parte superior e de SW para NE na parte inferior.
- Das várias simulações efectuadas concluímos que os pontos de amostragem a montante da fonte de contaminação devem ser desprezados, ainda que estes apresentem evidências de contaminação, bem como os pontos de amostragem classificados como "isolados"; devemos antes considerar os valores médios, quer da distância, quer dos valores das respectivas concentrações em rádio e em urânio, como ficou demonstrado pelos resultados das diversas hipóteses de simulação consideradas anteriormente.
- Os resultados das simulações efectuadas são totalmente condicionados pelos dados de entrada, nomeadamente pelo K_d, pela distância do ponto de água à fronteira da barragem e a validação do modelo é condicionada também pela própria variabilidade dos resultados analíticos que serviram de base de comparação aos resultados da simulação. Chamamos a atenção para o facto de os dados analíticos terem inerentes a distribuição espacial heterogénea da concentração em urânio e em rádio nos materiais da escombreira ao contrário dos resultados da simulação cujo pressuposto tem implícito uma concentração média e igual em todos os pontos da escombreira.

Relativamente à água superficial, foi feita uma simulação teórica aplicada às várias massas de água consideradas na descrição do modelo matemático: rios, estuários, águas costeiras e lagos, para os seguintes RDN: ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²³⁰Th, ²³⁸U. Destes, o ²³⁰Th pode ser desprezado face aos baixos valores obtidos para a sua concentração no ponto de exposição considerado.

Foi feita ainda uma simulação do efeito da descarga de um efluente na ribeira da Pantanha e no rio Mondego, inseridos na envolvente da zona da Urgeiriça.

Nos resultados obtidos pelo modelo, os valores da concentração em rádio na água superficial vão diminuindo com a distância do ponto de descarga ao ponto de exposição e verifica-se uma descida acentuada logo após alguns metros do ponto de descarga do efluente, a que corresponde o ponto de "viragem" no qual se supõe que a mistura na vertical passa a ser completa. Isto significa que há diluição o que provoca a diminuição brusca da concentração neste ponto, seguindo-se uma diminuição gradual a partir deste até atingir um valor a partir do qual se mantém constante.

Os valores analíticos fornecidos pela ENU em 1998 revelam que, inicialmente e ao longo da ribeira da Pantanha, há uma diminuição da concentração do ²²⁶Ra com a distância ao ponto de descarga, mas depois verifica-se um aumento, voltando outra vez a diminuir, o que contraria a tendência dos resultados obtidos na simulação. Mais ainda, os valores analíticos são sempre superiores aos valores obtidos na simulação do modelo. Os resultados obtidos permitiram concluir que:

- Provavelmente, existem outras contribuições de rádio para a ribeira, além do efluente descarregado pois na simulação apenas se considera a contaminação originada pelo efluente lançado na ribeira. Estas contribuições podem ter origem na drenagem de outras infiltrações ácidas na área envolvente da barragem até este ponto pela fracturação existente, ou então pela existência de solos contaminados pelas mesmas drenagens no leito da ribeira.
- Estima-se que em 1997 e nos anos anteriores, o caudal de efluente lançado na ribeira da Pantanha fosse muito superior ao valor adoptado na simulação, pois segundo a ENU, entre 1950 a 1991, a oficina de tratamento químico tratou anualmente cerca de 125 000 ton de U₃O₈. Prevê-se que seria necessário um caudal anual da ordem de 4700 L para se obter na simulação valores da mesma ordem de grandeza dos valores analíticos apresentados pela ENU referentes a 1997 nos pontos de monitorização considerados.

No ponto de descarga no rio Mondego a contaminação na água superficial tenderá a desaparecer por diluição, o que está de acordo com os resultados analíticos.

A variação da concentração nos sedimentos segue a mesma tendência de concentração na água superficial, isto é, mantém-se constante até ao ponto de "viragem", originado pela mistura vertical completa e pela diluição neste ponto,

diminuindo bruscamente neste ponto e gradualmente a partir deste até atingir a correspondente concentração da linha central da pluma de contaminação, mantendose igual e constante, a partir deste ponto.

Os resultados obtidos analiticamente para os sedimentos apresentam os valores mais elevados, não na vizinhança imediata da área mineira, mas para distâncias entre 1500 a 2000 m desta, o que nos permite concluir que:

- Esta tendência está de acordo com o que se verifica na água superficial o que revela a clara influência desta na subsequente contaminação dos sedimentos. Ressalvamos mais uma vez que a simulação só contempla a contaminação resultante do efluente descarregado. Isto é importante ter em atenção porque o aumento da concentração de rádio nos sedimentos poderá ter também outra origem que não o efluente descarregado, mas estará directamente dependente da concentração de rádio na água superficial: se a simulação for feita com os valores analíticos referentes à concentração de rádio na água superficial, a concentração nos sedimentos é da mesma ordem de grandeza dos valores obtidos analiticamente para os sedimentos, o que vem reforçar a dependência directa da determinação da concentração de rádio na água superficial.
- Concluímos ainda que a análise da concentração pontualmente, referente a cada ponto de exposição, quer para a água superficial, quer para os sedimentos, os valores estimados afastam-se muito dos valores analíticos que constam nos dados de monitorização efectuada pela ENU mas se considerarmos a média dos valores estimados para cada ponto de exposição os valores estimados aproximam-se bastante da média dos valores analíticos obtidos pela EXMIN para este parâmetro.
- Podemos ainda referir que na exploração do modelo identificamos alguns parâmetros muito sensíveis e críticos, nomeadamente o caudal do efluente descarregado, a concentração de rádio no efluente e o facto de não se contemplar outras contribuições para a contaminação da água superficial para além do efluente.

O modelo de transferência para a vegetação é constituído pelos vários processos que traduzem e quantificam matematicamente os mecanismos de transferência, de transporte, de absorção e de translocação dos radionuclídeos na vegetação. O objectivo foi desenvolver um modelo de transferência dos radionuclídeos para a cadeia alimentar através da vegetação.

O modelo conceptual considera que cada um dos processos ou trajectórias de transferência pode ter origem em dois compartimentos: no ar e no solo. No primeiro caso, a transferência envolve a deposição (caracterizada pela velocidade de deposição), a intercepção (descrita pela fracção da actividade que se deposita e é interceptada pela vegetação) e a retenção (traduzida pela constante de semi-vida da meteoração). No segundo caso, o comportamento dos radionuclídeos no solo e a sua posterior remoção reflecte as características físico-químicas do radionuclídeo, as propriedades do solo, o tipo de vegetação, a hidrologia e a geologia do local. Os diferentes processos são combinados numa estimativa global para simular a transferência dos radionuclídeos segundo cada trajectória de contaminação e estimar a concentração total combinando a contaminação interna com a externa.

Da análise dos resultados obtidos na simulação deste modelo podemos resumir e concluir o seguinte:

- A deposição atmosférica é a via de transferência de maior contribuição para a concentração da actividade total na vegetação. O ²²²Rn apresenta valores muito pequenos, o que pode ser explicado pelo seu estado físico (gasoso), sendo um gás inerte não é susceptível de sofrer deposição.
- Para o ²¹⁴Pb a actividade nas plantas é quase inexistente o que pode ser explicado pelo facto do valor da constante de decaimento radioactivo coincidir com o valor constante de remoção da planta e com o valor da constante de remoção do solo. Isto significa que à medida que o ²¹⁴Pb decai para o radionuclídeo seguinte, é removido simultaneamente, pois a constante de remoção do radionuclídeo do solo e da planta dependem directamente da constante de decaimento radioactivo, sendo este o termo dominante no seu cálculo.
- A concentração total na vegetação depende da origem da contaminação: água de irrigação contaminada ou solo contaminado. No primeiro caso, a actividade transferida para a vegetação é bastante inferior à que seria se a fonte de contaminação fosse o solo. Isto deve-se ao facto de no solo contaminado a concentração também ser superior e a absorção ocorrer directamente do resíduo para as raízes.
- Conclui-se que a contribuição do rádio pela água de irrigação para a concentração total na planta é muito inferior à que resulta por deposição o que

pode ser justificado pela baixa solubilidade do rádio e na qual estará presente não na forma dissolvida, mas talvez na forma de partículas suspensas.

- A absorção de rádio consoante o seu teor no resíduo traduz uma função não linear (exponencial negativa), tendendo no entanto, para uma função linear na presença de elevadas concentrações de rádio no resíduo. A função não linear pode ser explicada por uma curva "dose-resposta" que descreve a absorção pela vegetação de elementos essenciais e não essenciais. Quando a concentração de substrato é baixa (deficiente), as plantas absorvem rapidamente os elementos essenciais para o seu crescimento, enquanto que a absorção de elementos não essenciais é geralmente constante para elevadas concentrações do substrato. Por outro lado, nestas condições (elevadas concentrações de substrato), a absorção das plantas de elementos essenciais e não essenciais pode ser constante (efeito não tóxico) ou pode diminuir (efeito tóxico). Da mesma forma e relativamente ao rádio, pensa-se que este radionuclídeo se comporta como um elemento essencial para baixas concentrações do substrato.
- A forma da função dos factores de transferência solo/planta (FT) para elevadas concentrações de substrato depende da resposta da absorção pela planta. Se a absorção pela planta continua a aumentar linearmente com o aumento da concentração no solo, o FT é constante. Por outro lado, se a absorção da planta diminui ou é constante com o aumento da concentração no solo, então o FT diminui. Certos elementos como o Ra e Pb podem actuar para que a resposta de absorção da actividade das plantas seja uma função não-linear, tendendo para um valor de saturação.
- Os radionuclídeos considerados como insolúveis e portanto de maior concentração no resíduo, ²³⁰Th, ²²⁶Ra, ²²²Rn, ²¹⁴Pb, ²¹⁰Pb, encontram-se indisponíveis para sofrerem a translocação das raízes para as partes aéreas bem como indisponíveis para absorção pelas raízes. A concentração destes radionuclídeos nas plantas tem origem na componente da transferência por deposição atmosférica e ressuspensão e não por absorção.
- Para os radionuclídeos solúveis e portanto de menor concentração no resíduo, a sua solubilidade poderá ser um sinónimo de biodisponibilidade para serem absorvidos pelas raízes e translocados para as folhas e neste caso a translocação para as partes aéreas tende a ser superior.

O modelo seguinte completa o anterior com a simulação da transferência dos radionuclídeos na cadeia alimentar através da ingestão da vegetação contaminada pelos animais de pasto. A ingestão constituiu a trajectória de entrada dos radionuclídeos na cadeia alimentar através das transferências sucessivas entre compartimentos: solo, erva de pasto, animais de pasto, subprodutos dos animais de pasto (leite) e homem. O principal processo de transferência é trajectória de exposição denominada por *pasto-vaca-leite*.

Foi desenvolvido um modelo compartimental dinâmico para descrever matematicamente o comportamento dos radionuclídeos na *trajectória pasto-vaca-leite* e estimar a concentração da actividade em cada subcompartimento.

Os processos independentes dos radionuclídeos e os parâmetros relacionados com estes processos podem ser facilmente obtidos através da caracterização local. O principal problema reside nos processos dependentes dos radionuclídeos e nos seus respectivos parâmetros tais como a sorção nos solos, a transferência do solo ou da deposição para a vegetação e a transferência da contaminação da vegetação para os animais de pasto. Face às dificuldades com que nos deparamos para a validação deste modelo pela falta de dados adequados, com base nos resultados obtidos podemos concluir que:

- Os processos de sorção e de fixação no solo influenciam a mobilidade e a disponibilidade dos radionuclídeos no solo e por isso são importantes para estimar a lixiviação do radionuclídeo e a sua absorção pelas plantas. A sorção dos radionuclídeos é descrita pelo coeficiente de distribuição (K_d) e apesar das limitações inerentes, este continua a ser o modelo disponível mais prático e conveniente para quantificar a sorção. Outros modelos têm vindo a ser propostos descrevendo a cinética do processo em mais detalhe, mas o seu uso é limitado devido à falta de dados para a sua parametrização.
- O quociente da concentração do radionuclídeo solo/planta é um dos parâmetros para os quais existem lacunas substanciais de dados e consequentemente intervalos de confiança pouco fiáveis relativamente a estes valores. Algumas destas lacunas poderiam, eventualmente, ser suprimidas pela obtenção de dados locais. Contudo, os dados experimentais seriam sempre e apenas representativos de um conjunto de condições ambientais muito limitadas. Por outro lado, se o objectivo é a utilização do modelo para

simulações a médio ou longo prazo é necessário que o mesmo suporte as variações ambientais previstas.

- O modelo de transferência para os animais poderia ser testado se fossem medidas as concentrações dos elementos nos animais e na sua alimentação.
  O mesmo tipo de dados podia ser usado para estimar os coeficientes alométricos em falta para alguns dos radionuclídeos com interesse em estudar. Um dos parâmetros importantes na transferência dos radionuclídeos dentro do organismo dos animais é a proporção absorvida pelos tecidos e fluidos do organismo expresso pelo factor, f₁. Este factor foi desenvolvido para os modelos biocinéticos com base em dados humanos e de animais para várias formas químicas o que pode não ser necessariamente representativo da espécie química presente nos produtos contaminados.
- Um dos grandes problemas na avaliação da transferência dos radionuclídeos na cadeia alimentar é a falta de trabalhos experimentais que relacionem a contaminação na alimentação com a concentração resultante nos produtos dos animais. Os estudos existentes e descritos na bibliografia baseiam-se em experiências com pequenos animais de laboratório (ratos) e apesar dos resultados serem qualitativamente relevantes para os seres-humanos, a sua extrapolação para outros animais com propriedades digestivas e fisiológicas muito diferentes dos roedores (como é o caso dos ruminantes) não é clara já que o comportamento do radionuclídeo dentro do organismo pode variar com a espécie, com a trajectória de exposição e com a sua forma química. Isto implica que as previsões do modelo biocinético poderão ter inerentes incertezas substanciais.

Foi feita uma simulação do modelo completo para o rádio e para o polónio. O modelo também foi explorado para o tório, urânio, chumbo, mas apenas no modelo simples, devido quer à falta de relevância dos resultados para enveredar pelo modelo complexo quer devido à falta de dados coerentes necessários para a determinação dos parâmetros para a validação do modelo. Com base nos resultados obtidos podemos concluir que:

 Relativamente ao rádio as simulações feitas parecem estar coerentes com alguns resultados descritos na bibliografia relativamente à transferência deste radionuclídeo pela trajectória *pasto-vaca-leite* bem como os resultados obtidos a partir de algumas medições efectuadas durante 8 meses num caso de estudo descrito na bibliografia (IAEA, 2004). É de referir que esta comparação teve por base a exploração do modelo com os valores de alguns parâmetros que constam neste estudo.

- Relativamente ao urânio podemos concluir que o urânio não é significativo do ponto de vista radiológico devido à fraca absorção gastrointestinal (0,2 a 2%) e como a maior parte do urânio é eliminado do organismo rapidamente, não é preocupante a longo prazo, sendo-o antes a curto prazo devido à sua toxicidade.
- No que diz respeito ao ²¹⁰Pb este radionuclídeo é fracamente absorvido no tracto gastrointestinal nos animais ruminantes sendo a quantidade absorvida inferior a 3 %. Pode ser excretado no leite sendo os níveis de ²¹⁰Pb no leite geralmente variáveis mas baixos.
- Relativamente ao ²¹⁰Po, este radionuclídeo apresenta uma elevada radiotoxicidade: devido à sua curta semi-vida de 138 dias, a actividade específica por unidade de massa é muito elevada. Não existem estudos da exposição acidental por ingestão de ²¹⁰Po nos seres-humanos. Também não existem dados qualitativos nem quantitativos relativamente à transferência dos elementos ingeridos na dieta alimentar para os produtos dos animais (leite e carne). Os estudos que existem baseiam-se na introdução directa de ²¹⁰Po nos ruminantes ou na recolha de amostras de produtos de animais de pasto próximos de instalações industriais contaminadas como por exemplo, locais de exploração de urânio ou de fosfatos, sem referência à actividade ingerida.
- Relativamente ao tório existem 26 isótopos de tório em que doze têm semi-vida superior a um segundo e apenas três têm semi-vida suficientemente elevada para constituírem preocupação ambiental. A semi-vida dos isótopos ²³⁰Th e ²³²Th é muito elevada e a sua actividade específica é muito pequena o que significa que estes radioisótopos não são altamente radioactivos.

Para todos os modelos foi feita pelo menos uma exploração. Os parâmetros necessários foram adoptados de diferentes fontes: alguns foram adoptados de medições referentes a um local contaminado em particular, a barragem de rejeitados da mina da Urgeiriça e a sua envolvente mineira; outros foram adoptados de dados publicados na bibliografia referentes a este local. Os parâmetros para os quais não foi possível obter valores de medições locais foram estimados a partir dos dados disponíveis.

### 8.2 Perspectivas futuras

Muitos dos modelos de avaliação da exposição desenvolvidos e validados até hoje referem-se aos radionuclídeos: Cs, Sr e Pu. Existem muitas lacunas no que se refere a modelos aplicáveis a outros radionuclídeos de igual interesse em estudar e com um comportamento diferente no ambiente destes radionuclídeos.

A avaliação da exposição ambiental a contaminações radioactivas terá sempre uma base fundamental nos modelos de exposição especialmente na previsão das consequências ambientais em caso de emergência. Os modelos de avaliação de exposição desenvolvidos até hoje estão ainda longe de terem atingido a "perfeição" quer pela falta de aplicabilidade a muitos radionuclídeos, quer pela falta de dados que se verifica para muitos dos parâmetros, quer pela variabilidade espacial e temporal dos dados disponíveis e dos indisponíveis. Neste sentido e porque fomos sentindo estas dificuldades ao longo deste estudo, existe ainda muito trabalho que pode ser desenvolvido e que consideramos poder vir a ser objecto de investigação futura: existe ainda muito por fazer e a fazer...

- Face à variabilidade espacial e temporal, bem como as elevadas incertezas inerentes aos parâmetros necessários aos modelos e consequentemente as incertezas dos resultados, parece-nos que é necessário complementar os modelos existentes por uma nova abordagem a fim de ultrapassar estas dificuldades. Esta nova abordagem passa por uma avaliação probabilística com o desenvolvimento futuro de modelos nesta área permitindo uma base mais rigorosa para a previsão da incerteza nas estimativas efectuadas. Esta abordagem vai requerer uma enorme quantidade de informação relativamente à distribuição probabilística dos processos que envolvem os parâmetros o que se traduzirá em áreas ou campos de investigação muito promissores.
- A combinação de modelos de transferência complexos e fisicamente realísticos numa base probabilística com sistemas de informação geográfica (SIG) que poderá indicar áreas radiologicamente vulneráveis para a avaliação de possíveis consequências de uma contaminação (acidental ou não).
- Seria interessante efectuar a comparação dos resultados obtidos com os resultados de outros modelos semelhantes bem como comparar os dados usados, tendo em atenção a análise da estrutura do modelo, pressupostos e

base ou fonte de dados usada, para evitar interpretações erróneas acerca de potenciais diferenças nos resultados entre os diferentes modelos.

- Desenvolvimento de modelos de exposição ou adaptação para outro tipo de radiações (radiações não ionizantes) bem como outras fontes de contaminação além das resultantes da exploração e mineração de minérios radioactivos. Nomeadamente, a descarga de produtos radioactivos no ambiente provenientes de hospitais ainda está muito pouco documentada.
- Incluir, na medida do possível, mais processos dinâmicos nos modelos, nomeadamente considerar a dinâmica da libertação para o solo e para água subterrânea para poder prever as alterações nas concentrações dos radionuclídeos ou nas doses em função do espaço e do tempo.

No decorrer deste trabalho tentamos sempre que possível divulgar o estado do progresso do desenvolvimento do mesmo. Precisamente na divulgação da primeira parte deste estudo surgiu o interesse da EXMIN em colaborar com a disponibilização de informação preciosa e essencial para a validação dos modelos.

Curiosamente, na divulgação da última parte deste estudo referente ao capítulo 7, surge o interesse expresso pelo *Central Mining Institute* da Polónia para aplicar os modelos desenvolvidos, em particular, o modelo de transferência na cadeia alimentar. Esta colaboração futura vai permitir validar este modelo para outros radionuclídeos e ajustar ou melhorar o seu desempenho relativamente ao rádio e ao polónio.

Surge ainda o convite para participar num projecto internacional submetido no âmbito do 7.º Programa Quadro da União Europeia (RADSURWATER) no domínio da avaliação de risco de potenciais contaminações radioactivas no sistema de abastecimento de água público. Este projecto terá a duração de 3 anos com a participação de vários países, a saber: Portugal, Polónia, Itália, Alemanha, Hungria, Eslovénia e Sérvia. Prevê-se a aplicação dos modelos desenvolvidos relativos ao modelo de libertação e transporte na água subterrânea e superficial, mas existe um grande potencial para a aplicação de todos os modelos já que o domínio do projecto é a avaliação de risco.

"Havia uma jovem corajosa Que viajava mais depressa do que a luz Um dia ela partiu Pelo caminho destinado E só regressou na noite anterior."

Stephen Hawkings in: "Breve História do Tempo"

- Abbottt, M. L., Rood, A. S. (1993): Comida-A Radionuclide Food Chain Model for Acute Fallout Deposition, EGG-GEO-10367, ITER/US/93/TE/SA-2, Idaho National Engineering Laboratory.
- Absalom, J. P., Young, S. D. et al. (1999): *Predicting Soil to Plant Transfer of Radiocaesium Using Soil Characteristics*, Environmental Science and Technology, 33, pp. 1218-1223.
- Adriano, D. C., Wallace, A. et al. (1980): Uptake of Transuranic Nuclides From Soil by Plants Grown Under Controlled Environmental Conditions, in: Transuranic Elements in the Environment, Vol. TIC 22800, edited by W.C. Hanson, U.S. Department of Energy, pp. 336-360.
- Allen, P. G., Berg, J. M. et al. (1994): Determining Uranium Speciation in Contaminated Soils by Molecular Spectroscopic Methods: examples from the uranium in soil integrated demonstration, Los Alamos National Laboratory.
- ANL, Argonne National Laboratory, EVS (2005a): *Human Health Fact Sheet*, online: <u>www.ead.anl.gov/pub/doc/polonium.pdf</u>.
- ANL, Argonne National Laboratory, EVS (2005b): *Human Health Fact Sheet*, online: <u>www.ead.anl.gov/pub/doc/thorium.pdf</u>.
- Anspaugh, L. R., Shinn, J. H. et al. (1975): *Resuspension and Redistribution of Plutonium in Soils*, Health Physics, Vol. 29, Pergamon Press, pp. 571-582.
- Apps, M. J., Duke, M. J. M. et al. 1988: *A Study of Radionuclides in Vegetation on Abandoned Uranium Tailings*, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 123(1): 133-147.
- ATSDR, Agency for Toxic Substances and Disease Registry (1990): Toxicological Profile for Thorium, U.S. Public Health Service, Toxicological profile information sheet, online: <u>http://www.atsdr.cdc.gov/toxprofiles/tp147.html</u>.
- Avila, R., Facilia, A. B. (2006): Model of Long-Term Transfer of Radionuclides in Forests, Technical report TR-06-08, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co, Sweden.
- Baes, C. F. III (1982): Environmental Transport And Monitoring: Prediction of Radionuclide K_d
  Values from Soil-Plant Concentration Ratios, Transuranic American Nuclear Society, 41: 53-54.
- Baes, C. F. III, Sharp, R. D. et al. (1984): A Review and Analysis of Parameters for Assessing Transport of Environmentally Release Radionuclides Through Agriculture, ORNL-5786, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.
- Baker, D. A., Hoens, G. R. et al. (1976): Food An Interactive Code to Calculate Internal Radiation Doses for Contaminated Food Products, in: Environmental Modelling and Simulation, Proceedings of a Conference held in Cincinnati, Ohio, Washington, pp. 204.
- Barak, P., Spalding, E. (2000): *Mineral Nutrition of Plants, Fitting Michaelis-Menten Parameters to Nutrient*, SoilScience/Botany/Horticulture 626, University of Wisconsin-Madison.

- Barry, S. P. (1992): User's Guide for Cap88-PC, Version 1.0, EPA 402-B-92-001, U.S. Environmental Protection Agency, Office of Radiation Programs.
- BEIR, (1988): Health Risks of Radon and Other Internally Deposited Alpha Emitters, BEIR IV, Commission on the Biological Effects of Ionizing Radiations, Board on Radiation Effects Research, Commission on Life Sciences, National Research Council, Washington, National Academy Press, pp. 176-244.
- Beresford, N. A., Broadley, M. R. et al. (2004): Estimating Radionuclide Transfer to Wild Species - Data Requirements and Availability for Terrestrial Ecosystems, Journal of Radiological Protection (24): A89-A103, online: <u>stacks.iop.org/JRP/24/A89</u>
- Betteencourt, A. O., Teixeira, M. M. et al. (1988): *Soil to Plant Transfer of Radium-226*, Journal of Environmental Radioactivity, 6: 49-60.
- Betteencourt, A. O., Teixeira, M. M., et al. (1990): Environmental Monitoring in Uranium Mining Areas, in: Environmental Behaviour of Radium, Vol. 2, Technical Reports Series, n.º 310, IAEA: Vienna, pp. 281-294.
- Bowie, G. L. Mills W. B. et al. (1985): Rates, Constants, and Kinetics Formulations in Surface Water Quality Modeling, (2nd edn), prepared for the U.S. Environmental Protection Agency by Tetra Tech, Lafayette, CA, and Humboldt State University, Arcata, CA.
- Bowles, E. J. (2002): Soil Volume and Density Relationships in Analysis and Design (5th edn), online: <u>http://www.engs-comp.com/mathserv/bowles2-3.html</u>.
- Braithwaite, A., Livens, F. R. et al. (1997): *Kinetically Controlled Release of Uranium from Soils*, European Journal of Soil and Science, December 1997, 48, 661-673.
- Brechignac, F., Vallejo, R. et al. (1999): Peace Programme for Evaluating the Impact of Accidents for Contaminating the Environment, Soil-Radionuclides Processes of Interaction and Modelling of their Impact on Contamination of Plant Food Products, IPSN-CEC Association Contract n.º F14P – CT96-0039.
- Briggs, G. A. (1969): Plume Rise AEC, Critical Review Series, TID-25075.
- Brown, J., Simmons, J. (1995): FARMLAND A Dynamic Model for the Transfer of Radionuclides through Terrestrial Foodchains, NRPB-R273, Chilton, UK.
- Brown, J., Strand P. et al. (2003): Handbook for Assessment of the Exposure of Biota to Ionizing Radiation from Radionuclides in the Environment, FASSET (Framework for Assessment of Environmental Impact), Deliverable 5 Report under Contract No FIGE-CT-2000-00102, online: <u>http://www.erica-project.org/</u>.
- Carvalho, F. P., Madruga, M. J. et al. (2001): *Contaminação Radioactiva nas Áreas Mineiras Uraníferas*, Relatório DPRSN (Departamento de Protecção Radiológica e Segurança Nuclear), Série B, n.º 15, ITN (Instituto Tecnológico e Nuclear), Lisboa.
- Chamberlain A. C. (1970): Interception and Retention of Radioactive Aerosols by Vegetation, Atmos. Environ., 4, 57-58.

- Clapp, R. B., Hornberger, G. M. (1978): *Empirical Equations for Some Soil Hydraulics Properties*, Water Resource Research, pp. 601-604.
- Colls, J. (1997): *Air Pollution An Introduction*, Londres, U. K., Editora: Spon Press, ISBN-10: 0419206507, ISBN-13: 978-0419206507.
- Connor, J. A., Bowers, R. L. et al. (1998): *Guidance Manual for RBCA TOOL KIT for Chemical Releases*, Groundwater Services, Inc., Houston, Texas.
- Costa, A. R. (2001): As Relações Hídricas das Plantas Vasculares, Departamento de Biologia da Universidade de Évora.
- Costa, J. B. (1999): Caracterização e Constituição do Solo, Editora Gulbenkian, Dinalivro.
- Coughtrey, P. J., Thorne, M. C. et al. (1985): *Radionuclide Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystems*, Vols. 1 to 6, A. A. Balkema, Rotterdam.
- Deniculi, W., Martinez, M. A. et al. (2003): A General Equation for the Hydraulic Design of Subsurface Drains, Revista brasileira engenharia agrícola ambiental, Vol.7, n.º 2, May/Aug., p.197-200, ISSN 1415-4366.
- DOE, United States Department of Energy (1995): Preliminary Remediation Goals for Use at the U.S. Department of Energy Oak Ridge Operations Office, ES/ER/TM-106, Environmental Restoration Division, Oak Ridge, TN.
- DOE, United States Department of Energy (1999): Guidance for Conducting Risk Assessments and Related Risk Activities for the DOE-ORO Environmental Management Program, BJC/OR-271, U.S. Department of Energy, online:

http://risk.lsd.ornl.gov/homepage/rap_docs.htm.

- DOE, United States Department of Energy (2003): *Public Health Assessment, Feed Materials Production Center (U.S. DOE)*, [a.k.a. Fernald Environmental Management Project], prepared by: Federal facilities assessment branch, Energy section, Division of health assessment and consultation, Agency for toxic substances and disease registry, online: http://www.atsdr.cdc.gov/HAC/pha/fer/fer_p1.html#lis_tab.
- Donald K., Raphael, B. A. M. (2001): *Review of Scientific Literature on the Health Effects of Exposure to Depleted Uranium*, Expert Committee to Examine Balkan Veteran Exposure to Depleted Uranium on Behalf of the Minister for Veterans Affairs Commonwealth of Australia.
- Ebbs, S. D. (1997): Identification of Plant Species and Soil Amendments that Improve the *Phytoextraction of Zinc and Uranium from Contaminated Soil*, Faculty of Graduate Studies, Michigan, Cornell University: 174.
- Ebbs, S. D., Norvell, W. A. et al. (1998): The Effect of Acidification and Chelating Agents on the Solubilisation of Uranium from Contaminated Soil, Journal of Environmental Quality, 27: 1486-1494.

- Ensley, B. D., Raskin I. et al. (1997): *Phytoremediation Applications for Removing Heavy Metals Contamination from Soil and Water*, Biotechnology in the Sustainable Environment, 6, pp. 59-64.
- ENU, Empresa Nacional de Urânio (1998): *Boletins de Análises Fornecidos pela ENU*, Urgeiriça, Nelas.
- EPA, U. S. Environmental Protection Agency (1977): Proposed Guidance on Dose Limits for Persons Exposed to Transuranium Elements in the General Environment, EPA 520/4-77-016; NTIS PB 290314.
- EPA, U. S. Environmental Protection Agency (1989): Risk Assessment Guidance for Superfund:
  Vol. 1, Human Health Evaluation Manual (Part A), EPA/540/1-089/002, Office of
  Emergency and Remedial Response, Washington.
- EPA, U. S. Environmental Protection Agency (1995): *Extraction and Beneficiation of Ores and Minerals*, Vol. 5 Uranium, U. S. Environmental Protection Agency, Technical Resource Document: EPA 530-R-94-032, NTIS PN94-2008987, Washington.
- EPA, U. S. Environmental Protection Agency (1996): Documenting Ground-Water Modeling at Sites Contaminated with Radioactive Substances, U. S. Environmental Protection Agency, EPA 540-R-96-003, PB96-963302.
- EPA, U.S. Environmental Protection Agency (1998): Final Environmental Impact Statement for Standards for the Control of Byproduct Materials from Uranium Ore Processing (40 CFR 192), Vol. 1, Report n.º EPA/520/1-83-008-1.
- EPA, U. S. Environmental Protection Agency (1999): Understanding Variation in Partition Coefficients, K_d values, <u>Vol. II - Geochemistry and Available K_d Values for Selected</u> <u>Inorganic Contaminants</u>, EPA 402-R-99-004B.

http://www.epa.gov/radiation/cleanup/partition.htm.

- EPA, U. S. Environmental Protection Agency (2000a): Updated User's Guide for Cap88-PC, version 2,0; EPA 402-R-00-004, U. S. Environmental Protection Agency Office of Radiation And Indoor Air ORIA.
- EPA, U. S. Environmental Protection Agency (2000b): *Radionuclides Notice of Data Availability Technical Support Document*, Office of Ground Water and Drinking Water in Collaboration with USEPA Office of Indoor Air and Radiation United States Geological Survey.
- EPA, U. S. Environmental Protection Agency (2000c): National Risk Management Research Laboratory - Introduction to Phytoremediation, Ohio 45268, EPA/600/R-99/107, Office of Research and Development, Cincinnati.
- EPA, U.S. Environmental Protection Agency (2006): *Understanding Radiation Half-life*, online: <u>http://www.epa.gov/radiation/understand/halflife.htm</u>.

- EXMIN (2003): Estudo Director de Áreas de Minérios Radioactivos 2.ª fase. Companhia de Indústria e Serviços Mineiros e Ambientais, SA.
- Faísca, M. C., Reis, M. et al. (1999): Radon Exhalation from Uranium Tailings Comparison of Experimental and Theoretical Data, II Congresso Ibérico de Geoquímica (XI Semana de Geoquímica), Lisboa, pp. 131 a 135.
- Falcão, J. M., Carvalho, F. P. et al. (2005): *MinUrar, Minas de Urânio e seus Resíduos: Efeitos na Saúde da População*, Relatório científico I, Publ. INSA, INETI, ITN.
- Fisher, H. G., List, E. J. et al. (1979): *Mixing in Inland and Coastal Waters*, Academic Press, San Francisco.
- Fiúza, A. M. A. (1995): *Radiações e Impacte Radiológico*, Apontamentos do Curso de Mestrado em Engenharia do Ambiente Ramo: Geoambiente, FEUP, Porto.
- Fiúza, A. M. A. (2003): Metais Pesados: Electrocinética e Fito-Reabilitação, Capítulo XIV, Faculdade de Engenharia da Universidade do Porto, Apontamentos do Curso de Mestrado em Engenharia do Ambiente - Ramo: Geoambiente, FEUP, Porto.
- Friedlander, G., Kennedy, W. J. at al. (1981): *Nuclear and Radiochemistry*, 3.^a edição, Publisher John Wiley & Sons, ISBN 0-471-09961-9, New York.
- Frissel, M. J., Bergeijck V. K. E. (Eds.) (1989): VIth Report of the IUR Working Group Soil-to-Plant Transfer Factors, Report of the working group meeting in Guttannen, Switzerland, Bilthoven, RIVM: 240.
- Garland, J. A., Pattenden, N. J. et al. (1982): *Resuspension Following Chernobyl*, in: Modelling of resuspension, seasonality and loses during food processing, First report of the VAMP Terrestrial Working Group, IAEA-TECDOC-647, IAEA, Vienna.
- Gifford, F. A. (1976): *Turbulent Diffusion-Typing Schemes*: A Review, Nuclear Safety 17(1), pp. 68 a 86.
- Green, N., Dodd, N. J. (1988): The Uptake of Radionuclides from Inadvertent Consumption of Soil by Grazing Animals, Sci. Total Environ., 69: 367-377.
- Harley, N. H., Foulkes, E. C. et al. (2000): A Review of the Scientific Literature as it Pertains to Gulf War Illnesses, Vol. 7, Depleted Uranium, National Defense Research Institute, online: <u>http://www.gulflink.osd.mil/library/randrep/du/mr1018.7.appf.html#tf.6</u>.
- Harley, N. H. (2003): *Pregnancy and Radiation Radioactivity in Food and Water*, Health Physics Society, online: <u>http://www.hps.org/publicinformation/ate/q3238.html</u>.
- Hass G., Schupfner R., Muller A. (1995): Transfer of Natural and Man Made Radionuclides from Plants to Roe Deer and Farm Animals. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Articles, Vol. (194): 2, pp. 269-276.
- Healy, J. W. (1980): *Review of Resuspension Models*, U.S. Department of Energy, Washington D.C., in Hanson, W.C., ed., Transuranic elements in the environment, pp. 209-235.

- Heling, R., Raskob, W. et al. (1999): Overview of Hydrological Dispersion Module HDM of RODOS, RODOS Report – WG4 – TN (99)18, Decision Support for Nuclear Emergencies.
- Hermann, R. (1984): Einfuhrung in die Hydrologie, Teubner, Stuttgart, Germany.
- Higley K. A., Domotor S. L. et al. (2003): A Kinetic-Allometric Approach to Predicting Tissue Radionuclide Concentration for Biota, Journal of Environmental Radioactivity, Vol. (66): 1, pp. 61-74(14).
- Hinton, T. G., (1992): Contamination of Plants by Resuspension: a Review, with critique of measurement methods, Sci. Total Environ., 121: 177-193.
- Hirschfelder, J. O., Curtis, et al. (1954): *Molecular Theory of Gases and Liquids*, New Work, Wiley.
- Hoffman, F. O., Bergstrom, U. et al. (1984): Comparison of Predictions from Internationally Recognized Assessment Models for the Transfer of Selected Radionuclides through Terrestrial Food Chains, Nuclear Safety 25: 533-546.
- Huang, J. W., Blaylock, M. J. et al. (1998): *Phytoremediation of uranium contaminated soils: Role of organic acids in triggering hyperaccumulation in plants*, Environ. Sci. Technol., 32: 2004-2008.
- Hung, C. Y. (1980): An Optimum Model to Predict Radionuclide Transport in an Aquifer for the Application to Health Effects Evaluations, Proceedings of Inter Agency Workshop on Modelling and Low Level Waste Management, Denver, Colorado.
- Hung, C. Y. (1996): User's Guide for Presto-EPA-CGP Operation System, version 2,1; U.S. Environmental Protection Agency, Office of Radiation and Air, Washington.
- Hung, C. Y. (2000): User's Guide for Presto-EPA-CGP/POP Operation System, version 4,2; EPA 402-R-00-007, U.S. Environmental Protection Agency, Office of Radiation and Indoor Air, Washington.
- IAEA, International Atomic Energy Agency (1992): *Current Practices for the Management and Confinement of Uranium Mill Tailings*, Technical Reports Series n.º 335, IAEA: Vienna, Austria.
- IAEA, International Atomic Energy Agency (1994): Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments, Technical Report Series N°364, IAEA: Vienna, Austria.
- IAEA, International Atomic Energy Agency (2001): Generic Models for Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances to the Environment, Safety Reports Series N.º 19, IAEA: Vienna, Austria.
- IAEA, International Atomic Energy Agency (2002): Biomass 1, Modeling the Migration and Accumulation of Radionuclides in Forest Ecosystems, Report of the Forest Working Group of the Biosphere Modeling and Assessment (Biomass) Programme, Theme 3.

- IAEA, International Atomic Energy Agency (2003a): Biomass 2, Testing of Environmental Transfer Models Using Data from the Atmospheric Release of Iodine–131 from the Hanford Site, USA, in 1963, Report of the Dose Reconstruction Working Group of the Biosphere Modeling and Assessment (Biomass) Programme, Theme 2.
- IAEA, International Atomic Energy Agency (2003b): *Depleted uranium and the IAEA*, online: <u>http://www.iaea.org/NewsCenter/Features/DU/du_qaa.shtml</u>.
- IAEA, International Atomic Energy Agency (2004): Biomass 7, Testing of Environmental Transfer Models Using Data from the Remediation of a Radium Extraction Site, Report of the Remediation Assessment Working Group of Biomass, Theme 2.
- Ibrahim, S. A., Whicker, F.W. (1988): Comparative Uptake of U and Th by Native Plants at a U Production Site, Health Physics, 54(4): 413-419.
- Ibrahim, S. A., Whicker, F.W. (1992): Comparative Plant Uptake and Environmental Behavior of U-Series Radionuclides at a Uranium Mine-Mill, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 156(2): 253-267.
- ICRP, International Commission on Radiological Protection (1993): Age-Dependent Doses to Member of the Public from Intake of Radionuclides, Part 2: Ingestion Dose Coefficients, ICRP Publication 67, Oxford: Pergamon Press, Ann. ICRP 23(3/4).
- ICRP, International Commission on Radiological Protection (2006): *Documents and Drafts Consultation*, online:

www.icrp.org/downloadDoc.asp?document=docs/Informal_web_consultation/27-Uranium(16Jan).doc.

- IGeoE: Instituto Geográfico do Exército, http://www.igeoe.pt.
- IRSN, Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (2006): Impact of Polonium-210 on Human Health, 1006, Press Release and Information report list – IRSN, 28 November 2006, Online: <u>http://www.irsn.org/en/index.php?module=presse</u>.
- ITE, Institute for Transuranium Elements of Joint Research Centre (2006): Polonium-210 Factfile, online:

http://itu.jrc.ec.europa.eu/fileadmin/Images/News_Events/Polonium210.pdf.

- IUR, International Union of Radioecology (1989): VIth Report of the IUR Working Group Soil-to-Plant Transfer Factors: Report of the working group meeting in Guttannen, Switzerland, Bilthoven, RIVM: 240.
- IUR, International Union of Radioecology (1992): VIIIth Report of the Working Group Soil-to-Plant Transfer Factors, Report of the Working Group Meeting in Madrid, Spain, June 1-3, 1992, IUR Pub R-9212-02, IUR Technical Secretariat, Balen, Belgium.
- Kalin, M., Sharma, H. (1982): Radium-226 and Lead-210 Uptake in Typha latifolia from Inactive Uranium Mill Tailings in Canada, Proceedings of a Symposium Environmental Migration of Long-Lived Radionuclides, IAEA-SM-257/10, pp. 247-262.

- Kannan V., Iyengar M. A. R et al. (2001): Dose Estimates to the Public from ²¹⁰Po Ingestion Via Dietary Sources at Kalpakkam (India), Applied Radiation and Isotopes 54, pp. 663-674.
- Kempser, P. L. (2000): Radioactivity Monitoring Programme Appendix 7 Evaluation of dose from Drinking Water Pathway as Opposed to Other Possible Pathways of Exposure, pp A7-7, A7-12 e A7-13, online:

http://www.dwaf.gov.za/IWQS/radioact/mooi/appendix_7.htm.

- Kinnersley R. P., Scott L. K. (2001): Aerial Contamination of Fruit through Wet Deposition and Particulate Dry Deposition, Journal of Environmental Radioactivity 52(2-3), 191-213.
- Kirchman, R., Bell, J. N. B. et al. (1993): Scope 50-Radioecology After Chernobyl, Terrestrial Pathways, Editado por Sir Frederic Warner, and Roy M. Harrison, online: <u>http://www.icsu-scope.org/downloadpubs/scope50/chapter04.html</u>, Consulta de 19 Novembro 2003.
- Kopp, P., Oestling, O. et al. (2006): Availability and Uptake by Plants of Radionuclides Under Different Environmental Conditions, Toxicology and Environmental Chemistry, 23, 53-63.
- Kowetha A. D. (2004): *Toxicity Summary for Lead (Inorganic)*, Chemical Hazard Evaluation Group, Biomedical and Environmental Information Analysis Group, Oak Ridge National Laboratory, Tennessee.
- La Grega, M. D., Buckingham P. L. et al. (1994): *Hazardous Waste Management*, McGraw Hill, New York.
- Lakshmanan, A. R., Venkateswarlu, V. S. (1988): *Uptake of Uranium by Vegetables and Rice*, Water, Air and Soil Pollution, 38: 151-155.
- Legget, R. W., Pellmar, T. C. (2003): *The Biokinetics of Uranium Migrating from Embedded DU Fragments*, Journal of Environmental Radioactivity, 64, 205-225.
- Leggett, R. W & Eckerman, K. F. (2003): *Dosimetric Significance of the ICRP's Updated Guidance an Models*, 1989-2003, and Implications for U. S. Guidance, Oak Ridge National Laboratory.
- Leggett, R. W. (1993): *An Age-specific Kinetic Model of Lead Metabolism in Humans*, Health Sciences Research Division, Oak Ridge National Laboratory, Environmental Health Perspectives, Vol. 101, number 7.
- Leggett, R. W., Eckerman, K. F. (1994): *Evolution of the ICRP's Biokinetic Models*, Dosimetry Research Group, Oak Ridge National Laboratory, Radiation Protection Dosimetry, Nuclear Technology Publishing, Vol. (53): 1-4, pp. 147-155.
- Leggett, R. W., Eckerman, K. F. (2001): A Systemic Biokinetic Model for Polonium, The Science of the Total Environment 275, pp. 109-125.
- Leigh, C. D., Thompson, B. M. et al. (1993): User's Guide for GENII-S A Code for Statistical and Deterministic Simulations of Radiation Doses to Humans from Radionuclides in the

*Environment*, Appendix C, Mathematical Models Used by GenII-S, SAND91-0561, Sandia National Laboratories, Albuquerque, New Mexico, online:

http://www.ocrwm.doe.gov/documents/m2hu_a/appendix_c.htm.

- Leopold, L. B., Wolman et al. (1964): *Fluvial Processes in Geomorphology*, W. H. Froeman, San Francisco, CA, 1964.
- Lester, D. H., Jansen, G. et al. (1975): *Migration of Radionuclides through an Adsorbing Medium*, AICHE Symposium, Series 71:202.
- Lombi, E., Dunham, S. J. et al. (2002): *Feasibility of Phytoextraction with Hyperaccumulator Plants at the Pot and Field Scale*, NATO ASI: Phytoremediation of Metal-Contaminated Soils, held in Trest, Czech Republic, August 18-30.
- Lombi, E., Zhao, F. J. (2002): Physiology of Metal Hyperaccumulation in Plants, NATO ASI: Phytoremediation of Metal-Contaminated Soils, held in Trest, Czech Republic, August 18-30.
- Luo, Y. M., Cao, Z. H., et al. (2000): International Conference of Soil Remediation, Proceedings of SoilRem, Hangzhou, China, October 15 19.
- Lyman, W. J. (1990): Handbook of Chemical Property Estimation Methods: Environmental Behaviour of Organic Compounds, American Chemical Society, Washington, pp. 6 a 17.
- Madruga, M. J., Brogueira, A. et al. (2001): ²²⁶*Ra Bioavailability to Plants at the Urgeiriça Uranium Mill Tailings Site*, Journal of Environmental Radioactivity, 54, pp. 175-188.
- Makhon'ko K. P., Koslova E. G. (1996): *Dynamics of Radioiodine Accumulation on Soil and Reconstruction of Doses from Iodine Exposure on the Territory Contaminated after the Chernobyl Accident*, Radiation and Risk, 7: 140-191.
- Martinez-Agguire, A., Periánez, R. (1998): Soil to Plant Transfer of ²²⁶Ra in a Marsh Area: Modelling Application, Journal of Environmental Radioactivity, 39(2), 199-213.
- McKone, T. E. (1994): Uncertainty and Variability in Human Exposures to Soil Contaminants through Home-Grown Food: a Monte Carlo Assessment, Risk Anal. 14(4): 449-463.
- Mench, M., Vangrosveld J., et al. (2002): *Phytostabilisation of Metal-Contaminated Sites*, NATO ASI: Phytoremediation of Metal-Contaminated Soils, Trest, Czech Republic, August 18-30.
- Miller, C. W. (1980): An analysis of measured values for the fraction of a radioactive aerosol intercepted by vegetation, Health Phys. 38: 705-712.
- Miller, G. T. (1998): *Living in the Environment*, 10th Edition, Wadsworth Publishers, Belmont, California.
- Moore, R. E., Baes, C. F. III et al. (1979): Airdos-EPA A Computerized Methodology for Estimating Concentrations and Doses from Airborne Releases of Radionuclides. ORNL-

5532, EPA 520/1-79-009, U.S. EPA Office of Radiation Programs, Tennessee, Washington.

- Morel, J. L. (2002a): *The Aims of the Remediation on the Metal-Polluted Soils*, NATO ASI: Phytoremediation of Metal-Contaminated Soils, Trest, Czech Republic, August 18-30, 2002.
- Morel, J. L. (2002b): *The Role of Root Exudates in the Mobility and Transfer of Trace Elements in the Rhizosfere*, NATO ASI: Phytoremediation of Metal-Contaminated Soils, Trest, Czech Republic, August 18-30, 2002.
- Mortvedt, J. J. (1994): *Plant and Soil Relationship of Uranium and Thorium Decay Series Radionuclides - A Review*, Journal of Environmental Quality, 23: 643-650.
- Muller, H., Prohl, G. (1993): Ecosys-87 A dynamic Model for Assessing Radiological Consequences of Nuclear Accidents, Health Physics, 64 (3), 232-252.
- Nagy, K. A. (2001): Food Requirements of Wild Animals: Predictive Equations for Free-Living Mammals, Reptiles and Birds, Nutrition abstracts and reviews, series B 71:21-31.
- Napier, B. A., Peloquin, R. A et al. (1988): GENII The Hanford Environmental Radiation Dosimetry Software System, Vol. 1-3, Report N.º PNL-6584n Richland, WA: Battelle Pacific Northwest Laboratories.
- Naulleau, S. V. (2003): *Transfer in Animals*, Radiological and Chemical Toxicology, Periódico publicado pelo Comissariado de Energia Atómica (CEA), França, N.º 48 Summer 2003, pp. 11, 12.
- NCI, National Cancer Institute/National Institutes of Health (2003): *Transfer of* ¹³¹*I from Deposition on the Ground to Fresh Cow's Milk*, online:

http://rex.nci.nih.gov/massmedia/Fallout/chapter4.pdf.

- NCRP, National Council on Radiation Protection and Measurements (1984): Radiological Assessment: Predicting the Transport, Bioaccumulation, and Uptake by Man of Radionuclides Released to the Environment, NCRP Rep. N.º 76, Bethesda, MD.
- NCRP, National Council on Radiation Protection and Measurements (1989): Screening Techniques for Determining Compliance with Environmental Standards: Releases of Radionuclides to the Atmosphere, NCRP Commentary N.º 3, Bethesda, MD.
- Netten, V. C., Morley, D. R. (1982): *Differential Uptake of U, Mo and Cu by Roots, Stalks and Seeds of Oats Grown on Uranium-Rich Soils*, Int. J. Environ., Studies, 19: 259-262.
- Neufell, P. D., Janzen, A. R. et al., (1972): *Empirical Equations to Calculate 16 of the Transport Collision Integrals* Ω^(l, s)* for the Lennard-Jones (12-6) Potential, Journal of Journal of Chemical Physics, 57, 1100.
- Ng, Y. C., Colsher, C. S. (1982): Soil-to-Plant Concentration Factors for Radiological Assessments, NUREG/CR-2975, Environmental Sciences Division, Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, CA.
- Nicholson, K. W. (1988): A Review of Particle Resuspension, Atmospheric Environ., 22(12): 2639-2651.
- Novák, V., Vidovic, J. (2002): The Relation Between Transpiration and Nutrient Uptake Dynamics in Plant Canopies Applicable to Modelling of Soil Chemical Balance, Demanovská Dolina, Slovakia, ERB and Northern European FRIEND Project 5 Conference, Online: <u>http://www.ih.savba.sk/erb2002/abstrakty.htm</u>.
- NRC, National Research Council (1977): Regulatory Guide 1.109 Calculation of Annual Doses to Man From Routine Releases of Reactor Effluents for the Purpose of Evaluating Compliance with 10 CFR, Part 50, Appendix I, Washington.
- NRC, National Research Council, (1980): *Subcommittee on Mineral Toxicity in Animals*, Mineral tolerance of domestic animals, Washington DC, USA: National Academy of Sciences.
- NUREG, U.S. Nuclear Regulatory Commission (1984): Radon Attenuation for Uranium Mill Tailings Cover Design, NUREG/CR-3533.
- NUREG, U.S. Nuclear Regulatory Commission (1990): *Residual Radioactive Decontamination from Decommissioning*, NUREG/CR-5512.
- Nye, P. H., Tinker, P. B. (1977): *Solute Movement in the Soil-Root System*, Oxford, England Blackwell Scientific Publications, 342 p.
- O'Conner, D. J., Lawer, J. P. (1965): *Mathematical Analysis of Estuarine Pollution*, 55th Natl Mtg. Reprint N.º 31a, American Institute of Chemical Engineers, Houston, TX.
- Oppo (2007): Coefficienti di Scabrezza delle Tubazioni, Tabella sintética, online: <u>http://www.oppo.it/calcoli/coef_scabrezza_tubi.htm</u>.
- Paridaens, J. (2005): Radiological Health Risk Evaluation of Radium Contaminated Land: A Real Life Implementation, Radiation Protection Dosimetry, Vol. (113): 2, pp. 195-203.
- Parker, D. (2002): Phytoextraction and Phytovolatilização of Selenium, NATO ASI: Phytoremediation of Metal-Contaminated Soils, held in Trest, Czech Republic, August 18-30, 2002.
- Pasquill, F. (1961): *The Estimation of Dispersion of Windborne Material*, Meteorology Magazine 90, pp. 33.
- Pereira, A. J. S. C. et al. (2004a): Modelling of the Long Term Efficiency of a Rehabilitation Plan for a Uranium Mill Tailing Deposit (Urgeiriça – Central Portugal), XI International Congress of the International Radiation Protection Association.
- Pereira, A. J. S. C et al. (2004b): Evaluation of the Radiological Hazards from Uranium Mining and Milling Wastes (Urgeiriça – Central Portugal), XI International Congress of the International Radiation Protection Association.
- Peterson, H. T. (1983): Terrestrial and Aquatic Food Chain Pathways, in J. E. Till, and H. R. Meyer, eds., Radiological Assessment: a textbook on environmental dose analysis. U.S. Nuclear Regulatory Commission, Washington, pp. 5-1 to 5-156.

- Pietrzak-Flis, Z, Rosiak, L. (2001): *Daily Intakes of* ²³⁸U, ²³⁴U, ²³²Th, ²³⁰Th, ²²⁸Th and ²²⁶Ra in the Adult Population of Central Poland, The Science of the Total Environment 273, pp. 163 169.
- Pinder, III J., Adriano D. et al. (1987): The *interception and Retention of Pu-238, Deposition by Orange Trees,* Health Physics, 52, 707-715.
- Pinder, J. E., McLeod, K. W. (1988): Contaminant Transport in Agroecosystems Through Retention of Soil Particles on Plant Surfaces, J. Environ. Qual., 17: 602-607.
- Pinder, J. E., McLeod, K. W. (1989): *Mass Loading of Soil Particles on Plant Surfaces*, Health Phys. 57: 935-942.
- Portela, L. I., (1997): Comportamento de Sedimentos Contaminados em Meio Estuarino, Monografia para Prova Complementar de Doutoramento em Engenharia do Ambiente, Instituto Superior Técnico da Universidade Técnica de Lisboa.
- Reeves, R. D. (2002): Hyperaccumulation of Trace Elements by Plants Species, Phytostabilisation of Metal-Contaminated Sites, NATO ASI, Phytoremediation of Metal-Contaminated Soils, held in Trest, Czech Republic, August 18-30.
- Reis, M., Faísca, C. et al. (2000): Avaliação da Exalação de ²²²Rn para a Atmosfera em Barragens de Estéreis das Minas da Urgeiriça, Relatório Série A, n.º 2, Departamento de Protecção Radiológica e Segurança Nuclear, Instituto Tecnológico e Nuclear, Lisboa.
- Rocha, J. S. (1998): *Reflexões sobre a Rregularização Fluvial do Rio Mondego*, Intervenção do LNEC, Revista Sociedade e Território, Nº 27, Junho, online:

http://www.dha.lnec.pt/nre/portugues/funcionarios/papers/jrocha/Coimbra.pdf.

- Rocha, S. (2003): À Descoberta da Vida, Um Site Destinado a Estudantes e Curiosos da Biologia, Consulta no dia 25 Outubro de 2003, Online: <u>http://curlygirl.no.sapo.pt/</u>.
- Rogers, V. C., Overmyer, R. F. et al. (1980): Characterization of Uranium Tailings Cover Materials for Radon Flux Reduction, U.S. Nuclear Regulatory Commission, NUREG/CR-1081.
- Salmon, P. L., Bondarenko, O. A. Et al. (1999): Dose210, A Semi-Empirical Model for Prediction of Organ Distribution and Radiation Doses from Long-Term Exposure to ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po, Radiation Protection Dosimetry, Vol. 82, No. 3, pp. 175-192, nuclear Technology Publishing.
- Sam, A., Erickson, A. (1995): *Radium-226 Uptake by Vegetation Grown in Western Sudan*, Journal of Environmental Radioactivity, 29(1): 27-38.
- Sancho, F. (2004): Textos de Apoio de Hidráulica Fluvial e Marítima, Hidráulica dos Escoamentos em Canais de Leito Fixo, Disciplina de Processos Fluviais e Costeiros, Mestrado em Hidráulica (2002-2004), Recursos Hídricos e Ambiente, Universidade de Coimbra.

- Sayre, N. W. (1973): *Natural Mixing Processes in Rivers*, Environmental Impact on Rivers (River Mechanics II), H. W. Shen, Fort Collings, CO.
- Schmidt P. (2004): The Wismut Project Large Scale Remediation at Sites of Former Uranium Mining and Milling in East Germany – New Horizons through Rehabilitation, online: <u>http://www.ch70.chel.su/downloads/miass/reports_pdf/eng/schmidt.pdf</u>.
- Seligman H. (1955): *The Discharge of Radioactive Products into the Irish Sea*, Part 1, First experiments for the study of movement and dilution of released dye in the sea, Proceedings of the International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, Vol. 9, United Nations, New York, pp. 701-711.
- Sheppard, M. I., Sheppard, S. C., et al. (1984): *Uptake by Plants and Migration of Uranium and Chromium in Field Lysimeters*, Journal of Environmental Quality, 13(3): 357-361.
- Sheppard, M. I., Sheppard, S. C. (1985): *The Plant Concentration Ratio Concept as Applied to Natural U*, Health Physics, 48 (4): 494-500.
- Sheppard, M. I., Thibault, D. H., et al. (1985): Concentrations and Concentration Ratios of U As and Co in Scots Pine Grown in Waste Site Soil and an Experimental Contaminated Soil; Water, Air and Soil Pollution 26: 85-94.
- Sheppard, S. C., Evenden, W. G. et al. (1989): *Uptake of Natural Radionuclides by Field and Garden Crops*, Can. J. Soil Sci., 69: 751-767.
- Sheppard, M. I., Thibault, D. H. (1990): Default Soil Solid/Liquid Partition Coefficients, K_{ds}, for Four Major Soil Types: A Compendium, Health Physics, 59: 471-482.
- Simon, S., Ibrahim, S., (1990): Biological Uptake of Radium by Terrestrial Plants, in: Environmental Behaviour of Radium, Vol. 1, Technical Reports Series Nº 310, Vienna: IAEA, pp. 545-599.
- Staven, L. H., Napier, B. A. et al. (2003): A Compendium of Transfer Factors for Agricultural and Animal Products, Pacific Northwest National Laboratory, Prepared for the U. S. Department of Energy, under Contract DR-AC06-76-RL01830.
- Sweeck, L., Zeevaert, Th., et al. (1998): Geologische Berging van Geconditioneerd Langlevend Hoogradioactief Afval: Lange Termijn Performantiestudies. Biosfeerparameters in peformantie and veiligheidsanalyses Deel III, R-3194, SCK•CEN, Belgium.
- Taylor, P. A. (1999): An Introduction to Boundary Layer and Mesoscale Metereological for Complex Terrain, Apontamentos teóricos de curso especializado: "An Introduction to Boundary Layer and Mesoscale Metereological for Complex Terrain", 12 a 13 de Abril, Universidade de Coimbra.
- Teale, P., Brown, J. (2003): Modelling Approach for the Transfer of Actinides to Fruit Species of Importance in the UK, NPRB-W46.
- Thibault, D. H., Sheppard, M. I. et al. (1990): A Critical Compilation and Review of Default Soil Solid/Liquid Partition Coefficients, K_d for Use in Environmental Assessments, Atomic

Energy Canada, AECL – 10125, Whiteshell Nuclear Research Establishment, Manitoba, Canada.

- Thiry, Y., Schmidt, P. (2004): Uranium Distribution and Cycling in Scops Pine (Pinus sylvestris L.) on a Revegetated U-Mining Heap, Submitted to Journal of Environmental Radioactivity, online: <u>http://www.eom.slu.se/icobte/additional/SYMP6oThiry.doc</u>.
- Trapp, S., Matthies, M. (1997): *Chemodynamics and Environmental Modelling, An Introduction*, ISBN 3-540-63096-1, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York.
- Turner, D. B. (1969): *Workbook of Atmospheric Dispersion Estimates*, Air Pollution Control Administration, Cincinati, Ohio.
- Turner, D. B. (1994): *Workbook of Atmospheric Dispersion Estimates*, An Introduction to Dispersion Modeling, 2nd edition, Boca Raton, Lewis Publishers, pp. 2-8 a 2-12.
- Tuszynski, J. A., Dixon, J. M. (2001): *Biomedical Applications for Introductory Physics*, Publisher: Wiley; I.S. ed edition, ISBN: 0471412953.
- USNRC, United Sates Nuclear Regulatory Commission (1977): *Estimating Aquatic Dispersion in Effluents from Accidental and Routine Releases for the Purpose of Implementing,* Appendix I, ISNRC Guide I.113, Revision I, Office of Standards Development, USNRC, Washington, DC.
- USNRC, United Sates Nuclear Regulatory Commission (1978): Liquid Pathway Generic Study, Impacts of Accidental Radionuclide Releases to the Hydrosphere from Floating and Land-based nuclear Power Plants, Rep. NUREG-0440, USNRC, Washington, DC.
- Vandehove, H., (2002): *Phytomanagement of Sites Contaminated with Radionuclides, NATO ASI: Phytoremediation of Metal-Contaminated Soils*, held in Trest, Czech Republic.
- Varennes, A. (2003): *Produtividade dos Solos e Ambiente*, 1.ª Edição, Departamento de Química Agrícola e Ambiental, Instituto Superior de Agronomia, Lisboa, Escolar Editora, ISBN 972-592-156-9.
- Vasconcelos, L. M., Amaral, E. C., et al. (1987): Uptake of ²²⁶Ra And ²¹⁰Pb by Crops Cultivated in a Region of High Natural Radioactivity in Brazil, Journal of Environmental Radioactivity, 5: 287-302.
- Vasudev, D., Ledder T. et al. (1996): Removal of Radionuclide Contamination from Water by Metal-Accumulating Terrestrial Plants, Prepared for presentation at Spring National Meeting, 1996, New Orleans, LA: In situ soil and sediment remediation, Unpublished.
- Vicente, A. M. P. (2005): Potencial de Exalação do Radão em Escombreiras de Antigas Explorações De Urânio. Dissertação apresentada para a obtenção do grau de mestre em Geociências, departamento de Ciências da Terra, Faculdade de Ciências e Tecnologia, Universidade de Coimbra.

- Watkins, B. M. (1990): Interception, Retention Absorption and Translocation of Radionuclides by Vegetation Following Application in Irrigation Waters, NSS R221, UK Nirex Ltd, Harwell.
- Watson, A. P. (1983): Polonium-210 and Lead-210 in Food and Tobacco Products: A Review of Parameters and an Estimate of Potential Exposure and Dose, Oak Ridge National Laboratory, ORNL/TM-8831.
- Whelan, G., Strenge, D. L., et al. (1987): The Remedial Action Priority System (RAPS): Mathematical Formulations, DOE/RL/87-09, Pacific Northwest Laboratory, Richland, WA.
- Whicker, F. W., Ibrahim, S.A. (1984): *Radioecological Investigations of Uranium Mill Tailings Systems*, Fort Collins, Colorado State University: 48.
- White, P. D., Leeuwen, P. V., et al. (1998): The Conceptual Structure of the Integrated Exposure Uptake Biokinetic Model for Lead in Children, Environmental Health Perspectives, Vol. 106, Supplement 6.
- WHO, World Health Organization (2003): Depleted Uranium Fact Sheet N.º 257, Online: <u>http://www.who.int/mediacentre/factsheets/fs257/en/</u>.
- Wilke, C. R., Lee, C. Y. (1955): Estimation of Diffusion Coefficients for Gases and Vapors, Industrial & Engineering Chemistry, 47, 1253-1257.
- Wilkins, B. T., Paul M., and Nisbet A. F. (1996): Speciation and Foodchain Availability of Plutonium Accidentally Released from Nuclear Weapons, NRPB-R281, Chilton, U. K.
- Wilson, D. (1995): *Personal communication*, McCracken County Extension Center, online: <u>http://risk.lsd.ornl.gov/homepage/bjcor271/appf.shtml</u>.
- WISE, World Information Service on Energy (2004): Uranium Radiation Properties, online: <u>http://www.wise-uranium.org/ruxfr.html</u>.
- Yu, C., Loureiro, C., et al. (1993): Data Collection Handbook to Support Modeling Impacts of Radioactive Material in Soil, Environmental Assessment and Information Sciences Division, Argonne National Laboratory. Illinois.
- Yu, C., Zielen, A. J. et al. (2001): *User's Manual for RESRAD*, version 6, Environmental Assessment Division, Argonne National Laboratory, Illinois.

# ANEXOS

## ANEXO A

## Medições efectuadas no local em estudo

(Dados gentilmente cedidos pela EXMIN)



### A1. Concentração de radão obtida pelos detectores LR115 na barragem velha da Urgeiriça

x (m)	y (m)	Radão (Bq/m ³ )
20477	93069	185
20343	93178	930
20662	93687	50
20704	93571	325
20642	93635	620
20608	93534	255
20604	93356	230
20562	93575	190
20550	93420	840
20512	93510	230
20559	93293	365
20523	93351	610
20481	93348	230
20495	93274	195
20470	93313	1205
20440	93305	825
20440	93226	415

A2. Concentração de radão obtida pelos detectores LR115 na envolvente da barragem velha da Urgeiriça



x (m)	y (m)	Radão (Bq/m ³ )
20477	93069	185
20343	93178	930
20337	93336	100
20445	93455	175
20523	93607	110
20662	93687	50
20700	94032	40
20759	93271	40
21019	93639	55
21087	93477	115
21114	93355	355
21144	93229	160
21046	93141	100
20979	93438	110
21061	93332	135
21017	93265	55
20940	93340	95
20818	93553	205
20704	93571	325
20690	93355	285
20763	93414	165
19798	94226	25
20288	93986	675
20388	93511	315
20700	93244	245
20642	93635	620
20608	93534	255
20512	93510	230
20562	93575	190
20550	93420	840
20604	93356	230
20559	93293	365
20523	93351	610
20481	93348	230
20495	93274	195
20470	93313	1205
20440	93305	825
20440	93226	415

A3. Exalação de radão na barragem velha da Urgeiriça (Inverno)



1	-	
x (m)	y (m)	Fluxo Inverno (Bq.m ⁻² .s ⁻¹ )
20563	93121	1,33
20577	93196	4,47
20473	93200	5,58
20437	93258	3,37
20524	93453	0,03
20517	93510	0,13
20610	93535	0,73
20631	93616	2,26
20589	93393	0,66
20593	93322	0,52
20538	93292	0,4
20531	93124	1,07
20483	93155	0,99
20449	93155	0,92
20511	93170	0,8
20518	93201	0,8
20506	93243	1,32
20501	93254	1,81
20475	93283	10,17
20462	93305	3,53
20443	93302	3,75
20444	93286	3,51
20413	93287	2,38
20436	93241	5,18
20419	93256	3,48
20390	93254	1,37
20369	93232	1,03
20437	93165	1,51
20561	93229	2,61
20540	93210	3,09
20561	93293	0,48
20534	93317	0,15
20559	93319	1,9
20559	93337	3,76
20557	93385	0,23
20530	93338	2,4
20504	93344	0,54
20563	93424	0,58
20596	93483	0,57
20618	93566	2,64
20651	93627	3,63
20575	93587	0,33
20457	93205	0,79
20451	93217	1,66
20590	93364	1,39



х

0 Pontos de amostragem

x (m)	v (m)	Fluxo Verão (Bg.m ⁻² .s ⁻¹ )
20563	93121	0.95
20505	02106	1.56
20577	93196	1,00
20473	93200	1,03
20437	93258	4,27
20524	93453	0,02
20517	93510	1,19
20610	93535	0,65
20631	93616	1,34
20589	93393	1,04
20593	93322	0,77
20538	93292	0,57
20560	93171	1,61
20521	93192	0,77
20485	93163	0,33
20453	93191	1,31
20482	93249	1,82
20477	93261	2,6
20465	93274	9,26
20432	93230	11,09
20539	93187	2,84
20540	93188	1,52
20506	93231	0,7

### A4. Exalação de radão na barragem velha da Urgeiriça (Verão)

### A5. Valores da concentração obtidos pelo modelo com os fluxos medidos nos pontos de amostragem



x (m)	y (m)	J (Ba.m ⁻² .s ⁻¹ )	Rad. (cps)	H (%)	Radão (Bg/m ³ )	Radão (Bg/m ³ )	Radão (Bg/m ³ )	Radão (Bg/m ³ )
20563	93121	1,33	5500	31,18	29,23	154,6	49,69	262,82
20577	93196	4,47	6000	32,75	87,92	519,6	149,46	883,32
20473	93200	5,58	6000	28,25	122,65	648,6	208,51	1102,62
20437	93258	3,37	8000	11,83	43,57	391,7	74,07	665,89
20524	93453	0,03	320	10,27	0,39	3,49	0,66	5,93
20517	93510	0,13	500	56,69	1,68	15,11	2,86	25,69
20610	93535	0,73	4250	23,56	9,44	84,85	16,05	144,25
20631	93616	2,26	9000	27,88	29,22	262,7	49,67	446,59
20589	93393	0,66	4000	24,95	8,53	76,71	14,50	130,41
20593	93322	0,52	2000	9,74	6,72	60,44	11,42	102,75
20538	93292	0,40	2000	12,26	5,17	46,49	8,79	79,03
20531	93124	1,07	2000	13,40	23,52	124,37	39,98	211,43
20483	93155	0,99	5500	32,51	21,76	115,07	36,99	195,62
20449	93155	0,92	4000	31,64	20,22	106,93	34,37	181,78
20511	93170	0,80	2000	12,53	17,58	92,98	29,89	158,07
20518	93201	0,80	2000	14,18	17,58	92,98	29,89	158,07
20506	93243	1,32	1800	9,95	29,01	153,42	49,32	260,81
20501	93254	1,81	3250	20,46	39,78	210,38	67,63	357,65
20475	93283	10,17	6500	20,00	223,53	1182	380,00	2009,40
20462	93305	3,53	5500	13,21	45,64	410,3	77,59	697,51
20443	93302	3,75	5000	7,40	48,48	453,87	82,42	771,58
20444	93286	3,51	10000	17,22	45,38	407,97	77,15	693,55
20413	93287	2,38	3500	9,43	30,77	276,63	52,31	470,27
20436	93241	5,18	15000	31,86	66,97	602,08	113,85	1023,54
20419	93256	3,48	8500	22,08	44,99	404,49	76,48	687,63
20390	93254	1,37	2100	8,55	17,71	159,24	30,11	270,71
20369	93232	1,03	1800	3,24	13,32	119,72	22,64	203,52
20437	93165	1,51	2000	13,29	33,19	175,51	56,42	298,37
20561	93229	2,61	5000	24,98	57,37	303,36	97,53	515,71
20540	93210	3,09	5200	14,28	67,92	359,16	115,46	610,57
20561	93293	0,48	1800	9,23	6,21	55,79	10,56	94,84
20534	93317	0,15	3000	17,86	1,94	17,43	3,30	29,63
20559	93319	1,90	7000	28,73	24,56	220,84	41,75	375,43
20559	93337	3,76	8000	42,63	48,61	437,03	82,64	742,95
20557	93385	0,23	1800	9,58	2,97	26,73	5,05	45,44
20530	93338	2,40	3200	1,78	31,03	278,96	52,75	474,23
20504	93344	0,54	2200	12,05	6,98	627,76	11,87	1067,19
20563	93424	0,58	2200	8,77	7,50	67,41	12,75	114,60
20596	93483	0,57	3000	15,16	7,37	66,25	12,53	112,63
20018	93566	2,64	8000	JZ,8Z	34,13	300,85	58,02	521,65
20051	93027	3,03	12000	21,13	40,93	421,92	19,10	111,20
20575	9308/	0,33	1000	5,01	4,27	30,30	1,20	156.00
20457	93203	0,79	1900	10,09	17,30	91,02	29,31	150,09
20451	93217	1,00	3200	2,00 31 76	∠1,40 17.07	92,94	20 55	274 65
20590	02121	1,39	5500	01,70 01 7	10.00	110 / 20	20,00	274,00 107 71
20503	03106	0,90	6250	21,7	12,20	10,42	20,00	202.24
20577	93196	1,56	6250	∠ŏ,∠	20,17	101,32	34,29	308,24

X	У	J	Rad.	Н	Radão	Radão	Radão	Radão
(m)	(m)	(Bq.m  .s  )	(cps)	(%)	(Bq/m³)	(Bq/m³)	(Bq/m°)	(Bq/m³)
20473	93200	1,03	6000	50,9	13,32	119,72	22,64	203,52
20437	93528	4,27	8000	4,3	55,21	496,31	93,86	843,73
20524	93453	0,02	400	3,6	0,26	2,32	0,44	3,94
20517	93510	1,19	500	28,5	15,39	138,32	26,16	235,14
20610	93535	0,65	4000	6,4	8,4	75,55	14,28	128,44
20631	93616	1,34	8000	36,3	17,32	155,75	29,44	264,78
20589	93393	1,04	4000	41,3	13,45	120,88	22,87	205,50
20593	93322	0,77	2000	3,1	9,96	89,5	16,93	152,15
20560	93171	1,61	5000	33,6	20,82	187,13	35,39	318,12
20521	93192	0,77	2500	3,2	9,96	89,5	16,93	152,15
20485	93163	0,33	7500	18,7	4,27	38,36	7,26	65,21
20453	93191	1,31	3500	2,2	16,94	152,26	28,80	258,84
20482	93249	1,82	3500	1,1	23,53	211,54	40,00	359,62
20477	93261	2,6	7500	3,4	33,62	302,2	57,15	513,74
20465	93274	9,26	15000	15,1	119,73	1076,3	203,54	1829,71
20432	93230	11,09	5500	5,6	143,39	1289	243,76	2191,30
20539	93187	2,84	7000	26	36,79	330,1	62,54	561,17
20540	93188	1,52	5000	25,3	19,65	176,67	33,41	300,34
20506	93231	0,7	2800	2,2	9,05	81,36	15,39	138,31
20538	93292	0,57	2000	3,1	7,37	66,25	12,53	112,63
20519	93307	2,05	4660,75	18,21	31,33	245,03	53,27	416,55
					h = 1,7	h = 1,7	h = 1	h = 1
					C ₀	* <b>C</b> 0	C ₀	* <b>C</b> 0

 $^{*}C_{0}$ : concentração na direcção dominante do vento à altura h.

 $C_0 e * C_0$  obtidos no modelo com os valores do fluxo medidos nos pontos de amostragem.

## ANEXO B

# Dedução do factor de correcção para o transporte subterrâneo

#### B1. Dedução do factor de correcção para o transporte subterrâneo

A avaliação dos efeitos na saúde devido à ingestão, directa ou indirecta, da água contaminada com radionuclídeos (RDN) proveniente de um poço envolve simulações complicadas das doses cumulativas nos órgãos além de uma análise probabilística da ocorrência dos efeitos fatais de cancro que se verifiquem após ocorrer a ingestão de água contaminada do poço.

Devido à complexidade da simulação das doses e dos efeitos na saúde, geralmente é utilizado um modelo linear de avaliação de risco em que a ocorrência de cancro é simplesmente proporcional à dose de exposição. Desta forma, os efeitos na saúde ou o risco radiológico devido à ingestão de um RDN específico, E_i, para uma população P', podem ser quantificados por (Hung, 2000):

$$\left(\mathsf{H}_{e}\right)_{i} = \left(\frac{\mathsf{P}'}{\mathsf{T}_{e}}\right)\sum_{j=1}^{\mathsf{M}}\mathsf{E}_{i}(\mathsf{R}_{f})_{i,j} \tag{B-1}$$

em que  $(R_f)_{i,j}$  é o factor de conversão do risco radiológico (coeficiente de risco de mortalidade por ingestão) para o RDN i e para o órgão j, por unidade de débito de ingestão (risco x Bq⁻¹), T_e a esperança média de vida, E_i o débito de exposição ao RDN i por esta trajectória (Bq.ano⁻¹) e (i, j) a ordem dos RDN e dos órgãos humanos, respectivamente.

Considerando que a avaliação de risco envolve a estimativa dos efeitos radiológicos para gerações infinitas da população em estudo, os efeitos totais resultantes da exposição E_i pode ser calculado pela seguinte expressão genérica (Hung, 2000):

$$\left(\mathsf{H}_{t}\right)_{i} = \int_{0}^{\infty} \left(\frac{\mathsf{P}'}{\mathsf{T}_{e}}\right)_{j=1}^{M} \mathsf{E}_{i}(\mathsf{R}_{f})_{i,j} dt \tag{B-2}$$

$$= \left(\frac{\mathsf{P}'}{\mathsf{T}_{\mathsf{e}}}\right) \sum_{j=1}^{\mathsf{M}} (\mathsf{R}_{\mathsf{f}})_{i,j} \int_{0}^{\infty} \mathsf{E}_{i} \, \mathsf{dt}$$
 (B-3)

em que H_t são os efeitos totais na saúde ou radiológicos e t é o tempo de exposição.

Uma vez que a libertação anual dos RDN, potencialmente ingeridos com a água contaminada do poço, é directamente proporcional ao débito de RDN transportados até ao poço, podemos escrever:

$$\mathsf{E}_{i} = \mathsf{r}\frac{\mathsf{Q}_{i}}{\mathsf{P}'} \tag{B-4}$$

em que r é quociente entre o débito da actividade que se prevê ser ingerida pela população e o débito da actividade que chega ao poço, e Q_i é o débito de RDN transportados ao poço.

Substituindo a expressão (B-4) na expressão (B-3), obtém-se:

$$\left(\mathsf{H}_{t}\right)_{i} = \left(\frac{r}{\mathsf{T}_{e}}\right)\sum_{j=1}^{M} (\mathsf{R}_{f})_{i,j} \int_{0}^{\infty} \mathsf{Q}_{i} \mathsf{d}t$$
(B-5)

Esta expressão indica que os efeitos totais radiológicos dependem da actividade cumulativa total de RDN que chegam ao poço e são independentes da variação do débito de transporte no tempo. Assim, para a avaliação dos efeitos radiológicos, o *input* necessário para o modelo de transporte subterrâneo é a quantidade cumulativa de RDN que chegam ao poço durante um período de tempo infinito. Este é o conceito base do modelo apresentado para o transporte de RDN na água subterrânea.

Uma vez que o objectivo da avaliação dos efeitos radiológicos é quantificar os efeitos fatais esperados, é possível introduzir um factor de correcção dos efeitos na saúde a longo prazo, designado por  $\eta$ , que pode ser definido como sendo a razão entre os efeitos verificados considerando a dispersão no transporte subterrâneo (H_t) e os efeitos verificados desprezando a dispersão (H'_t) (Hung, 2000):

$$\eta = \frac{H_t}{H'_t}$$
(B-6)

Assumimos que a população exposta à contaminação da água do poço permanece constante e que existe uma relação linear entre a quantidade cumulativa de RDN que atinge o poço e os efeitos totais radiológicos esperados. Substituindo a expressão (B-5) na expressão (B-6) e agrupando todos os termos que afectam os factores de conversão dos efeitos radiológicos num só (F_h), que representará a conversão dos efeitos radiológicos resultante da libertação cumulativa de RDN, a expressão anterior pode ser escrita da seguinte forma:

$$\eta = \frac{F_{h} \int_{0}^{\infty} Q(t) dt}{F_{h} \int_{0}^{\infty} Q'(t) dt}$$
(B-7)

Página 666

Substituindo Q e Q' definidos na expressão (4-57) do capítulo 4, na expressão (B-7):

$$\eta = \frac{\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{t} Q_{0}(t-\tau)u(\tau)d\tau dt}{\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{t} Q_{0}(t-\tau)u'(\tau)d\tau dt}$$
(B-8)

A ordem de integração do integral duplo pode ser invertida no numerador e no denominador:

$$\eta = \frac{\int_{0}^{\infty} \int_{\tau}^{t} Q_{0}(t-\tau)u(\tau)dtd\tau}{\int_{0}^{\infty} \int_{\tau}^{t} Q_{0}(t-\tau)u'(\tau)dtd\tau}$$
(B-9)

Fazendo uma substituição da variável independente, t, tal que  $\sigma$  = t -  $\tau$ , a expressão anterior pode ser escrita da seguinte forma:

$$\eta = \frac{\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{\infty} Q_0(\sigma) u(\tau) d\sigma d\tau}{\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{\infty} Q_0(\sigma) u'(\tau) d\sigma d\tau}$$
(B-10)

Uma vez que  $Q_0$  é independente de <u> $\tau$ </u> e que <u>u</u> e <u>u</u>' são independentes de  $\sigma$ , o integral duplo (tanto no numerador como no denominador) pode ser separado no produto de dois integrais simples, o que resulta em:

$$\eta = \frac{\int_{0}^{\infty} Q_{0}(\sigma) d\sigma \int_{0}^{\infty} u(\tau) d\tau}{\int_{0}^{\infty} Q_{0}(\sigma) d\sigma \int_{0}^{\infty} u'(\tau) d\tau}$$
(B-11)

que por sua vez, pode ser simplificado em:

$$\eta = \frac{\int_{0}^{\infty} u(\tau) d\tau}{\int_{0}^{\infty} u'(\tau) d\tau}$$
(B-12)

O factor de correcção para os efeitos radiológicos ( $\eta$ ) é independente de t. O débito de RDN transportados no fluxo subterrâneo pode ser expresso por  $Q_p$  ( $Q = Q_p$ ):

$$Q_{p}(t) = \eta \cdot Q_{0}\left(t - \frac{R \cdot L}{V}\right) e^{\left[-\frac{\lambda_{d} \cdot R \cdot L}{V}\right]}$$
(B-13)

Esta expressão vai ser a base para a simulação da migração dos RDN na horizontal (ao longo do aquífero) desde o ponto de infiltração até ao poço.

Se substituir as expressões (B-14) e (B-15) (já definidas no capítulo 4 pelas expressões (4-58) e (4-60) respectivamente) na expressão (B-12) e integrar o denominador, o factor de correcção pode ser traduzido pela expressão (B-16):

$$u(\tau) = \frac{V}{2 \cdot L} \sqrt{\frac{R \cdot P_{e}}{\pi \cdot \theta_{d}^{3}}} e^{\left[-N_{d} \cdot \theta_{d} - \frac{P_{e} \cdot \theta_{d}}{4 \cdot R} \left(\frac{R}{\theta_{d}} - 1\right)^{2}\right]}$$
(B-14)  
$$u'(\tau) = e^{\left[\frac{-R \cdot L \cdot \lambda_{d}}{V}\right]} \cdot \delta\left(\tau - \frac{R \cdot L}{V}\right)$$
(B-15)  
$$\eta = \frac{\int_{0}^{\infty} \left(\frac{1}{2} \sqrt{\frac{R \cdot P}{\pi \cdot \theta_{d}^{3}}} e^{\left[-N_{d} \cdot \theta_{d} - \frac{P \cdot \theta_{d}}{4 \cdot R} \left(\frac{R}{\theta_{d}} - 1\right)^{2}\right]}\right)} d\theta_{d}$$
(B-16)

O numerador da expressão (B-16) também pode ser integrado e substituindo o resultado da integração, a expressão anterior transforma-se na expressão (B-17):

$$\eta = \frac{e^{\left[\frac{P_{e}}{2} - \frac{P_{e}}{2}\sqrt{1 + \frac{4 \cdot \lambda_{d} R \cdot L}{P_{e} \cdot V}}\right]}}{e^{\left[-\frac{\lambda_{d} \cdot R \cdot L}{V}\right]}}$$
(B-17)

Da análise da expressão anterior verifica-se que o factor de correcção é uma função do número de Peclet (P_e) e do parâmetro expresso por  $\lambda_d$ .R.L/V. Este parâmetro representa o quociente entre a constante de decaimento radioactivo ( $\lambda_d$ ) e a constante ou número de transporte (V/R.L).

A Figura B-1 seguinte representa algumas variações do número de Peclet com o número de transporte.





Da observação do gráfico podemos verificar que o factor de correcção ( $\eta$ ) aumenta com o número de transporte e diminui com o aumento do número de Peclet, sendo sempre superior à unidade.

## ANEXO C

# Libertação contínua e variável no tempo

#### C1. Introdução

A libertação contínua ou instantânea de uma fonte de contaminação pode ser representada através da quantidade de massa de contaminante libertado que entra no sistema ou através da concentração da libertação. A concentração na fonte de contaminação pode ser normalizada, isto é, igual à unidade e o resultado será expresso em % da concentração inicial.

Nas fontes com decaimento radioactivo, os isótopos presentes vão diminuir com o tempo devido ao decaimento radioactivo. Quando a libertação do RDN é controlada pela solubilidade ou quando o período de semi-vida é extremamente elevado, a concentração do RDN no lixiviado pode permanecer constante (apesar do decaimento radioactivo da fonte) até a fonte de contaminação ter decaído para um valor da concentração em que os limites de solubilidade já não são responsáveis pela quantidade de radionuclídeos que podem entrar na solução.

#### C2. Libertação de contaminante da fonte de contaminação

A concentração no lixiviado, em condições de equilíbrio pode ser estimada por (EPA, 1996):

$$C_{wat} = \frac{M_{ci}}{(A \cdot \theta \cdot T + \rho \cdot K_{d})}$$
(C-1)

$$\theta = \theta_{sat} \cdot R_{sat}$$
 (C-2)

$$R_{sat} = \left(\frac{I_r}{K_{sat}}\right)^{\frac{1}{2^{2b+3}}}$$
(C-3)

em que,

C_{wat}: concentração no lixiviado, (Bq/m³)

M_{ci}: quantidade de RDN na fonte de contaminação, (Bq)

- A: área da fonte de contaminação, (m²)
- T: espessura da fonte, (m)
- K_d: coeficiente de distribuição, (mL/g ou cm³/g)
- $\rho$ : densidade, (g/cm³)
- θ: teor volumétrico de água, (volume de água/volume de solo)
- $\theta_{sat}$ : porosidade total, em condições saturadas  $\theta_{sat} = \epsilon$ , (-)

R_{sat}: grau de saturação, (-)

Ir: infiltração da água, (m/ano)

K_{sat}: condutividade hidráulica saturada, (m/ano)

b: parâmetro exponencial específico do solo.

#### C3. Volume de lixiviado libertado

Para os resíduos sólidos, a água de percolação (directamente da precipitação ou escorrências) é frequentemente o principal mecanismo de lixiviação. O fluxo de RDN libertado para a água subterrânea pode ser estimado por (EPA, 1996):

$$L_{c} = C_{wat} \cdot A \cdot I_{r}$$
 (C-4)

- L_c: débito de libertação de contaminante, (Bq/ano)
- A: área da fonte de contaminação, (m²).

#### C4. Transporte subterrâneo

De uma forma geral, o transporte dos contaminantes envolve o movimento pelos processos de advecção, de difusão e de dispersão hidrodinâmica. A transferência dos contaminantes para outro meio ou local de armazenagem (transferência de fases) resulta de outros processos como a sorção, a permuta iónica e a precipitação, que podem ainda facilitar ou retardar o movimento dos contaminantes. O decaimento radioactivo irá sempre resultar numa perda de actividade do RDN original, no entanto, o decaimento radioactivo pode resultar num aumento da radioactividade ou da toxicidade química dos produtos de desintegração à medida que o RDN original sofre decaimento radioactivo.

#### C4.1. Estimativa da concentração na água subterrânea

Se considerarmos que o decaimento radioactivo é o único processo que afecta a concentração, isto é, não se considera a diluição, a concentração do RDN no ponto de exposição pode ser estimado com base na proporcionalidade do volume e da concentração no resíduo *versus* a proporcionalidade do volume e da concentração no resíduo *versus* a proporcionalidade do volume e da concentração, ou seja, na água subterrânea. A concentração de um RDN, no ponto de exposição, ou seja, na água proveniente de um poço localizado a x metros da fonte de contaminação, na direcção do fluxo, pode ser estimada pela expressão (C-5) (EPA, 1996):

$$\mathbf{C}_{\text{well}} = \mathbf{C}_{\text{wat}} \cdot \mathbf{e}^{\left(-\lambda \cdot \frac{\mathbf{x}}{V_c}\right)}$$
(C-5)

C_{well}: concentração na água do poço, (Bq/m³)

V_c: velocidade do contaminante, (m/ano)

 $\lambda$ : constante de decaimento, (ano⁻¹).

A variação da concentração do urânio e do rádio na água subterrânea com a distância, estimada pela expressão anterior, encontra-se representada nas figuras seguintes. Considerou-se a concentração em rádio no lixiviado igual a 184,3 Bq/m³ e em urânio igual a 92,3 Bq/m³.



Figura C-1: Variação da concentração de U na água do poço (C_{well}, Bq/m³) vs distância (x, m).



Figura C-2: Variação da concentração de Ra na água do poço ( $C_{well}$ , Bq/m³) vs distância (x, m).

A expressão anterior faz parte de um dos muitos modelos analíticos descritos na bibliografia para o transporte subterrâneo unidimensional (Hung, 2000). Outras expressões podem ser enunciadas deste conjunto de modelos analíticos para o transporte subterrâneo (Hung, 2000):  (i). para uma libertação impulsional no aquífero de concentração C₀, quando t = 0 e x = 0:

$$\mathbf{C} = \mathbf{C}_0 \cdot \delta(\mathbf{t}) \tag{C-6}$$

(ii). para uma libertação com decaimento exponencial de constante de decaimento  $\lambda$  (ano⁻¹), com a duração de t_d anos:

$$\mathbf{C} = \frac{\mathbf{C}_0}{\mathbf{t}_d} \cdot \mathbf{e}^{(-\lambda \cdot \mathbf{t})}$$
(C-7)

(iii). no caso de uma libertação em que o fluxo de RDN libertados, para qualquer t, é proporcional à quantidade que permanece na fonte de contaminação: o fluxo de água subterrânea é dado por V_{ol} (m³/ano), M_{in} (Bq) é a quantidade inicial de RDN existentes na fonte de contaminação e λ' a constante de lixiviação (ano⁻¹):

$$\mathbf{C} = \frac{\lambda' \cdot \mathbf{M}_{in}}{V_{ol}} \cdot \mathbf{e}^{[-(\lambda - \lambda') \cdot t]}$$
(C-8)

Estas expressões analíticas simplificam muito o processo de transporte hidrológico, contudo, para os efeitos de avaliação da exposição, estes modelos analíticos podem revelar-se limitados, uma vez que é necessário converter as condições fronteira do caso em estudo nas condições fronteira impostas por estes modelos analíticos, o que poderá resultar em consideráveis erros na simulação.

#### C5. Estimativa quantitativa do transporte

Os RDN podem ser transportados através da zona insaturada até entrarem na zona saturada. Contudo, a libertação também pode ocorrer directamente na zona saturada. Na zona insaturada, a direcção predominante do fluxo é na vertical até atingir a zona de saturação. Dentro da zona de saturação, o fluxo é predominantemente lateral.

#### C5.1. Estimativa do fluxo subterrâneo e do transporte dos RDN

O movimento dos RDN na água subterrânea pode ser descrito por duas equações: uma para o movimento do fluido (água) e outra para o transporte da massa dos constituintes dissolvidos (EPA, 1996).

#### a) Fluxo na zona insaturada

$$V_{pw} = \frac{I_r}{\theta}$$
 (C-9)

$$I_r = K_s \cdot K_r$$
 (C-10)

$$K_{r} = \left(\frac{\theta}{\theta_{sat}}\right)^{(2b+3)}$$
(C-11)

$$\theta = \theta_{\text{sat}} \cdot \left(\frac{I_{\text{r}}}{K_{\text{s}}}\right)^{\frac{1}{2\cdot b+3}}$$
(C-12)

$$I_{r} = (1 - C_{e}) \cdot [(1 - C_{r}) \cdot P_{r} + IR_{r}]$$
(C-13)

#### V_{pw}: velocidade intersticial (dos poros) da água subterrânea, (m/ano)

- I_r: infiltração, (m/ano)
- K_s: condutividade hidráulica saturada na vertical, (m/ano)
- $\theta_{sat}$ : porosidade, (-)
- Ce: coeficiente de evapotranspiração, (-)
- C_r: coeficiente de escorrência, (-)
- Pr: precipitação, (m/ano)
- IR_r: irrigação, (m/ano).

#### b) Fluxo na zona saturada

O fluxo volumétrico de água através de um meio poroso em condições saturadas, pode ser descrito pela lei de Darcy. A estimativa da velocidade de transporte do RDN é baseada na estimativa da velocidade da água. Para os contaminantes que são transportados com a água, a velocidade de contaminante é igual à velocidade da água (vertical ou horizontal). A velocidade do fluxo subterrâneo na zona saturada (V) é estimada pela lei de Darcy e a velocidade intersticial (V_{pw}) é calculada por (EPA, 1996):

$$V = K_s \cdot i$$
 (C-14)

$$V_{pw} = \frac{V}{\varepsilon_{e}}$$
(C-15)

V: velocidade de Darcy, (m/ano)

V_{pw}: velocidade da água subterrânea (água dos poros), (m/ano)

K_s: condutividade hidráulica do solo ou do material do aquífero, (m/ano)

- i: gradiente hidráulico, (-)
- $\epsilon_e$ : porosidade efectiva, (-).

#### c) Transporte da massa de contaminante

Os RDN dissolvidos podem estar sujeitos aos efeitos do retardamento. A equação de transporte de massa inclui o factor de retardação para estimar o movimento do fluxo do RDN:

$$\mathsf{R}_{\mathsf{f}} = \frac{\varepsilon_{\mathsf{t}}}{\varepsilon_{\mathsf{e}}} + \frac{\rho}{\varepsilon_{\mathsf{e}}} \cdot \mathsf{K}_{\mathsf{d}} \tag{C-16}$$

ou se  $\varepsilon_t = \varepsilon_e$  resulta em:

$$R_{f} = 1 + \frac{\rho}{\varepsilon_{e}} \cdot K_{d}$$
 (C-17)

 $\epsilon_t$ : porosidade total, (-)

 $\epsilon_{e}$ : porosidade efectiva, (-)

K_d: coeficiente de distribuição, (ml/g ou cm³/g).

#### C5.2. Cadeia de decaimento dos RDN

No processo de transporte dos RDN, a cadeia de decaimento radioactivo deve ser considerada para a avaliação da exposição no ponto receptor. Ao considerar o processo de decaimento ao longo da trajectória dos RDN, é necessário definir uma equação para cada RDN parental e para cada produto filho para obter a concentração de cada RDN (a espécie original e o produto) ao longo da trajectória do fluxo. A equação geral para a cadeia de decaimento do ²³⁸U, num transporte unidimensional, pode ser traduzida pelas seguintes expressões (EPA, 1996):

$$R_{1} \cdot \frac{\partial C_{1}}{\partial t} + V_{pw} \frac{\partial C_{1}}{\partial x} = D_{x} \frac{\partial^{2} C_{1}}{\partial x^{2}} - R_{f1} \lambda_{1} C_{1}$$
²³⁸U

$$R_{2} \cdot \frac{\partial C_{2}}{\partial t} + V_{pw} \frac{\partial C_{2}}{\partial x} = D_{x} \frac{\partial^{2} C_{2}}{\partial x^{2}} - R_{f2} \lambda_{2} C_{2} + R_{f1} \lambda_{1} C_{1}$$
²³⁴U

$$R_{3} \cdot \frac{\partial C_{3}}{\partial t} + V_{pw} \frac{\partial C_{3}}{\partial x} = D_{x} \frac{\partial^{2} C_{3}}{\partial x^{2}} - R_{f3}\lambda_{3}C_{3} + R_{f2}\lambda_{2}C_{2}$$
²³⁰Th

$$R_{4} \cdot \frac{\partial C_{4}}{\partial t} + V_{pw} \frac{\partial C_{4}}{\partial x} = D_{x} \frac{\partial^{2} C_{4}}{\partial x^{2}} - R_{f4} \lambda_{4} C_{4} + R_{f3} \lambda_{3} C_{3}$$
²²⁶Ra

Página 678
$$R_{5} \cdot \frac{\partial C_{5}}{\partial t} + V_{pw} \frac{\partial C_{5}}{\partial x} = D_{x} \frac{\partial^{2} C_{5}}{\partial x^{2}} - R_{f5} \lambda_{5} C_{5} + R_{f4} \lambda_{4} C_{4}$$
²¹⁸Po

$$\mathsf{R}_{6} \cdot \frac{\partial \mathsf{C}_{6}}{\partial t} + \mathsf{V}_{\mathsf{pw}} \frac{\partial \mathsf{C}_{6}}{\partial x} = \mathsf{D}_{x} \frac{\partial^{2} \mathsf{C}_{6}}{\partial x^{2}} - \mathsf{R}_{\mathsf{f}6} \lambda_{\mathsf{6}} \mathsf{C}_{\mathsf{6}} + \mathsf{R}_{\mathsf{f}5} \lambda_{\mathsf{5}} \mathsf{C}_{\mathsf{5}} \qquad {}^{\mathsf{214}}\mathsf{Po}$$

$$R_{7} \cdot \frac{\partial C_{7}}{\partial t} + V_{pw} \frac{\partial C_{7}}{\partial x} = D_{x} \frac{\partial^{2} C_{7}}{\partial x^{2}} - R_{f7} \lambda_{7} C_{7} + R_{f6} \lambda_{6} C_{6} \qquad ^{210} Pb$$

$$R_8 \cdot \frac{\partial C_8}{\partial t} + V_{pw} \frac{\partial C_8}{\partial x} = D_x \frac{\partial^2 C_8}{\partial x^2} - R_{f8} \lambda_8 C_8 + R_{f7} \lambda_7 C_7 \qquad {}^{210} Pc$$

- C_i: concentração do RDN i, (Bq.m⁻³)
- R_i: factor de retardação do RDN i, (-)
- D_x: coeficiente de dispersão, (m².s⁻¹)
- $\lambda$ : constante de decaimento radioactivo, (s⁻¹).

### C5.3. Diluição

A concentração do lixiviado vai ser diluída ao misturar-se com a água subterrânea, o que vai resultar numa diminuição da concentração no ponto de exposição. A diluição, numa primeira abordagem, pode ser determinada pelo fluxo de água no aquífero (V_{ol}), pela altura da mistura efectiva no aquífero (T_e: o valor máximo deve ser igual à espessura do aquífero) e pela massa de RDN que entra no aquífero, estimada considerando apenas o decaimento radioactivo (M_{well}) (EPA, 1996):

$$M_{well} = C_{wat} \cdot e^{\left(\frac{\lambda}{V_{c}}\right)} \cdot I_{r} \cdot A$$
(C-18)

$$V_{ol} = K \cdot i \cdot T_{e} \cdot W \cdot \varepsilon_{a}$$
 (C-19)

$$\mathbf{T}_{\mathbf{e}} = \left(\frac{\mathbf{I}_{\mathbf{r}}}{\mathbf{V}_{\mathbf{c}}}\right) \cdot \ell \tag{C-20}$$

 $V_{ol}$ : fluxo de água (volume) no aquífero, (m³/ano)

K: condutividade hidráulica do aquífero, (m/ano)

W: largura da fonte de contaminação, (m)

- T_e: espessura da mistura, (m)
- $\epsilon_a$ : porosidade do aquífero, (-)
- *l*: distância da fonte de contaminação até ao receptor, (m)
- V_c: velocidade do contaminante, (m/ano)

M_{well}: massa de RDN corrigida apenas para o decaimento radioactivo, (Bq/ano).

A distância da mistura efectiva,  $T_e$ , representa a distância na vertical (altura) percorrida pelo contaminante ao longo da distância  $\ell$ , pressupondo que a velocidade vertical é dada por  $I_r$  (m/ano) e que a velocidade na horizontal é igual à velocidade do fluxo no aquífero.

A concentração do RDN, M_{well}, (considerando apenas o decaimento radioactivo) no ponto de exposição localizado a *t* metros da fonte de contaminação, na direcção do fluxo, pode ser ajustada para incluir a diluição pela seguinte expressão (EPA, 1996):

$$D_{well} = \frac{M_{well}}{V_{ol}}$$
(C-21)

D_{well}: concentração do RDN no ponto de exposição corrigido pela diluição, (Bq/m³).

## C6. Solução analítica para o transporte de RDN no aquífero

Considera-se que estamos em presença de um transporte advectivo saturado unidireccional, de uma substância dissolvida com dispersão tridimensional num aquífero isotrópico e homogéneo. A equação diferencial do transporte do soluto nestas condições é dada por (EPA, 1996):

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{V_{pw}}{R_d} \frac{\partial C}{\partial x} = \frac{D_x}{R_d} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{D_y}{R_d} \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} + \frac{D_z}{R_d} \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \lambda C$$
(C-22)

em que  $D_x$ ,  $D_y$ ,  $D_z$  representam os coeficientes de dispersão nas direcções x, y, z, respectivamente (m²/ano).

Para um fluxo unidireccional:  $V_2 = V_3 = 0$  e  $V_1 = V$ ;  $\theta$  pode ser aproximado pela porosidade efectiva ( $\varepsilon_e$ ) em presença de um fluxo saturado e como  $V_{pw} = V/\varepsilon_e$ , os coeficientes de dispersão podem ser aproximados pelas expressões (EPA, 1996):

$$\mathsf{D}_{\mathsf{x}} = \alpha_{\mathsf{L}} \cdot \mathsf{V}_{\mathsf{pw}} \tag{C-23}$$

$$D_{y} = \alpha_{T} \cdot V_{pw}$$
 (C-24)

$$\mathsf{D}_{\mathsf{z}} = \alpha_{\mathsf{T}} \cdot \mathsf{V}_{\mathsf{pw}} \tag{C-25}$$

α_L: dispersividade longitudinal, (m)

 $\alpha_{T:}$  dispersividade transversal, (m).

### C6.1. Estimativa da concentração no ponto de exposição

A equação geral de transporte (C-22) pode ser traduzida pelas funções de Green para obter a estimativa da concentração no ponto de exposição  $C_i$  (Bq/m³) para uma libertação instantânea de 1 Bq (M₀). Os parâmetros X, Y, Z são as funções de Green e x, y, z, as coordenadas nas respectivas direcções (EPA, 1996).

$$C_{i} = \frac{1}{\varepsilon_{e} \cdot R_{i}} X(x,t) Y(x,t) Z(x,t)$$
(C-26)

Esta expressão pode ser adaptada para diversas condições fronteira e diferentes configurações da fonte de contaminação. A seguir é feita uma abordagem do modelo resultante para cada caso com os seguintes parâmetros, necessários a cada situação específica.

- M₀: massa de RDN libertada no aquífero, (Bq)
- x: coordenada x do ponto de exposição, (m)
- V_{pw:} velocidade da água subterrânea, (m/ano)
- $D_x$  coeficiente de dispersão na horizontal, (m²/ano)
- D_v coeficiente de dispersão na vertical, (m²/ano)
- $\lambda$ : constante de decaimento radioactivo, (ano⁻¹)
- y: coordenada y do ponto de exposição, (m)
- b: espessura do aquífero, (m)
- R_i: factor de retardação, (-)
- $\epsilon_e$ : porosidade efectiva, (-)
- z_s: profundidade do ponto de libertação no aquífero, (m)
- w: extensão da contaminação na direcção perpendicular à do fluxo, (m).

### C6.1.1. Fonte de contaminação representada por um ponto

A fonte de contaminação para um aquífero de extensão lateral infinita (x, y) e profundidade b, é representada por um ponto de coordenadas x = 0, y = 0 e  $z = z_1$  (EPA, 1996):

Ponto de contaminação no aquífero ( $x = 0, y = 0 e z = z_1$ )



Figura C-3: Fonte de contaminação representada por um ponto (EPA, 1996).

$$\mathbf{C}_{i} = \frac{\mathbf{M}_{0}}{\varepsilon_{e} \cdot \mathbf{R}} \cdot \mathbf{X}_{1}(\mathbf{x}, t) \cdot \mathbf{Y}_{1}(\mathbf{x}, t) \cdot \mathbf{Z}_{1}(\mathbf{x}, t)$$
(C-27)

$$X_{1} = \frac{1}{\sqrt{4 \cdot \pi \cdot D_{x} \cdot \frac{t}{R}}} \exp \left( -\frac{\left(x - V_{pw} \cdot \frac{t}{R}\right)^{2}}{\left(4 \cdot D_{x} \cdot \frac{t}{R}\right)^{2}} - \lambda \cdot t \right)$$
(C-28)

$$Y_{1} = \frac{1}{\sqrt{4 \cdot \pi \cdot D_{Y} \cdot \frac{t}{R}}} \exp\left(-\frac{(y)^{2}}{\left(4 \cdot D_{y} \cdot \frac{t}{R}\right)}\right)$$
(C-29)

$$Z_{1} = \frac{1}{b} \cdot \left( 1 + 2\sum_{m=1}^{\infty} \exp\left(\frac{-m^{2} \cdot \pi^{2} D_{z} \cdot t}{b^{2} \cdot R}\right) \cdot \cos\left(m \cdot \pi \cdot \frac{z_{s}}{b}\right) \cdot \cos\left(m \cdot \pi \cdot \frac{z}{b}\right) \right)$$
(C-30)

# C6.1.2. Fonte de contaminação representada por uma linha vertical

A fonte de contaminação é representada por uma linha vertical de comprimento b metros (EPA, 1996):

$$C_{i} = \frac{M_{0}}{\varepsilon_{e} \cdot R} X_{1}(x,t) Y_{1}(x,t) Z_{2}(x,t)$$
(C-31)

$$Z_2 = \frac{1}{b}$$
 (C-32)

Página 682

### C6.1.3. Fonte de contaminação representada por uma linha horizontal

A fonte de contaminação é representada por uma linha horizontal de extensão w, de centro no ponto  $(0, 0, z_1)$  (EPA, 1996):



Ponto de contaminação no aquífero  $(x = 0, y = 0 e z = z_1)$ 

Figura C-4: Fonte de contaminação representada por uma linha horizontal, (EPA, 1996).

$$C_{i} = \frac{M_{0}}{\varepsilon_{e} \cdot R} \cdot X_{1}(x,t) \cdot Y_{2}(x,t) \cdot Z_{1}(x,t)$$
(C-33)

$$Y_{2} = \frac{1}{2 \cdot w} \left( \operatorname{erf} \frac{(w/2 + y)}{\sqrt{4 \cdot Dy \cdot \frac{t}{R}}} + \operatorname{erf} \frac{(w/2 - y)}{\sqrt{4 \cdot Dy \cdot \frac{t}{R}}} \right)$$
(C-34)

### C6.1.4. Fonte de contaminação representada por uma área

A fonte de contaminação é representada por uma área de extensão w e profundidade b (EPA, 1996):

$$C_{i} = \frac{M_{0}}{\varepsilon_{e} \cdot R} \cdot X_{1}(x,t) \cdot Y_{2}(x,t) \cdot Z_{2}(x,t)$$
(C-35)

#### C6.1.5. Fonte de contaminação representada por um ponto de centro (0, 0, z_s)

A fonte de contaminação é representada por um ponto de centro  $(0, 0, z_s)$  num aquífero de extensão lateral e profundidade infinita (EPA, 1996):

Anexo C

$$C_{i} = \frac{M_{0}}{\varepsilon_{e} \cdot R} \cdot X_{1}(x,t) \cdot Y_{1}(x,t) \cdot Z_{3}(x,t)$$
(C-36)

$$Z_{3} = \frac{1}{\sqrt{4 \cdot \pi \cdot Dz \cdot t/R}} \left( \exp \left( -\frac{(z - z_{s})^{2}}{4 \cdot \pi \cdot Dz \cdot \frac{t}{R}} \right) + \exp \left( -\frac{(z + z_{s})^{2}}{4 \cdot \pi \cdot Dz \cdot \frac{t}{R}} \right) \right)$$
(C-37)

# C6.1.6. Fonte de contaminação representada por uma linha de centro no ponto $(0, 0, z_s)$

A fonte de contaminação é representada por uma linha horizontal de largura w, de centro no ponto  $(0, 0, z_s)$  num aquífero de extensão lateral e profundidade infinita (EPA, 1996):

$$\mathbf{C}_{i} = \frac{\mathbf{M}_{0}}{\varepsilon_{e} \cdot \mathbf{R}} \cdot \mathbf{X}_{1}(\mathbf{x}, t) \cdot \mathbf{Y}_{2}(\mathbf{x}, t) \cdot \mathbf{Z}_{3}(\mathbf{x}, t)$$
(C-38)

# C6.1.7. Fonte de contaminação representada por uma área horizontal de centro no ponto (0, 0, 0)

A fonte de contaminação é representada por uma área horizontal de dimensões: w = 625 m,  $\ell$  = 425 m, com centro no ponto (0, 0, 0) num aquífero com profundidade constante igual a b = 3 m.

Se a libertação ocorre de forma contínua, proporcionalmente à quantidade de RDN que fica na fonte, isto é, uma fonte com um termo de decaimento exponencial, a quantidade total de RDN, M_{aq}, (Bq) que entra no aquífero é dada pela expressão (EPA, 1996):

$$M_{aq} = M_{in} \cdot \frac{\lambda'}{\lambda + \lambda'} \cdot e^{(-\lambda \cdot t)}$$
(C-39)

$$t = \frac{\ell \cdot R}{V}$$
(C-40)

$$\lambda' = \frac{I_r}{\theta \cdot T \cdot R}$$
(C-41)

Min: massa de RDN na fonte de contaminação, (Bq)

t: tempo de transporte, (anos)

- -

 $\lambda$ : constante de decaimento radioactivo para o RDN em estudo, (ano⁻¹)

 $\lambda'$ : constante de lixiviação para o RDN em estudo, (ano⁻¹).



Figura C-5: Fonte de contaminação representada por uma área horizontal, (EPA, 1996).

$$C_{i} = \frac{M_{0}}{\varepsilon_{e} \cdot R} \cdot X_{2}(x,t) \cdot Y_{2}(x,t) \cdot Z_{2}(x,t)$$

$$X_{2} = \frac{1}{2 \cdot \ell} \left( erf\left(\frac{(w + \ell/2) - \frac{V_{pw}}{R}}{\sqrt{4 * Dx * t/R}}\right) + erf\left(\frac{(w - \ell/2) - \frac{V_{pw}}{R}}{\sqrt{4 * Dx * t/R}}\right) \right) \cdot exp(-\lambda \cdot t)$$
(C-42)
(C-43)

Estas expressões foram introduzidas na exploração do modelo hidrológico para a estimativa da concentração no ponto de exposição. O problema pode ser enunciado da seguinte forma: cerca de M₀ (Bq) do RDN *i* são libertados para o aquífero de profundidade b (3 m), a partir de uma fonte de contaminação com dimensões¹ w = 625 m e  $\ell$  = 425 m.

Os RDN a considerar são o ²²⁶Ra com um período de semi-vida igual 1,6 x 10³ anos e constante de decaimento radioactivo igual a 0,0004729 ano⁻¹; o ²³⁸U com um período de semi-vida igual a 4,47 x 10⁹ anos e constante de decaimento radioactivo igual a 1,54 x 10⁻¹⁰ ano⁻¹; o ²³⁴U com um período de semi-vida igual a 2,45 x 10⁵ anos e constante de decaimento radioactivo igual a 2,58 x 10⁻⁶ ano⁻¹.

A velocidade da água subterrânea é igual a 54,46 m/ano e admitiu-se um valor igual a 20 m para as dispersividades longitudinal e transversal. A espessura da zona

¹ Definiu-se w = dimensão da fonte de contaminação perpendicular à direcção do fluxo e  $\ell$  = dimensão paralela à direcção do fluxo.

O ponto de exposição está localizado a 350 m do ponto de infiltração no aquífero. Os resultados da concentração na água do poço ( $C_i$ ) são expressos em Bq/m³, uma vez que X₂, Y₂ e Z₂ têm unidades m⁻¹. Na representação gráfica seguinte as unidades foram convertidas para Bq/L.



No caso anterior considerou-se  $K_d = 70 \text{ ml/g}$ , valor retirado da bibliografia (Yu, 2001). Fez-se uma simulação com  $K_d = 70 000 \text{ ml/g}$ , sendo este o valor estimado com dados do local em estudo (Exmin, 2003).



### C6.2. Estimativa do fluxo no ponto de exposição (Bq/ano)

O modelo de transporte hidrológico segundo Hung (2000) estima o fluxo de RDN que chega ao poço ( $Q_p$ ) e com este valor estima a respectiva concentração na água do poço,  $C_{wp}$  (Bq/m³), através do quociente entre este parâmetro (Bq/ano) e o fluxo de água no ponto de exposição,  $W_A$  (m³/ano). As expressões seguintes representam os parâmetros calculados necessários ao modelo de transporte subterrâneo descrito no capítulo 4. O significado de cada um destes parâmetros encontra-se descrito no capítulo 4.

$$Q_{p}(Bq/ano) = \eta \cdot Q_{0} \cdot \left(t - \frac{R \cdot L}{V}\right) \cdot e^{\left(-\frac{\lambda \cdot R \cdot L}{V}\right)}$$
(C-44)

$$C_{wp} \left( Bq/m^3 \right) = \frac{Q_p}{W_A}$$
(C-45)

$$W_{A}(m^{3}/ano) = V \cdot \varepsilon_{a} \cdot D_{a} \cdot [B + 2 \cdot L \cdot tg(\alpha/2)]$$
(C-46)

$$t_v(anos) = \frac{D_v \cdot R_v}{V_v}$$
(C-47)

$$t_{h}(anos) = \frac{L \cdot R}{V}$$
 (C-48)

$$t_t(anos) = t_v + t_h$$
 (C-49)

Página 687

Anexo C

$$R = \frac{\varepsilon_{a}}{\varepsilon_{e}} + \left(\frac{\rho_{a}}{\varepsilon_{a}}\right) \cdot K_{d(a)}$$

$$\left(\frac{P_{e}}{2} - \left(\frac{P_{e}}{2}\right) \cdot \left(1 + \frac{4 \cdot R \cdot D \cdot \lambda}{P_{e} \cdot V}\right)^{\frac{1}{2}}\right)$$
(C-50)

$$\eta = \frac{e^{\left(\begin{array}{c} \\ \\ \end{array}\right)}}{e^{\left(-\frac{R \cdot D \cdot \lambda}{V}\right)}}$$
(C-51)

$$P_{e} = \frac{V \cdot L}{d}$$
(C-52)

Q₀: fluxo de RDN que entra no aquífero, (Bq/ano)

Q_p: fluxo de RDN no ponto de exposição situado a x m do ponto onde entra Q₀.

Pretende-se estimar  $Q_p$ , ou seja, o fluxo de RDN (Bq/ano) a uma distância x da fonte de contaminação, para determinar  $C_{wp}$ , a concentração no ponto de exposição. Consideraram-se dois casos diferentes: 1.º a fonte de contaminação é representada por um plano vertical; 2.º a fonte de contaminação é representada por uma área horizontal.

#### C6.2.1. Fonte de contaminação representada por um plano vertical

A fonte de libertação é representada como sendo um plano na vertical e a libertação é instantânea para x = 0 e para t = 0 (EPA, 1996):

$$F_{i} = \frac{\left(x + V_{pw} \cdot \frac{t}{R}\right)}{4 \cdot \sqrt{D \cdot \pi \cdot \frac{t^{3}}{R}}} exp\left(-\frac{\left(x - V_{pw} \cdot \frac{t}{R}\right)^{2}}{4 \cdot D \cdot \frac{t}{R}} - \lambda \cdot t\right)$$
(C-53)

Estimou-se o fluxo de RDN no ponto de exposição (x, m) com esta expressão e a partir do resultado, obteve-se a concentração no mesmo ponto, dividindo o fluxo obtido (Bq/ano) pelo valor de  $V_{ol}$  (m³/ano) (C-14). Os resultados encontram-se nas figuras seguintes, com a representação do tempo de transporte.



Foi feita outra simulação para a estimativa do fluxo de RDN na água do poço, substituindo o fluxo de RDN libertado no aquífero ( $Q_0$ ) na equação de transporte de Hung (C-44) por F_i estimado com a expressão anterior (C-53). O tempo de simulação terá de ser superior ao tempo de transporte pois só assim haverá a presença de RDN no aquífero e posteriormente no ponto de exposição. As figuras seguintes representam os resultados desta simulação.

$$Q_{p}(Bq/ano) = \eta \cdot F_{i} \cdot \left(t - \frac{R \cdot L}{V}\right) \cdot e^{\left(-\frac{\lambda \cdot R \cdot L}{V}\right)}$$
(C-54)

$$Q_{p} = 0 \Longrightarrow t \le \frac{R \cdot L}{V}$$
(C-55)



Figura C-14: Fluxo de ²²⁶Ra (Bq/ano).



Se a libertação inicial  $M_0$  (Bq) for alterada para 2,7 x  $10^{13}$  Bq ou 3,3 x  $10^{13}$  Bq obtemos resultados de acordo com a exploração feita no capítulo 4 conforme se por observar pelas seguintes figuras.



#### C6.2.2. Fonte de contaminação representada por uma área horizontal

A fonte de contaminação é representada por uma área horizontal de dimensões: w = 625 m,  $\ell$  = 425 m e b = 3 m, centrada no aquífero, segundo a coordenada (0, 0, 0) (EPA, 1996):

$$F_{i} = \frac{1}{2 \cdot \ell \sqrt{D \cdot \pi \cdot \frac{t}{R}}} \cdot \left[ \frac{V_{pw}}{R} \cdot \sqrt{\pi \cdot D \cdot \frac{t}{R}} \cdot \left[ erf(z_{1})erf(z_{2}) \right] - \frac{D}{R} \cdot \left[ exp(-z_{1}^{2}) - exp(-z_{2}^{2}) \right] \right] \cdot exp(-\lambda \cdot t)$$
C-56

$$z_{1} = \frac{x - \frac{V_{pw}}{R} \cdot t + \frac{\ell}{2}}{\sqrt{4 \cdot D \cdot t/R}}$$
 C-57

$$z_{2} = \frac{x - \frac{V_{pw}}{R} \cdot t - \frac{\ell}{2}}{\sqrt{4 \cdot D \cdot t/R}}$$
 C-58

A concentração na água do poço, ou seja, no ponto de exposição  $C_{wp}$ , localizado a 350 m do centro da área contaminada é estimada por:

$$C_{wp} = \frac{F}{W_A}$$
(C-59)

$$W_{A} = V_{a} \cdot \varepsilon_{a} \cdot D_{a} \cdot \left[ W + 2 \cdot tg\left(\frac{\alpha}{2}\right) \cdot L \right]$$
 (C-60)

C_{wp} concentração na água do poço, (Bq/m³)

F: fluxo, (Bq/ano)

- W_A: débito total de água que aflui ao poço, (m³/ano)
- V_a: velocidade do fluxo subterrâneo, (m/ano)
- $\epsilon_a$ : porosidade do aquífero, (-)
- D_a: profundidade do poço (pode ser a profundidade máxima do aquífero), (m)
- α: ângulo de dispersão da pluma de contaminante, (rad)
- L: distância do ponto de infiltração ao poço, na direcção do fluxo subterrâneo (igual a x), (m)
- W: extensão do local contaminado, medido na direcção perpendicular ao fluxo, (m).

No exemplo anterior em vez de  $W_A$  usou-se  $V_{ol}$ , por este originar um valor mais conservativo para a concentração no ponto de exposição ( $V_{ol} = 1,028 \times 10^4 \text{ e } W_A = 5,015 \times 10^4 \text{ m}^3/\text{ano}$ ).





## C6.3. Alguns exemplos

Apesar das expressões enunciadas inicialmente para a estimativa da concentração no ponto de exposição não descreverem as condições fronteira que se verificam no local em estudo, foi feita uma simulação com base nas expressões, (C-26), (C-27), (C-31), (C-33), (C-35) e (C-36), para diferentes valores da quantidade de RDN inicial,  $M_0$  (2,7 x 10¹³ Bq e 3,3 x 10¹³, respectivamente). A representação dos resultados encontra-se nas figuras seguintes:



Figura C- 29: Resultados da simulação com a expressão (C-26).



Figura C-30: Resultados da simulação com a expressão (C-27).



Figura C-31: Resultados da simulação com a expressão (C-31).



Figura C-32: Resultados da simulação com a expressão (C-33).



Figura C-33: Resultados da simulação com a expressão (C-35).



Figura C-34: Resultados da simulação com a expressão (C-36).

# ANEXO D

# Tabelas de apoio ao modelo de transporte de radionuclídeos na água superficial

Caudal do rio, q _r (m ³ /s)	Largura do rio, B _r (m)	Profundidade, D _r (m)
0,1	3,47	0,058
0,2	4,77	0,079
0,3	5,75	0,095
0,4	6,56	0,108
0,5	7,27	0,120
0,6	7,91	0,130
0,7	8,49	0,139
0,8	9,02	0,148
0,9	9,53	0,156
1	10,0	0,160
2	13,8	0,22
3	16,6	0,27
4	18,9	0,30
5	21,0	0,34
6	22,8	0,36
7	24,5	0,39
8	26,0	0,41
9	27,5	0,44
10	28,8	0,48
20	39,7	0,63
30	47,8	0,75
40	54,6	0,85
50	60,5	0,94
60	65,8	1,02
70	70,6	1,09
80	75,1	1,16
90	79,2	1,22
100	83,2	1,28
200	114	1,74
300	138	2,09
400	157	2,37
500	174	2,62
600	190	2,84
700	204	3,05
800	216	3,24
900	229	3,41
1000	240	3,57
2000	330	4,87
3000	398	5,84
4000	454	6,64
5000	503	7,34
6000	547	7,96
7000	587	8,53
8000	624	9,05
9000	659	9,54
10000	692	10,0

	D-1: Relação entre	o caudal do rio com	a profundidade e	largura do mesmo.
--	--------------------	---------------------	------------------	-------------------

Fonte: Leopold et al. (1964).

A _{ip}	Prr	A _{ip}	P _{rr}
1 x 10 ⁻⁶	31	2	9,3
2	29,8	3	8,5
3	28,9	4	7,9
4	28,2	5	7,5
5	27,6	6	7,2
6	27,2	7	6,9
7	26,9	8	6,6
8	26,7	9	6,3
9	26,4	0,1	6,0
1 x 10 ⁻⁵	26,1	2	4,8
2	24,8	3	4,2
3	23,6	4	3,7
4	22,9	5	3,4
5	22,5	5	3,2
6	22,1	7	3,0
7	21,6	8	2,8
8	21,3	9	2,7
9	21,1	1	2,6
1 x 10 ⁻⁴	20,9	2	2,0
2	19,4	3	1,7
3	18,5	4	1,5
4	17,8	5	1,4
5	17,4	6	1,3
6	17,1	7	1,3
7	16,7	8	1,2
8	16,4	9	1,1
9	16,1	10	1,0
1 x 10 ⁻³	15,9	20	1,0
2	14,2	30	1,0
3	13,3	40	1,0
4	12,8	50	1,0
5	12,2	60	1,0
6	11,8	70	1,0
7	11,5	80	1,0
8	11,2	90	1,0
9	11,0	80	1,0
1 x 10 ⁻²	10,7	≥ 90	1,0

D-2: Factor de correcção para mistura parcial no rio,  $\mathsf{P}_{\text{rr.}}$ 

Fonte: IAEA (2001).

1	847	N
	IVI ´	Nq
	0,01	0,00028
	0,02	0,00115
	0,03	0,00237
	0,04	0,00427
	0,05	0,00640
	0,06	0,00930
	0,07	0,0122
	0,08	0,0152
	0,09	0,0205
	0,1	0,0240
	0,2	0,090
	0,3	0,167
	0,4	0,267
	0,5	0,350
	0,6	0,430
	0,7	0,544
	0,8	0,610
	0,9	0,640
	1	0,705
	2	0,910
	3	0,940
	4	0,950
	5	0,970
	6	0,980
	7	0,990
	8	0,995
	≥9	1,0

D-3: Quociente entre o coeficiente de dispersão longitudinal do estuário e do rio,  $N_q$ .

Fonte: IAEA (2001).

D-4: Factor de bioacumulação específico de cada elemento, B_p.

Elemento	Peixes (água doce) (Bq.kg ⁻¹ /Bq.L ⁻¹ )	Peixes (água salgada) (Bq.kg ⁻¹ /Bq.L ⁻¹ )
Pb	300	200
Ро	50	2000
Ra	50	500
Th	100	600
U	10	1

Fonte: IAEA (2001).

# ANEXO E

# Representação da exploração do modelo de transporte e transferência no meio aquático em diferentes condições



Figura E-1: Concentração de  226 Ra em função da distância ao ponto de descarga, x < 7 D_r e x  $\ge$  7 D_r.



Figura E-3: Concentração de  210 Pb em função da distância ao ponto de descarga, x < 7 D_r e x  $\ge$  7 D_r.



Figura E-5: Concentração de  230 Th em função da distância ao ponto de descarga, x < 7 D_r e x  $\ge$  7 D_r.



Figura E-2: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga, margem oposta.



Figura E-4: Concentração de ²¹⁰Pb em função da distância ao ponto de descarga, margem oposta.



Figura E-6: Concentração de ²³⁰Th em função da distância ao ponto de descarga, margem oposta.



Figura E-7: Concentração de  238 U em função da distância ao ponto de descarga, x < 7 D_r e x  $\ge$  7 D_r.



Figura E-9: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga,  $x < 7 D_r e x \ge 7 D_r$ ,  $C_e = 960 \text{ Bq/m}^3$ ; ribeira da Pantanha.



Figura E-11: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga, x < 7 D_r e x  $\ge$  7 D_r, C_e = 5,46 Bq/m³; rio Mondego.



Figura E-8: Concentração de ²³⁸U em função da distância ao ponto de descarga, margem oposta.



Figura E-10: Concentração de  226 Ra em função da distância ao ponto de descarga, C_e = 960 Bq/m³; ribeira da Pantanha, margem oposta.



Figura E-12: Concentração de  226 Ra em função da distância ao ponto de descarga, C_e = 5,46 Bq/m³; rio Mondego, margem oposta.



Figura E-13: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga,  $x < 7 D_r e x \ge 7 D_r$ ,  $C_e = 5470 \text{ Bq/m}^3$ ; ribeira da Pantanha.



Figura E-15: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga,  $x < 7 D_r e x \ge 7 D_r$ ,  $C_e = 31,10 \text{ Bq/m}^3$ ; rio Mondego.



Figura E-17: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga, x < 7 D_r e x  $\ge$  7 D_r, C_e = 271 Bq/m³; ribeira da Pantanha.



Figura E-14: Concentração de  226 Ra em função da distância ao ponto de descarga, C_e = 5470 Bq/m³; ribeira da Pantanha, margem oposta.



Figura E-16: Concentração de  226 Ra em função da distância ao ponto de descarga, C_e = 31,10 Bq/m³; rio Mondego, margem oposta.



Figura E-18: Concentração de Ra em função da distância ao ponto de descarga,  $C_e = 271 \text{ Bq/m}^3$ ; ribeira da Pantanha, margem oposta.



Figura E-19: Concentração de  226 Ra em função da distância ao ponto de descarga, x < 7 D_r e x  $\geq$  7 D_r, C_e = 70 Bq/m³; ribeira da Pantanha.



Figura E-21: Concentração de  $^{226}Ra$  em função da distância ao ponto de descarga, x < 7 D_r e x  $\geq$  7 D_r no estuário.



Figura E-23: Concentração de ²¹⁰Pb em função da distância ao ponto de descarga, x < 7 D_r e para x  $\ge$  7 D_r no estuário.



Figura E-20: Concentração de  226 Ra em função da distância ao ponto de descarga, C_e = 70 Bq/m³; ribeira da Pantanha, margem oposta.



Figura E-22: Concentração de ²²⁶Ra em função da distância ao ponto de descarga no estuário, margem oposta.



Figura E-24: Concentração de ²¹⁰Pb em função da distância ao ponto de descarga no estuário, margem oposta.



Figura E-25: Concentração de ²¹⁰Pb em função da distância ao ponto de descarga, x < 7  $D_r$  e para x  $\ge$  7  $D_r$  no estuário.



Figura E-26: Concentração de ²³⁰Th em função da

Concentração de Thina agua em função da distância ao ponto de descarga, margem oposta.

0.1





Figura E-27: Concentração de  238 U em função da distância ao ponto de descarga, x < 7 D_r e para x  $\ge$  7 D_r no estuário.

Figura E-28: Concentração de ²³⁸U em função da distância ao ponto de descarga no estuário, margem oposta.

A diminuição brusca da concentração na água superficial que se verifica nas seguintes figuras: Figura E-9; Figura E-11; Figura E-13; Figura E-15; Figura E-17; Figura E-21; Figura E-23; Figura E-25 e Figura E-27 é provocada pela mistura completa na vertical que ocorre para valores da distância do ponto de descarga:  $x = 7.D_r$ : antes de chegar a este ponto a concentração na água superficial é constante e igual à concentração do efluente descarregado. Quando atinge este ponto, ocorre a mistura e, consequentemente, a diluição o que faz diminuir bruscamente a concentração.

# ANEXO F

# Classificação e definição

# dos tecidos vegetais

## F1. Tecidos fundamentais

<u>PARÊNQUIMA</u>: formam a grande maioria do corpo da planta e têm uma forma mais ou menos cilíndrica. Conhecem-se vários tipos de parênquima cuja classificação está relacionada com a função que desempenham (ex. clorofilino, de reserva, etc.) (Rocha, 2001).

<u>COLÊNQUIMA</u>: encontra-se nas regiões periféricas dos órgãos, por vezes imediatamente subjacente à epiderme. Podem distinguir-se vários tipos de colênquima, de acordo com o tipo de espessamento das paredes, por celulose e por substâncias pécticas, (angular, laminar, etc.). As células do colênquima são vivas, alongadas, de forma poliédrica em corte transversal, funcionam como elementos de suporte em órgãos jovens e em crescimento rápido (Rocha, 2001).

<u>ESCLERÊNQUIMA</u>: tecido de suporte complexo, que devido a conter uma parede secundária não elástica apenas pode ser encontrado em locais onde terminou o crescimento. A parede secundária destas células é composta por lenhina, um composto laminar formado por desidratação de glícidos, praticamente imune à degradação anaeróbia (por microrganismos decompositores) e de decomposição extremamente lenta em presença de oxigénio, o que lhe confere uma elevada resistência (Rocha, 2001).

## F2. Tecidos vasculares

<u>XILEMA</u>: tecido de transporte de água e sais minerais através do corpo das plantas. Nas traqueófitas não angiospérmicas, o xilema apenas apresenta um tipo de célula transportadora (traqueídos), sendo um tecido menos eficiente. Podem ser reconhecidos 4 tipos de células no xilema de uma angiospérmica: **os traqueídos, os elementos dos vasos, as fibras xilémicas e as células parenquimatosas** (Rocha, 2001).

As células denominadas de traqueídos são células relativamente longas e estreitas, com parede secundária lenhificada, o que as torna células mortas. As suas extremidades transversais são estreitas e cobertas por uma fina membrana, enquanto as paredes laterais são espessas e apresentam numerosos poros, locais onde não existe parede secundária, permitindo a passagem de substâncias. Estas células alinham-se topo a topo, de modo a facilitar o movimento de água no seu interior (Rocha, 2001).

Os **elementos dos vasos** são células mais curtas, muito mais eficientes na deslocação de água, mas menos eficientes como estrutura de suporte. Podem apresentar, ainda um importante problema: estão muito mais sujeitos à formação de bolhas de ar que podem bloquear a passagem de água para as zonas superiores da planta (Rocha, 2001).

As **fibras xilémicas** surgem como resultado da pouca capacidade de suporte dos elementos dos vasos. São fibras de esclerênquima que intermeiam as células transportadoras do xilema (Rocha, 2001).

As **células parenquimatosas** são células com função de reserva e controlo do movimento de soluções no tecido vascular (Rocha, 2001).

<u>FLOEMA</u>: tecido complexo de transporte de soluções orgânicas, podendo igualmente ser primário ou secundário, como o xilema, e apresenta igualmente 4 tipos de células, análogas às do xilema: **elementos dos tubos crivosos, células companheiras, fibras floémicas e as células parenquimatosas** (Rocha, 2001).

Os **elementos dos tubos crivosos** com as suas paredes transversais formam as placas crivosas. Estas células estão sempre associadas a células companheiras, sem as quais morrem (Rocha, 2001).

As **células companheiras** são células vivas e pequenas, de citoplasma activo e denso, que controlam o movimento de substâncias nos elementos dos tubos crivosos.

As **fibras floémicas** são em tudo semelhantes às fibras xilémicas, têm função de sustentação. São as únicas células mortas do floema (Rocha, 2001).

As **células parenquimatosas** são células vivas, com função, tal como as do xilema, de reserva de nutrientes para os restantes componentes do floema (Rocha, 2001).

### F3. Tecidos dérmicos

<u>EPIDERME</u>: tecido primário simples formado pela protoderme, é constituído por uma única camada de células que recobrem todo o corpo da planta. Geralmente, estas células apresentam paredes finas, embora a parede externa seja um pouco mais espessa que as restantes. No entanto, existem algumas situações (agulhas dos pinheiros, por exemplo) em que as paredes são relativamente espessas. Nas epidermes aéreas surge uma cutícula, uma camada não celular de substâncias lipídicas segregada pelas células da epiderme e que apresenta propriedades impermeabilizantes. As células epidérmicas são sempre vivas e arrumadas compactamente, sem espaços entre si, com capacidade de divisão. Os estomas surgem nas epidermes aéreas, locais que permitem as trocas gasosas e cuja abertura é regulada por células especializadas (células guarda). É comuns as epidermes apresentarem pêlos ou tricomas. Em regra, os pêlos da raiz são simples expansões das células epidérmicas, enquanto os pêlos das folhas e caules são multicelulares. A função dos pêlos depende da sua localização no corpo da planta, nas raízes aumentam a área de absorção da solução do solo enquanto em órgãos aéreos evitam a perda excessiva de água, protegem contra insectos, etc. (Rocha, 2001).

<u>ENDODERME</u>: formada por uma única camada de células vivas, a endoderme envolve a zona central das raízes, separando o córtex (é a sua última camada de células) da medula destes órgãos. Tem como função proteger a medula, que contém os tecidos condutores, de substâncias nocivas absorvidas ou que tenham penetrado no córtex da raiz. As suas células apresentam **espessamentos de suberina ou lenhina** em alguns locais da parede celular, permitindo ainda a passagem de substâncias (Rocha, 2001).

Os espessamentos de suberina são designados por espessamentos em U e estão presentes apenas em angiospérmicas monocotiledóneas, apresentam 3 paredes laterais espessadas com suberina e a parede não espessada virada para o córtex. Este espessamento, apesar de não ser total, impede a passagem de substâncias pela célula. No entanto, existem a espaços regulares, as chamadas células janela, células de passagem, não espessadas, que permitem a passagem em direcção à medula (Rocha, 2001).

Os espessamentos de lenhinha são denominados por pontuações ou bandas de **Caspary** e estão presentes apenas em angiospérmicas dicotiledóneas. Este espessamento forma uma banda em volta das células (Rocha, 2001).

<u>SÚBER</u>: tecido secundário, muito leve e elástico apenas presente em caules lenhosos. As células do súber são mortas devido à deposição na parede secundária de suberina. A suberina é uma substância lipídica, tornando estas células impermeáveis aos gases e à água. Ao contrário da epiderme, o súber é um tecido com diversas camadas de células, podendo atingir espessuras importantes, como no caso dos carvalhos ou dos sobreiros, onde forma a cortiça. Quando se forma, o súber substitui a epiderme nas suas funções de protecção, impedindo a perda de água e protegendo o frágil floema. Dado que se trata de um tecido impermeável, é necessário que estas camadas de células sejam interrompidas a espaços regulares para possibilitar as trocas gasosas
com o meio. Essas zonas de interrupção são denominadas por lentículas (Rocha, 2001).

# ANEXO G

# O modelo matemático da transferência

# solo-planta

### G1. Introdução

A transferência dos radionuclídeos (RDN) durante o ciclo de crescimento da flora para diferentes cenários de solos e de vegetação, pode envolver diversos mecanismos que incluem o equilíbrio sólido/líquido dos RDN na solução do solo e a fisiologia das plantas na absorção.

A absorção de cada RDN é interpretada como se ocorresse em simultâneo com a absorção do seu nutriente análogo (K e Ca, respectivamente para o Cs e para o Sr) uma vez que a concentração do nutriente análogo na solução do solo vai afectar a concentração do RDN na solução do solo, assim como a afinidade da planta para a sua absorção. Considera-se existir uma dependência do processo relativamente à absorção pelas raízes em que se assume uma trajectória comum para o RDN e para o nutriente análogo, em função da necessidade deste para o crescimento da planta.

Esta abordagem para descrever a absorção dos RDN (Cs e Sr) do solo para as plantas, por competição com os nutrientes análogos (K e Ca), apresenta efectivamente algumas vantagens:

- A actividade dos RDN pode ser prevista pela concentração do nutriente análogo na solução do solo e pela absorção do nutriente análogo necessário para o crescimento da planta;
- Os efeitos das condições climáticas ou de outros factores que afectam o desenvolvimento da cultura, podem ser quantificados através dos seus efeitos na exigência dos nutrientes para o crescimento da planta;
- O suporte teórico da fisiologia dos transportadores de nutrientes pode ser extrapolado para a absorção dos RDN que têm função de nutrição.

### G2. Processos que ocorrem na transferência

#### G2.1. Os RDN na solução do solo em equilíbrio

A concentração do RDN na solução do solo pode ser estimada a partir dos coeficientes de distribuição sólido/líquido (K_d) através das seguintes relações empíricas (Brechignac et al., 1999):

$$K_{d}(Cs) = \frac{RIP}{[K^{+}] + [NH_{4}^{+}]}$$
(G-1)

$$K_{d}(Sr) = \frac{CEC}{[Ca^{2+}] + [Mg_{4}^{2+}]}$$
(G-2)

Os parâmetros RIP e CEC são constantes específicas para cada solo, enquanto que [K⁺] e [Ca²⁺] podem variar com o tempo em função da sua absorção pelas raízes. Para simplificar assume-se que [NH₄⁺] e [Mg²⁺] são constantes devido à sua complexa variação durante o ciclo de cultura. O gradiente da concentração dos nutrientes na solução do solo forma-se na envolvente das raízes como consequência da absorção por estas.

Poderá haver diferentes concentrações de [K] e [Ca] simultaneamente no mesmo solo, ao longo do percurso no solo até à absorção pelas raízes, podendo surgir dúvidas no valor da concentração a usar para o cálculo de K_d. Geralmente, considerase que a concentração efectiva do catião a usar para calcular K_d é a concentração média na zona de depleção, sendo este um parâmetro intermédio usado no cálculo da concentração na superfície da raiz. Apesar de ser uma abordagem técnica bastante simples, justifica-se e é aceitável, porque a concentração média na zona de depleção é representativa de um grande volume da totalidade do solo, e especialmente, da envolvente da raiz.

#### G2.2. A difusão de iões no solo

O balanço entre a difusão de iões, o fluxo de massa na direcção das raízes e a absorção de iões na superfície das raízes cria um gradiente de concentração à volta das raízes que pode ser calculado por diversas abordagens. A mais vulgarmente implementada baseia-se na abordagem analítica desenvolvida para alguns modelos de absorção pelas raízes (Nye & Tinker, 1977). O mesmo método é usado, com diferentes parâmetros, para os nutrientes análogos e para os RDN.

#### G2.3. A absorção dos RDN e dos nutrientes análogos

Considera-se que a absorção do Cs ocorre através dos mesmos mecanismos descritos para a absorção de K, constituído por dois transportadores diferentes. Os transportadores podem actuar a dois níveis consoante a concentração de K no exterior (Brechignac et al., 1999):

 Nas concentrações à escala milimolar, o mecanismo predominante é um sistema de baixa afinidade que consiste num canal para a difusão facilitada;  Nas concentrações à escala macromolar, prevalece o mecanismo de elevada afinidade que consiste num transportador activo que acumula K contra o gradiente electroquímico.

Considera-se que ocorrem ambos os sistemas em que o modelo adopta um ou outro consoante a disponibilidade de K. No entanto, devido aos dados grosseiros de campo, esta distinção é desnecessária e pode ser resumida para toda a gama da escala da concentração, através da cinética de *Michaelis Menten* (Brechignac et al., 1999), (Barak & Spalding, 2000):

$$J_{r}(K) = \frac{I_{max} \cdot K}{K_{m} + K}$$
(G-3)

em que K representa a concentração de potássio na solução do solo,  $K_m$  é uma constante e  $I_{max}$  é iterativamente ajustado em cada passo até igualar o K absorvido (calculado) até ao K necessário pela planta.

A absorção do Cs pelo mesmo transportador de K é descrita pelo mesmo  $I_{max}$  e  $K_m$  mas com uma fórmula modificada considerando diferentes selectividades do transportador entre os dois iões, assim como, a inibição competitiva pelo K (Brechignac et al., 1999):

$$J_{r}(Cs) = \frac{I_{max} \cdot SeI_{Cs/k} \cdot Cs}{K_{m} + I_{K/Cs} \cdot K}$$
(G-4)

em que Sel_{K/Cs} é o coeficiente de selectividade e o  $I_{K/Cs}$  é o coeficiente para a inibição competitiva.

Assume-se que a absorção do Sr ocorre pela mesma trajectória do Ca, através de um fluxo de massa com transpiração, excepto quando este mecanismo não é capaz de fornecer o fluxo de Ca necessário para o crescimento da planta, caso em que será simulado um mecanismo activo¹ de acumulação de Ca. A absorção activa de Ca é descrita por (Brechignac et al., 1999):

$$J_{r}(Ca) = \frac{I_{max} \cdot Ca}{K_{m} + Ca}$$
(G-5)

$$J_{r}(Sr) = \frac{I_{max} \cdot SeI_{Sr/Ca} \cdot Sr}{K_{m} + I_{Ca/Sr} \cdot Ca}$$
(G-6)

¹ Movimento das moléculas contra o gradiente de concentração químico e que necessita da entrada de energia e de proteínas.

### G3. Pressuposto da absorção dos RDN com os nutrientes

A abordagem baseia-se nos seguintes pressupostos:

- Os RDN (Cs e Sr) entram nas raízes através dos mesmos processos dos nutrientes análogos (K e Ca, respectivamente). Desta forma, a absorção dos RDN pelas raízes depende da simulação dos sistemas de absorção das plantas para os nutrientes análogos.
- A capacidade do sistema de absorção pelas raízes para K e Ca pode ser estimada a partir da necessidade do seu consumo para o crescimento da planta e a sua disponibilidade no solo.
- A concentração média de Cs e de Sr na zona de depleção na envolvente das raízes depende dos coeficientes de partilha sólido/líquido (K_d) que são determinados a partir de um parâmetro específico para cada solo (RIP radiocesium interception potential ou CEC cation exchange capacity) e a concentração média de catiões, que variam em função da absorção das raízes.
- A concentração do Cs e Sr na solução do solo na superfície das raízes pode ser calculada assumindo um estado estacionário nos perfis de concentração radial, pelo método analítico descrito por Nye & Tinkes (1977).

É aceitável que o Cs entre nas plantas principalmente através dos sistemas transportadores de potássio e de canais regulados pela concentração externa de potássio. Aparentemente, os transportadores de K apresentam baixa descriminação relativamente ao Cs, enquanto que os canais apresentam uma elevada descriminação a este RDN, o que leva a concluir que o K é um dos factores mais importantes que influenciam a absorção de Cs pelas plantas. A relação entre a concentração externa de potássio e a sua absorção pode ser descrita por uma função potência negativa e tem sido usada como descritor dos modelos de factores de transferência solo/planta para diferentes combinações de solos e de plantas.

#### G3.1. As limitações da planta

Em muitos casos é válida a dependência da absorção do RDN do sistema de absorção dos nutrientes. No entanto, a previsão da necessidade dos nutrientes pode ser mais complexa devido à existência de outras fontes de nutrientes. A partilha dos nutrientes e dos RDN pelos vários órgãos das plantas e a capacidade de os retirar da biomassa são processos relevantes para determinar a sua perda da planta.

# G3.2. As limitações do solo

No caso de solos minerais, a concentração de RDN na superfície das raízes foi simplificada para apenas depender de dois processos distintos: equilíbrio sólido/líquido e a migração radial. Na prática, a situação ideal seria uma interacção entre ambos os processos ao longo da trajectória radial, o que é difícil de simular com os conhecimentos actuais. Assume-se que a distribuição sólido/líquido responde imediatamente a variações na concentração de catiões na zona de depleção. Isto pode levar a sobrestimar a biodisponibilidade do RDN se a resposta do equilíbrio sólido/líquido para a concentração do catião for mais lenta do que o progresso da depleção.

# G3.3. Os parâmetros necessários

Para aplicar a abordagem da absorção dos RDN pelos mesmos mecanismos dos nutrientes análogos, é necessário conhecer alguns parâmetros que vão permitir estimar a absorção. No caso do solo e dependendo do radionuclídeo envolvido, os parâmetros necessários são os seguintes (Brechignac et al., 1999):

Cs	Sr
K _d para K	K _d para Ca
RIP	CEC
K permutável	Ca permutável
Cs total no solo (Bq/kg)	Sr total no solo (Bq/kg)
NH4 ⁺ na solução do solo	Mg na solução do solo

Tabela G-1: Parâmetros necessários para a estimativa da absorção pelas plantas.

Relativamente a todos os radionuclídeos os parâmetros necessários são:

- a espessura da camada de solo;
- a distribuição nas raízes;
- a densidade do solo;
- a variação temporal da água no solo.

No caso da planta, os parâmetros necessários são os seguintes:

- raio médio da raiz;
- dados particulares da cultura:
  - o dias após semear;
  - o peso da biomassa aérea, (g/m²), peso húmido

- o transpiração, (mm/d)
- o concentração do nutriente análogo na biomassa, (%), peso húmido
- o biomassa das raízes, (g/m²), peso húmido.

#### G4. Discussão

Em alguns resultados da aplicação desta abordagem, verificou-se que a concentração de RDN existente nas raízes era praticamente igual à concentração no solo, logo a difusão dos RDN do solo para as raízes não parece ser a chave para determinar a absorção dos RDN pelas plantas (Brechignac et al., 1999).

As principais propriedades do solo que vão afectar a transferência solo-planta do Cs são RIP (*radiocesium interception potencial*) e a concentração de K. O primeiro destes factores é uma medida da capacidade do solo para adsorver o radiocésio o que está intimamente relacionado com a textura do solo. No caso do segundo factor, afecta a transferência solo-planta, uma vez que o quociente K_{permutável}/K em solução permite uma estimativa da capacidade do solo para fornecer K às culturas.

A transferência solo-planta do Sr é dependente da capacidade de troca iónica CEC (*cation exchange capacity*) do solo e da concentração dos catiões divalentes na solução do solo, que estão, por sua vez, relacionados com o  $K_d$ (Ca). Uma boa estimativa do Sr na solução do solo deriva do  $K_d$ (Sr), calculado para o CEC, e do Ca na solução do solo obtido a partir do Ca permutável e do  $K_d$ (Ca).

Em resumo, o tipo de solo afecta o factor de transferência solo-planta dos RDN em dois aspectos importantes:

- O tipo de solo determina o equilíbrio sólido/líquido do RDN. Os parâmetros RIP, K_{permutável} e K_d(K) caracterizam a quantidade de Cs na solução do solo, enquanto que os parâmetros CEC, Ca permutável e o K_d(Cs) caracterizam a quantidade de Sr na solução do solo;
- ii) As diferentes produtividades do solo originam diferenças na produção das culturas e em consequência diferenças na absorção do Cs pelas plantas (através da depleção do K no solo) e do Sr (fluxo de massa pela transpiração da planta).

# ANEXO H

# Transferência dos RDN para a vegetação (alguns conceitos)

# H1. Introdução

A transferência dos radionuclídeos (RDN) para a vegetação pode ter origem em dois compartimentos distintos: a atmosfera e o solo. No 1.º caso, a transferência envolve processos como a deposição (caracterizada pela velocidade de deposição), a intercepção (descrita pela fracção de intercepção como a fracção da actividade que se deposita interceptada pela vegetação) e a retenção (traduzida pela constante de semivida da meteoração sendo o tempo necessário para a concentração na superfície da vegetação ser reduzida a metade após a deposição). Os três parâmetros são sensíveis ao tamanho da partícula, às características químicas do material que se deposita, às características da vegetação e da superfície do solo e às condições meteorológicas.

# H2. Deposição, intercepção, retenção

Os processos de deposição, intercepção e retenção também se aplicam aos produtos agrícolas. No caso da deposição há que distinguir a deposição por via seca e a deposição por via húmida. Em qualquer dos casos, apenas uma parte dos RDN são interceptados e/ou retidos na vegetação.

O tipo de superfície ou de vegetação é um factor importante porque quanto mais rugosa for a superfície maior é a deposição. A rugosidade aumenta segundo a seguinte ordem: superfície lisa, superfície rugosa, pequenas culturas, grandes culturas e florestas. Para grandes culturas, geralmente, o estado de crescimento é dado pelo índice de área foliar (IAF) definido como a relação funcional entre a área foliar e a área de terreno ocupada pela cultura (m².m⁻²).

# H2.1. Deposição

Este parâmetro é directamente dependente da velocidade de deposição, sendo muito difícil obter estimativas fiáveis *in situ*, especialmente se a deposição ocorre durante períodos muito longos, por via seca ou por via húmida. Tipicamente, os valores usados para a velocidade de deposição variam de 0,001 a 0,005 m/s para partículas pequenas; 0,01 m/s para gases reactivos e cerca de 0,0001 m/s para gases não reactivos. A solubilidade da maioria dos RDN que se depositam é baixa.

### H2.2. Intercepção

A intercepção varia com o índice de área foliar, a composição da espécie da planta, a morfologia e as características da rugosidade da superfície da vegetação. Chadwick & Chamberlain (1970) propuseram a seguinte expressão para retenção inicial pela vegetação:

$$r = 1 - e^{-\mu \cdot W}$$
 (H-1)

em que,

- $\mu$ : coeficiente de absorção, (m²/kg)
- W: densidade da vegetação, (kg/m²).

Os mesmos autores atribuíram um valor médio para  $\mu$  igual a 2,3 m²/kg. A intercepção para a deposição por via húmida (f_w) é dada pela expressão (Watkins, 1990):

$$f_{w} = \frac{IAF \cdot k_{1} \left(1 - e^{\left(-\frac{\ln 2}{3 \cdot k_{1}} \cdot R\right)}\right)}{P_{r}}$$
(H-2)

IAF: índice de área foliar (-)

P_r: precipitação, (mm)

k₁: coeficiente de retenção, dependente da planta e do RDN (mm).

#### H2.3. Meteoração

A meteoração vai quantificar os RDN retidos na vegetação. O tempo de semivida da meteoração (t_w) representa o tempo necessário para que a contaminação depositada originalmente seja reduzida a metade. Os valores descritos na bibliografia para este parâmetro variam de 12 a 17 dias. Para obter estimativas de t_w *in situ* são necessários dados do crescimento da vegetação bem como da precipitação após a intercepção inicial. É bastante difícil descrever modelos para a retenção devido aos efeitos pouco conhecidos da absorção foliar e a translocação ou absorção pelas raízes.

### H3. Movimento no solo

O comportamento dos RDN no solo e a sua posterior remoção reflecte as características físico-químicas do RDN, as propriedades do solo, o tipo de vegetação, a hidrologia e a geologia. Os modelos para descrever o movimento dos RDN, geralmente bastante simples e empíricos, podem ter por base a simulação com a equação de difusão, sendo a forma mais simples de descrever a conservação de massa (Kirchman et al., 1993), (Watkins, 1990):

$$\frac{\partial S}{\partial t} + \frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x} - V \frac{\partial C}{\partial x} + S_t - \lambda C$$
(H-3)

- C: concentração na solução
- S: concentração na fase sólida
- t: tempo
- x: distância na vertical
- V: velocidade intersticial da solução
- D: coeficiente de difusão aparente
- St: termo da fonte que descreve os processos de transformação dos RDN (além da adsorção e da desorção)
- $\lambda$ : cinética de 1.^a ordem que representa o decaimento radioactivo do RDN.

Os processos de transformação dos RDN no solo podem ser descritos esquematicamente pela Figura H-1.

Os RDN presentes nas partículas originalmente depositadas, irreversivelmente sorvidas às partículas do solo ou presentes na permuta iónica das partículas do solo, são sujeitas aos processos envolvidos na migração das partículas. Os RDN presentes na solução do solo como complexos orgânicos, são sujeitos aos processos que envolvem o transporte em solução. Os processos mais relevantes envolvidos no movimento dos RDN no solo são a sorção, a ressuspensão, o transporte de massa e a lixiviação. Na secção seguinte é apresentada uma descrição em detalhe de cada um destes processos.

#### H3.1. Sorção

O potencial para o transporte de um RDN através do perfil do solo é determinado pela sua disponibilidade química e biológica. Na falta de informação acerca da extractibilidade química, a abordagem mais comum tem sido usar o

coeficiente de distribuição K_d, definido como o quociente entre a concentração de RDN na fase sólida (Bq/g peso seco) para a concentração na fase em solução (Bq/ml). Este parâmetro é sensível a vários factores, nomeadamente: as características químicas do RDN, as propriedades químicas e físicas do solo, os métodos usados na sua determinação e o intervalo de variação da concentração na solução.

Normalmente, a aplicação deste parâmetro é ambígua pelo facto de que a fracção solúvel de um RDN no solo, disponível para o transporte através do fluxo de massa, não é necessariamente a fracção biologicamente disponível. Contudo, a determinação do K_d para alguns RDN em condições comparáveis permite deduzir algumas conclusões gerais acerca do comportamento de outros RDN no ambiente. Os RDN com elevados K_d geralmente são pouco móveis tendo um elevado potencial para a ressuspensão. Por outro lado, os RDN com baixo K_d são bastante móveis e têm baixo potencial para a ressuspensão.

#### H3.2. Ressuspensão

A ressuspensão dos RDN ligados às partículas de solo constitui uma perda do sistema bem como uma forma de contaminação da superfície da vegetação. A ressuspensão tem sido descrita através de um factor de ressuspensão (R_e) definido como o quociente entre a concentração de RDN no ar (Bq/m³) a concentração na superfície do solo (Bq/m²).

#### H3.3. Transporte pela massa

Para os RDN fixos às partículas do solo e desta forma indisponíveis para a lixiviação, a redistribuição no perfil do solo será dominada pelo transporte de massa. Este transporte também pode ocorrer por mecanismos físicos, isto é, o movimento das partículas do solo através dos macroporos.

#### H3.4. Lixiviação

As perdas no perfil do solo por lixiviação são difíceis de quantificar. Para solos homogéneos, a abordagem mais geral quantifica a perda através do coeficiente de lixiviação no solo ( $L_i$ , s⁻¹) definida por:

Anexo H

(H-4)

$$L_{i} = \frac{V_{w}}{d_{s}} \left[ 1 + \frac{\rho \cdot K_{d}}{\theta} \right]$$

- V_w: velocidade de percolação da água, (m/s)
- d_s: profundidade do solo, (m)
- K_d: coeficiente de distribuição, (cm³/g)
- $\rho$ : densidade do solo, (g/cm³)
- θ: conteúdo de água no solo (-).

Para aplicar esta equação é necessário definir os parâmetros V_w e K_d. Para o primeiro parâmetro a sua definição terá de ser feita no contexto de um modelo hidrológico. Para o segundo, uma vez que os RDN podem existir no solo em mais do que uma espécie química, é necessário definir um K_d para cada espécie. Apesar da troca iónica ser essencialmente um mecanismo de absorção, podem igualmente ocorrer, para alguns RDN e tipos de solo, outros mecanismos de sorção ou de fixação.

Para solos não homogéneos, com diferentes horizontes bem como diferentes características físicas, químicas e biológicas, são necessários modelos mais complexos, modelos multicompartimentais, com transferências entre os compartimentos controladas por cinéticas de 1.ª ordem (Kirchman et al., 1993).

# H4. Sorção e distribuição nas plantas

Os RDN podem entrar nas plantas por dois mecanismos diferentes: absorção foliar e absorção pelas raízes. A translocação tem sido apenas referida em termos de contaminação foliar, através do factor de translocação definido como a proporção da deposição na superfície, subsequentemente transferida para a fracção comestível.

#### H4.1. Absorção foliar

A absorção foliar de RDN solúveis não é muito referenciada na bibliografia: os processos envolvidos e os esperados para os diferentes RDN não são muito claros.

Watkins (1990), num estudo acerca da absorção e translocação dos RDN em solução, descreve que a absorção pode ocorrer através do estoma ou da cutícula. A penetração de soluções aquosas através do estoma envolve vários mecanismos mas os factores principais são a tensão superficial da solução, o ângulo de contacto (molhabilidade) e a morfologia do poro. A penetração cuticular é determinada pela

morfologia da superfície e pela composição química da cutícula. Quanto mais tempo o contaminante permanecer na cutícula, maior a probabilidade de ser absorvido.

#### H4.2. Absorção pelas raízes

A absorção das raízes vai ser influenciada quer pelos factores da planta quer pelos factores do solo. Existe alguma informação disponível acerca da capacidade das raízes de diferentes espécies de plantas absorverem diferentes RDN da solução, obtida através de condições experimentais bem controladas. No entanto, este tipo de informação não pode ser extrapolada devido à falta de conhecimento entre as fracções não disponíveis e a disponibilidade da planta no solo. Por outro lado, a absorção nem sempre tem por base uma teoria física ou química. Em muitos casos, a absorção pode ser dependente de factores biológicos tais como a presença ou a ausência de microorganismos e a libertação e a absorção de moléculas (transportadoras) à superfície das raízes.

Geralmente, a absorção pelas raízes é quantificada através do factor de transferência (FT) definido como o quociente entre a concentração do RDN na planta (Bq/kg peso seco) e a concentração de RDN no solo a determinada profundidade (Bq/kg, peso seco). As características principais do solo que afectam o FT são o pH, a capacidade de troca iónica, a quantidade de matéria orgânica e a composição, as condições climáticas e de crescimento, diferentes RDN e formas de combinação. No entanto, muitos dos dados publicados são difíceis de interpretar sem informações sobre o estado de crescimento e a distribuição da biomassa da planta em questão, das características químicas e físicas do solo, e pormenores acerca da distribuição dos RDN em profundidade.

A espessura da camada de solo deve ser tida em conta, devendo ser considerada a espessura da camada das raízes. Uma vez que esta camada é variável, é recomendado uma espessura de 0-10 cm para a erva (pasto) e 0-20 cm para as restantes espécies de plantas (IUR, 1982). Se a contaminação é bastante superficial, esta convenção não é aplicável (Kirchman et al., 1993).

Apesar da estimativa dos FT ser baseada numa equação bastante simples com dados empíricos, a sua variabilidade acaba por ser uma limitação à aplicação deste factor. Na bibliografia encontram-se vários valores de FT para o mesmo RDN. A sua variabilidade está relacionada com o local e com a espécie de planta. Os factores responsáveis pela variabilidade podem ser agrupados em:

- i) o contributo experimental
- ii) a fisiologia das plantas
- iii) e os factores físico-químicos que controlam a distribuição dos RDN entre a fase sólida do solo e a solução do solo.

No que se refere ao plano experimental, as plantas consideradas crescem em condições ambientais diferentes o que leva a que os dados não possam ser comparados. As plantas desenvolvidas em condições controladas (estufas) apresentam diferentes morfologias das plantas que crescem em ambientes espontâneos, o que influencia a absorção de nutrientes e o seu desenvolvimento.

A falta de condições padronizadas na medição do factor de transferência soloplanta (FT) levou a *International Union of Radioecology* (IUR, 1982) a estabelecer condições específicas para a estimativa dos FT, segundo as condições experimentais e o tipo de planta, que resultou numa compilação dos valores deste parâmetro agrupados segundo as condições padrão.

Quanto à fisiologia das plantas e aos factores físico-químicos que regulam os processos de absorção dos RDN entre a fase sólida do solo e a solução do solo, há que ter em atenção que a absorção das raízes é regulada por diversos factores, mas essencialmente pela carência, suficiência ou excesso do nível de nutrientes ou de RDN presentes na solução do solo, seguindo-se as necessidades da planta e finalmente as condições do solo que fazem com que o elemento esteja disponível, absorvido ou fixo ao sistema do solo. Como consequência, é muito difícil generalizar, uma vez que diferentes espécies reagem de forma diferente em condições similares. As plantas da mesma espécie têm diferentes débitos de absorção, uma vez que as características do solo e a disponibilidade dos nutrientes (e de RDN) podem não ser iguais. Obviamente, que isto não se aplica para a absorção dos RDN, tal como o Pu e outros actinídeos, que não têm uma função na fisiologia da planta e portanto não competem com outros elementos na nutrição da planta.

Os factores de transferência são considerados como uma ferramenta importante de aproximação dos fluxos dentro do ecossistema considerado. No entanto, uma outra abordagem pode ser usada par estimar a absorção dos RDN pelas raízes através de modelos de transferência solo-planta desenvolvidos com base nas características do solo. O modelo de Absalom et al. (1999) foi desenvolvido em função do conteúdo em argila, matéria orgânica, pH e K trocável, do solo. Alguns modelos similares foram desenvolvidos com variações dos objectivos e diferentes aplicações, no entanto, todos se referem ao Cs e ao Sr e, em particular ao local de Chernobyl.

Para ultrapassar este desfasamento entre os dados com origem em diferentes condições experimentais, foram definidas condições padrão entre os estudos experimentais e os dados resultantes destes, relativamente aos parâmetros medidos no solo (IUR, 1982). A maior dificuldade de aplicação do FT deve-se ao facto do seu conceito ser baseado na concentração total de RDN no solo. Para muitos RDN a concentração total no solo não tem qualquer relação com a posterior absorção pelas raízes, uma vez que a concentração total não é a concentração disponível para a absorção pelas raízes. Adicionalmente, os FT (assim como o K_d) são definidos para as condições no equilíbrio, o que significa mais uma dificuldade de aplicação deste parâmetro.

Uma abordagem possível para quantificar a absorção pelas raízes, envolve a análise da cinética da solução no transporte pelas raízes o que implica ter disponível bastante informação acerca da composição química da solução e das raízes. Uma vez no interior da planta, a retenção do RDN depende da relativa distribuição e da variedade dos parâmetros fisiológicos da planta.

Para alguns RDN (Cs e Sr) uma abordagem alternativa consiste na semelhança do seu comportamento com alguns nutrientes, K e Ca, com base na hipótese de que a composição mineral dos produtos agrícolas é bastante constante e que e o conteúdo dos RDN na vegetação pode ser calculado pelo respectivo quociente entre o Cs/K e Sr/Ca para os solo. Esta abordagem já foi descrita anexo G.

# H4.3. Translocação

Após a absorção pelas raízes ou pelas folhas, os RDN podem ser translocados em ambos os sentidos (ascendente ou descendente) a partir do ponto de entrada. Na bibliografia verifica-se que se tem dado muita ênfase à translocação para as partes comestíveis da planta, não considerando que os RDN podem não ser translocados para os órgãos de interesse podendo sofrer, alternativamente, transformações químicas que podem ter um profundo efeito no comportamento subsequente dos RDN. Nestas circunstâncias, a absorção das raízes e a translocação no sentido descendente podem afectar a distribuição dos RDN no solo, como foi sugerido para o plutónio (Coughtrey et al., 1983, 1985).

# H5. Alguns valores dos FT

Os factores de concentração que a seguir se apresentam reflectem apenas a absorção dos RDN pelas raízes e excluem qualquer efeito resultante da deposição na superfície das plantas, da ressuspensão, da deposição e da queda das folhas contaminadas. O tipo de plantas ou vegetação, foram divididos em dois grandes grupos, nomeadamente, o grupo de produtos que vai servir de ração para os animais e o grupo de produtos que vai servir de alimento para os humanos. Neste último, podemos ainda subagrupar os seguintes produtos agrícolas:

- i) grãos, milho, trigo, cevada, sementes de girassóis, etc.
- ii) vegetais com folhas, raízes de vegetais e frutos.

Considerou-se ainda um caso particular de contaminação através da irrigação com água contaminada que poderá ter origem num poço contaminado existente na proximidade do local de contaminação. As tabelas seguintes contém valores para os FT_(solo/planta) para o U, Ra, e o Pb obtidos em produtos irrigados com água contaminada. Os valores apresentados foram determinados com base na seguinte metodologia:

- i) concentração de 1 Bg.L⁻¹ na água de irrigação para cada RDN;
- ii) a água de irrigação não foi submetida a qualquer tratamento prévio;
- iii) todos os produtos foram igualmente irrigados com água contaminada;
- iv) foi usado um débito de irrigação de 750 L.ano⁻¹.m⁻²;
- v) a deposição de RDN nas folhas através da água de irrigação (por vaporização das folhas com água contaminada) foi desprezada;
- vi) os valores obtidos incluem a contaminação de todo o tipo de irrigação.

Os valores da Tabela H-1 são referentes a um ano de irrigação. Pressupõe-se ainda uma camada de 15 cm (cultivada), com 240 kg de solo seco por m².

Tabela H-1: Vegetação contaminada pela água de irrigação (todos os tipos de pasto, erva, plantas arbustivas e forragem) (Kempser et al., 2000).

RDN	Factor de F _{v1} (Bq.g ⁻¹ planta)/(	Concentração Bq.g ⁻¹ solo) – peso seco
	Mínimo	Máximo
U	1 x 10 ⁻⁵	2 x 10 ⁻¹
Th	5 x 10 ⁻⁵	1 x 10 ⁻¹
Ra	1 x 10 ⁻³	4 x 10 ⁻¹
Pb	2 x 10 ⁻⁴	5 x 10 ⁻¹

	Factor de Concentração						
RDN	F _{v2} (Bq.g ⁻ 1 planta)/(Bo	F _{v2} (Bq.g ⁻¹ planta)/(Bq.g ⁻¹ solo) – peso seco					
	Mínimo	Máximo					
U	2 x 10 ⁻⁴	1,3 x 10 ⁻³					
Th	3 x 10 ⁻⁶	2 x 10 ⁻³					
Ra	2,4 x 10 ⁻⁴	1 x 10 ⁻²					
Pb	4,7 x 10 ⁻⁴	5 x 10 ⁻²					

Tabela H-2: Produtos agrícolas contaminados pela água de irrigação (todos os tipos de grãos e cereais, ou seja, milho, trigo, cevada, sementes de girassóis, etc.) (Kempser et al., 2000).

Tabela H-3: Produtos agrícolas contaminados pela água de irrigação: vegetais com folhas,

raízes de vegetais e fruto, (Kempser et al., 2000).

PDN	E. (Ba a	Fa	ictor de Co	oncentraçã	io ⁻¹ solo: nos	0.5950)
					5010, pes	0 3000)
	Vegetais co	om folhas	Raizes de	e vegetais	Frut	OS
	Mínimo	Máximo	Mínimo	Máximo	Mínimo	Máximo
U	1,2 x 10 ⁻⁴	1 x 10 ⁻²	2 x 10 ⁻⁴	3 x 10 ⁻²	4 x 10 ⁻⁴	4 x 10 ⁻⁴
Th	5 x 10⁻ ⁶	1 x 10 ⁻²	1 x 10 ⁻⁶	8 x 10 ⁻⁴	4 x 10 ⁻⁴	4 x 10 ⁻⁴
Ra	1 x 10 ⁻⁴	4 x 10 ⁻²	4 x 10 ⁻⁵	4 x 10 ⁻²	4,3 x 10 ⁻⁴	4 x 10 ⁻²
Pb	8,5 x 10⁻⁵	3 x 10 ⁻²	3 x 10⁻⁵	2 x 10 ⁻²	1,0 x 10 ⁻²	1 x 10 ⁻²

Os valores expressos em peso seco que serviram de base ao cálculo do peso húmido foram os seguintes: vegetais verdes (15 %), raízes (20 %) e frutos (10 %). Os valores das tabelas seguintes correspondem a outra fonte bibliográfica: <u>http://www.jaea.go.jp/04/tisou/english/h12report/s03/pdf/appendix_f.pdf</u>. Também são descritos valores para outros parâmetros, além do factor de transferência, nomeadamente: o coeficiente de sorção no solo, a produção de biomassa, a constante de meteoração, a translocação e as perdas nos processos de processamento dos produtos agrícolas.

Elemento	Melhor estimativa	Mínimo	Máximo
Pb	2,7 x 10 ⁻¹	3 x 10 ⁻³	6 x 10 ¹
Th	3	8 x 10 ⁻³	5 x 10 ³
Ra	4,9 x 10 ⁻¹	7 x 10 ⁻³	1 x 10 ³
U	3,3 x 10 ⁻²	5 x 10⁻⁵	2 x 10 ¹

Fonte: http://www.jaea.go.jp/04/tisou/english/h12report/s03/pdf/appendix_f.pdf

	Melhor estimativa	Mínimo	Máximo	Melhor estimativa	Mínimo	Máximo	Melhor estimativa	Mínimo	Máximo
RDN	(raízes de vegetais)			(vegetais verdes)			(grão)		
Pb	1 x 10 ⁻²	3 x 10 ⁻⁴	7 x 10 ⁻²	1 x 10 ⁻²	3 x 10 ⁻⁴	7 x 10 ⁻²	1 x 10 ⁻²	3 x 10 ⁻⁴	7 x 10 ⁻²
Th	5 x 10⁻⁴	4 x 10 ⁻⁵	1 x 10 ⁻³	5 x 10 ⁻⁴	1 x 10 ⁻⁴	1 x 10 ⁻³	5 x 10 ⁻⁴	1 x 10 ⁻⁴	1 x 10 ⁻³
Ra	4 x 10 ⁻²	5 x 10⁻⁵	8 x 10 ⁻¹	4 x 10 ⁻²	7 x 10⁻⁵	8 x 10 ⁻¹	4 x 10 ⁻²	7 x 10⁻⁵	8 x 10 ⁻¹
U	1 x 10 ⁻³	2 x 10 ⁻⁵	2 x 10 ⁻¹	1 x 10 ⁻³	2 x 10 ⁻⁵	2 x 10 ⁻¹	1 x 10 ⁻⁴	2 x 10 ⁻⁶	2 x 10 ⁻²

Tabela H-5: Factores de concentração (solo/planta), Bq.kg⁻¹ (peso húmido)/(Bq.kg⁻¹ solo (peso seco).

Fonte: http://www.jaea.go.jp/04/tisou/english/h12report/s03/pdf/appendix_f.pdf

Tabela H-6: Factores de concentração (solo/planta) (cont.), Bq.kg⁻¹ (peso húmido)/Bq.kg⁻¹ de solo (peso seco).

	Melhor estimativa	Mínimo	Máximo	Melhor estimativa	Mínimo	Máximo	Melhor estimativa	Mínimo	Máximo
RDN	(pasto)			(arroz)			(frutos)		
Pb	1 x 10 ⁻²	3 x 10 ⁻⁴	7 x 10 ⁻²	1 x 10 ⁻²	3 x 10 ⁻⁴	7 x 10 ⁻²	1 x 10 ⁻²	3 x 10 ⁻⁴	7 x 10 ⁻²
Th	5 x 10 ⁻⁴	1 x 10 ⁻⁴	2 x 10 ⁻³	5 x 10 ⁻⁴	1 x 10 ⁻⁴	1 x 10 ⁻³	5 x 10 ⁻⁴	1 x 10 ⁻⁴	1 x 10 ⁻³
Ra	4 x 10 ⁻²	7 x 10⁻⁵	8 x 10 ⁻¹	4 x 10 ⁻²	7 x 10⁻⁵	8 x 10 ⁻¹	4 x 10 ⁻²	7 x 10⁻⁵	8 x 10 ⁻¹
U	1 x 10 ⁻³	2 x 10 ⁻⁵	2 x 10 ⁻¹	1 x 10 ⁻⁴	2 x 10 ⁻⁶	2 x 10 ⁻²	1 x 10 ⁻⁴	2 x 10 ⁻⁶	2 x 10 ⁻²

Culturas	Contaminação do solo kg solo (seco)/kg planta (húmido)	Produção da biomassa (kg m ⁻² )		
	Melhor estimativa	Melhor estimativa	Mínimo	Máximo
Raízes de vegetais	1,5 x 10 ⁻⁴	2,4	2,0	5,0
Vegetais verdes	1,0 x 10 ⁻⁴	3,1	0,8	50
Grão	9,0 x 10 ⁻⁵	0,4	0,2	0,6
Pasto	3,4 x 10 ⁻³	3,9	-	-
Arroz	9,0 x 10 ⁻⁵	0,5	-	-
Frutos	1,5 x 10⁻⁴	1,4	-	-

Tabela H-7: Contaminação do solo e produção da biomassa (kg.m⁻²).

Fonte: http://www.jaea.go.jp/04/tisou/english/h12report/s03/pdf/appendix_f.pdf

Tabela H-8: Profundidade de aplicação da água de irrigação e fracção da água de irrigação interceptada.

Culturas	Profundidade da aplicação da água de irrigação,	Fracção da água de irrigação interceptada		
	(m.ano ⁻¹ )	(-)		
	Melhor estimativa	Melhor estimativa	Mínimo	Máximo
Raízes de vegetais	0,7	3,0 x 10 ⁻¹	0,2	0,6
Vegetais verdes	0,7	3,0 x 10 ⁻¹	0,2	0,6
Grão	0,7	5,0 x 10 ⁻²	1 x 10 ⁻²	6 x 10 ⁻²
Pasto	0	0	-	-
Arroz	1,9	5,0 x 10 ⁻²	-	-
Frutos	0,7	3,0 x 10 ⁻¹	-	-

RDN	Raízes de veç	jetais e pa	isto	Vegetais verdes e frutos			Grão e arroz
	Melhor estimativa	Mínimo	Máximo	Melhor estimativa	Mínimo	Máximo	Melhor estimativa
Pb	1,8 x 10	9	3 x 10 ¹	1,8 x 10 ¹	9	3 x 10 ¹	8,4
Th	1,8 x 10	9	3 x 10 ¹	1,8 x 10 ¹	9	3 x 10 ¹	8,4
Ra	1,8 x 10	9	3 x 10 ¹	1,8 x 10 ¹	9	3 x 10 ¹	8,4
U	1,8 x 10	9	3 x 10 ¹	1,8 x 10 ¹	9	3 x 10 ¹	8,4

Tabela H-9: Constante de meteoração (ano ⁻¹ ).
-----------------------------------------------------------

Fonte: http://www.jaea.go.jp/04/tisou/english/h12report/s03/pdf/appendix_f.pdf

	Melhor estimativa			Melhor estimativa		
RDN	(raízes de vegetais)	Mínimo	Máximo	(vegetais verdes e pasto)	Mínimo	Máximo
Pb	2,2 x 10 ⁻¹	2,2 x 10 ⁻²	2,2	2,2 x 10 ⁻¹	2,2 x 10 ⁻²	2,2
Th	2,9 x 10-1	2,9 x 10 ⁻²	2,9	3,8 x 10 ⁻²	3,8 x 10 ⁻³	3,8 x 10⁻¹
Ra	9,9 x 10 ⁻²	1 x 10 ⁻²	9,9 x 10 ⁻²	1,8 x 10 ⁻¹	1,8 x 10 ⁻²	1,8
U	4,3 x 10 ⁻²	4,3 x 10 ⁻²	1,0 x 10 ⁻¹	3,6 x 10⁻¹	3,6 x 10 ⁻²	3,6

Tabela H-10: Fracção de translocação (-).

	Melhor estimativa	-		Melhor estimativa		-
RDN	(grãos e arroz)	Mínimo	Máximo	(frutos)	Mínimo	Máximo
Pb	1,0 x 10 ⁻¹	1,0 x 10 ⁻²	1	1,1 x 10 ⁻¹	1,1 x 10 ⁻²	1
Th	1,3 x 10⁻¹	1,3 x 10 ⁻¹	1,3	1,3 x 10 ⁻¹	1,3 x 10 ⁻²	1,3
Ra	8 x 10 ⁻²	8 x 10 ⁻³	8 x 10 ⁻¹	7,3 x 10 ⁻³	7,3 x 10 ⁻³	7,3 x 10⁻¹
U	1,6 x 10⁻¹	1,6 x 10 ⁻²	1,6	1,9 x 10 ⁻¹	1,9 x 10 ⁻²	1,9

Tabela H-11: Fracção de translocação (cont.) (-).

Tabela H-12: Perdas na	preparação dos	produtos agrícol	as (-).
	propulação aoo	produced agricol	uu ( ).

	Melhor estimativa			Melhor estimativa			Melhor estimativa		
RDN	(raízes e frutos)	Mínimo	Máximo	(vegetais verdes)	Mínimo	Máximo	(grão e arroz)	Mínimo	Máximo
Pb	0	-	-	9 x 10 ⁻¹	7 x 10 ⁻¹	9,5 x 10 ⁻¹	8,5 x 10 ⁻¹	5 x 10⁻¹	9 x 10 ⁻¹
Th	0	-	-	9 x 10 ⁻¹	7 x 10 ⁻¹	9,5 x 10⁻¹	8,5 x 10⁻¹	5 x 10⁻¹	9 x 10⁻¹
Ra	0	-	-	9 x 10 ⁻¹	7 x 10 ⁻¹	9,5 x 10 ⁻¹	8,5 x 10⁻¹	5 x 10 ⁻¹	9 x 10⁻¹
U	0	-	-	9 x 10 ⁻¹	7 x 10⁻¹	9,5 x 10 ⁻¹	8,5 x 10 ⁻¹	5 x 10 ⁻¹	9 x 10 ⁻¹





Anexo H

# ANEXO I

# Transferência dos RDN para a vegetação pela deposição

# (caso particular dos actinídeos)

## I1. Introdução

A deposição atmosférica dos radionuclídeos sob a forma de partículas pode constituir uma importante trajectória de contaminação da cadeia alimentar através da deposição na superfície do solo e na superfície das plantas. No caso da deposição sobre o solo, poderá ocorrer a ressuspensão para a superfície das plantas ou a infiltração no solo (juntamente com a água da precipitação) e a consequente absorção pelas raízes. No caso da deposição na superfície das plantas, a deposição pode sofrer uma intercepção causada pela superfície da planta e ser posteriormente translocada para o seu interior.

Os elementos do grupo dos actinídeos (Ac, **Th**, Pa, **U**, Np, Pu, Am, Cm, Bk, Cf, Es, Fm, Md, No, Lr) são considerados elementos imóveis, sendo a sua transferência por processos químicos muito lenta. Qualquer contaminação directa na superfície da vegetação vai constituir a maior contribuição para a actividade total na planta. Os processos de absorção das raízes e de contaminação directa do solo, devido à deposição atmosférica, apenas serão relevantes quando não for considerada a deposição directa.

No caso de produtos usados directamente na alimentação dos humanos (vegetais verdes, frutos, etc.), a sua preparação prévia, tal como remover a cobertura do fruto ou a lavagem dos vegetais, poderá diminuir a concentração da actividade total, especialmente se a contaminação resulta da deposição directa na superfície. Nestes casos, ao calcular a concentração da actividade, apenas se considera a contaminação interna do fruto, já que a contaminação da sua superfície foi (teoricamente) removida. No entanto, é possível quantificar na estimativa da concentração da actividade total, a perda devido aos processos prévios de preparação.

A concentração da actividade deve ser quantificada relativamente aos produtos colhidos e, teoricamente, prontos a serem consumidos. Em determinado tipo de produtos poderá haver um período de tempo relativamente longo de armazenamento entre a colheita e o consumo. Neste caso, também é possível quantificar as perdas da concentração da actividade que poderão ocorrer neste período (cerca de 1 ano), como por exemplo, por decaimento radioactivo. Relativamente aos elementos do grupo dos actinídeos, o período de semi-vida da maioria destes elementos é suficientemente longo para apenas ter um efeito reduzido na perda da actividade por decaimento radioactivo.

# I2. Modelos genéricos

A escassez de dados relativos à transferência de radionuclídeos (RDN) para a vegetação e em particular, para alguns elementos do grupo dos actinídeos (Th e U), implica assumir alguns pressupostos para os processos de transferência envolvidos no cálculo da concentração da actividade. No entanto, a maioria dos dados disponíveis na bibliografia, relativamente aos processos envolvidos na contaminação da vegetação através da deposição atmosférica, para os elementos do grupo dos actinídeos, é limitada ao plutónio (²³⁹Pu) e ao amerício (²⁴¹Am). Estes dados resultaram de modelos especificamente direccionados para o estudo da transferência para a vegetação destes dois elementos. Um processo similar pode ser expectável para outros RDN do mesmo grupo, apesar de haver variações nos processos que contribuem para a contaminação da vegetação que são dependentes do elemento. Por outro lado, os resultados obtidos em modelos desenvolvidos para diferentes tipos de vegetação, levaram a concluir que a diferença na transferência entre os elementos do grupo dos actinídeos é muito pequena (Teale & Brown, 2003).

Os diferentes processos de contaminação podem ser combinados num modelo de estimativa da transferência dos RDN (Teale & Brown, 2003). Devido à falta de dados de muitos destes mecanismos de transferência, a abordagem a adoptar deverá ser simples contendo os processos de transferência mais importantes em função dos dados disponíveis. Os processos considerados que podem estar na base da transferência dos RDN para a vegetação são os seguintes:

- 1. Absorção pelas raízes;
- 2. Contaminação directa do solo;
- 3. Migração no solo;
- 4. Ressuspensão;
- 5. Intercepção;
- 6. Meteoração;
- 7. Translocação;
- 8. Práticas agrícolas;
- 9. Armazenamento e processamento.

# I2.1. Absorção pelas raízes

A absorção pelas raízes é quantificada através dos factores de transferência solo/planta específico do elemento e da planta (ou vegetação) em estudo. A maioria

dos factores de transferência (FT) existentes na bibliografia é relativa a diferentes combinações de RDN e de plantas. Os factores de transferência apenas se aplicam para a trajectória de absorção pelas raízes e não incluem qualquer contaminação por outras trajectórias tais como a contaminação da superfície por deposição. Contudo, quando se mede a absorção pelas raízes é difícil garantir que não haja contribuição de outras trajectórias. Isto é particularmente importante para os actinídeos, porque os FT são valores muito pequenos e qualquer contribuição extra vai ter um efeito significativo no valor final.

Os factores de transferência solo-planta fornecem uma estimativa da concentração na planta relativamente à concentração no solo, assumindo que o solo foi contaminado durante o período de crescimento da planta, o que implica que a concentração da actividade resultante da deposição atmosférica no solo seja a mesma que se deposita inicialmente na planta. Pressupõe-se ainda que o solo e a planta atingem o equilíbrio rapidamente e que desta forma, o FT obtido na altura da colheita é independente de quando ocorreu a deposição.

Os dados compilados deste parâmetro (FT) sugerem que o Pu e o Am comportam-se de maneira semelhante no sistema solo/planta e é com base neste pressuposto que se vai extrapolar o comportamento destes RDN ao U e ao Th, assumindo que todos os elementos dos actinídeos se comportam da mesma maneira no sistema solo/planta (Teale & Brown, 2003).

Alguns modelos descritos na bibliografia adoptam directamente os FT solo/planta para o cálculo da concentração da actividade na planta. Estes modelos assumem que os RDN estão igualmente distribuídos na zona das raízes e a concentração da actividade na planta com origem na absorção pela raiz é estimada através da concentração da actividade no solo e do FT solo/planta, que deve ser conhecido para a planta e para o elemento específico. Assim, conhecendo estes dois parâmetros, a concentração do RDN (j) na planta (i) pode ser estimada através da seguinte expressão (Muller & Prohl, 1993):

$$\mathbf{C}_{i,i}(t) = \mathbf{TF}_{i,i} \cdot \mathbf{C}_{s}(t) \tag{I-1}$$

- C_{i,j}(t): concentração da actividade devido à absorção das raízes da planta (i) e radionuclídeo (j) no tempo t
- TF_{i,j}: factor de transferência solo/planta para a planta (i) e radionuclídeo (j)
- $C_s(t)$ : concentração da actividade na zona das raízes do solo no tempo t.

#### I2.2. Contaminação directa do solo

Para a vegetação que se encontra bastante acima do solo, os seus frutos (que são a parte comestível no caso, por exemplo, das árvores de fruto), não serão afectados pela deposição na superfície do solo devido à altura a que estes se encontram. No entanto, para outro tipo de plantas cujos frutos crescem perto do solo, esta trajectória pode constituir uma importante via de contaminação.

#### I2.3. Migração do solo

Na bibliografia encontram-se referências de dados da migração dos RDN no solo. A maioria destes dados refere-se à migração dos RDN em solos não remexidos, como os solos de pasto, e têm sido usados para validar alguns modelos de migração de RDN neste tipo de solos e ainda de cultivo. Nestes modelos (Brown & Simmons, 1995) é considerado um período de semi-vida para a migração no solo de 100 anos para o Pu, relativamente à perda de material nos 30 cm de solo superficial, em solos remexidos. Outros modelos (Muller & Prohl, 1993) consideram ainda a perda de material da zona das raízes por este processo. De uma forma geral, estes modelos (Muller & Prohl, 1993) assumem que a zona das raízes se encontra a 25 cm de profundidade para os solos arados e este pressuposto é usado para todos os produtos agrícolas, excepto para a erva de pasto.

#### I2.4. Ressuspensão

As partículas radioactivas podem contaminar os frutos por ressuspensão e pela subsequente deposição na superfície da planta ou das árvores. Esta trajectória de ressuspensão constitui um processo de transferência do solo para vegetação e é quantificada pelo factor de ressuspensão e pela velocidade de deposição. O factor de ressuspensão é o quociente entre a concentração da actividade no ar (Bq/m³) e a deposição superficial inicial no solo (Bq/m²). A velocidade de deposição é o débito ao qual o material ressuspenso regressa à superfície do solo, sendo parte interceptada pela planta ou árvore.

Alguns autores referem que a ressuspensão não é significativa a alturas acima de 1 m do solo. Com base neste pressuposto, é pouco provável que os frutos das árvores sejam contaminados por ressuspensão. No entanto, outros autores (Wilkins et al., 1996) verificaram alguns casos de árvores (oliveiras) com frutos contaminados, devido à ressuspensão das poeiras (tipicamente vários metros acima do solo). A

contaminação foi quantificada em 0,003 % da massa do fruto e cerca de 0,15 % das suas folhas.

A trajectória da ressuspensão é descrita pelo factor de ressuspensão temporalmente dependente (R_e, m⁻¹) e pode ser estimado pela seguinte expressão, conhecida pela equação de "Garland" (Garland et al., 1982):

$$R_{e} = \frac{1.2 \times 10^{-6}}{t}$$
 (I-2)

em que t  $\geq$  1 representa os dias após a deposição. O valor do factor de ressuspensão resultante desta expressão, constitui a média da ressuspensão ao longo do período de crescimento e é um valor constante durante esse período. De acordo com a equação de Garland, o factor de ressuspensão é pequeno para longos períodos após a deposição.

O factor de ressuspensão médio para um período de crescimento de 120 dias indicado na bibliografia é de 7,63 x 10⁻⁸ m⁻¹ (Teale & Brown, 2003).

Outras referências bibliográficas (Muller & Prohl, 1993) indicam o valor de 2,5 x  $10^{-8}$  m⁻¹ estipulado com base no tempo de residência dos RDN numa camada de solo com espessura variável entre 0 - 1 cm e uma média de deposição das poeiras de 100  $\mu$ g/m³ para áreas rurais. Para a velocidade de deposição das partículas ressuspensas habitualmente é adoptado o valor  $10^{-3}$  m/s (Teale & Brown, 2003).

### I2.5. A intercepção dos contaminantes

A intercepção da deposição pela vegetação pode ser quantificada pela fracção da intercepção, ou seja, a proporção do material total que se deposita interceptado pela cobertura da planta. A intercepção por deposição seca é independente do RDN, no entanto, durante a deposição por via húmida, as propriedades químicas do RDN podem ter um efeito significativo na deposição.

A melhor estimativa para a fracção de intercepção, segundo Kinnersley & Scott (2001), é igual a 0,74 por deposição seca, isto é, cerca de 74% da actividade depositada (por via seca) é interceptada pelas folhas e frutos, sendo os restantes 26% depositados no solo. Alternativamente, a fracção de deposição pode ser calculada através da relação derivada por Chamberlain (1970), em que o coeficiente de intercepção ( $\mu$ ) é uma medida empírica da capacidade da cobertura da vegetação para filtrar o material depositado. A fracção de intercepção é dada pela expressão (Teale & Brown, 2003):

 $P = 1 - e^{(-\mu \cdot W)}$ 

- P: proporção da actividade depositada interceptada pela planta (-)
- W: massa da planta (kg/m²) (peso seco)
- $\mu$ : coeficiente de intercepção dependente da planta (m²/kg).

A expressão derivada de Chamberlain (Teale & Brown, 2003) relaciona a biomassa da vegetação com a proporção da actividade depositada interceptada pela vegetação. Kinnersley & Scott (2001) também deduziram uma expressão para calcular a intercepção durante a deposição por via húmida, com base nas propriedades da planta (Teale & Brown, 2003):

$$F_{i} = \frac{LAI \cdot S_{i}}{P_{r}} \left( 1 - e^{\left(\frac{-\ln 2}{3 \cdot S_{i}} \cdot P_{r}\right)} \right)$$
(I-4)

- F_i: fracção de intercepção média (-)
- S_i: retenção na planta (mm)
- P_r: precipitação (mm)
- LAI_i: índice da área da folha da planta i (definida como a área da superfície da folha por unidade de área de superfície de solo) (-).

Com base no pressuposto da imobilidade dos actinídeos, não há translocação dos RDN resultantes da deposição atmosférica das folhas para os frutos. Desta forma, a actividade na superfície das folhas pode ser desprezada, e assume-se que apenas ocorre a intercepção pelos frutos e que qualquer actividade não interceptada por estes cai directamente no solo afectando os processos de absorção pelas raízes e da contaminação do solo.

O coeficiente de intercepção pode ser estimado, através da equação de Chamberlain (1970). Conhecendo a produção da biomassa (W) e a fracção de intercepção (P) obtida experimentalmente, o coeficiente de intercepção (µ) pode ser calculado de acordo com:

W: 0,047 ou 0,33 (kg/m²) (árvores em fase de maturação)

- P: 0,0011 ou 0,008 (m²/kg)
- μ: 0, 023 ou 0,025.

Se adoptarmos o coeficiente de intercepção (µ) igual a 0,025 (m²/kg) como um coeficiente genérico, a fracção de intercepção (P) pode ser calculada para qualquer

(I-3)

tipo de vegetação, nomeadamente para as três categorias de produtos consideradas: árvores de fruto (gerais), plantas herbáceas e arbustos.

Тіро	Massa fresca (kg/m²)	Conteúdo de água (%)	Massa seca (kg/m ² )	Fracção Interceptada (-)	
Árvores	1,69	84,4	0,264	0,007	
Herbáceas	1,31	89,9	0,132	0,003	
Arbustos	0,56	80,0	0,112	0,003	

Tabela I-1: Fracção de intercepção por tipo de vegetação.

#### I2.6. Meteoração

Uma vez depositada na planta ou no fruto, vai iniciar-se um processo de remoção ou de atenuação da concentração da actividade. O débito a que esta remoção ocorre é, vulgarmente descrito pelo período de semi-vida da constante de retenção ou de remoção, isto é, o tempo necessário para que a contaminação seja reduzida a metade.

O processo é independente do RDN, mas depende do tipo de vegetação. Para alguns frutos (por exemplo – maçãs), o tempo médio de remoção é de 11 dias, para a superfície dos outros produtos agrícolas (excepto frutos) é indicado o valor de 14 dias para este parâmetro. Devido à falta de dados específicos para os frutos, o valor vulgarmente utilizado e mais abrangente, relativamente ao tipo de vegetação, é de 14 dias.

#### I2.7. Translocação

Quando o material se deposita em qualquer parte da superfície da vegetação, pode ser transferido (para as partes comestíveis da planta) através da translocação. A translocação dos RDN de qualquer parte da vegetação até ao fruto (parte comestível) pode ser descrita por dois processos: i) a translocação é interpretada como um processo através do qual os RDN na superfície externa são transferidos para o interior e para qualquer parte comestível, por processos químicos; ii) a translocação é descrita como um processo através do qual os RDN na superfície das folhas são fisicamente transferidos para a superfície dos frutos.

A absorção dos RDN através da pele do fruto após a contaminação directa também pode ser considerado como um processo de translocação.
Para os actinídeos, considerados como elementos imóveis, os factores de translocação (fracção da actividade depositada na planta que é transferida para as partes comestíveis) são muito pequenos, dependendo do período de deposição a que os produtos comestíveis são expostos, antes de serem colhidos. Considera-se, de uma forma geral, que a transferência da superfície externa da planta para o interior (partes comestíveis) é nula para os elementos imóveis.

#### **I2.8.** Práticas agrícolas

Existe uma forte relação entre a presença ou a ausência de determinado tipo de vegetação quando ocorre a deposição. Isto porque haverá diferentes períodos para a plantação, crescimento dos frutos e a sua colheita. Alguns frutos podem ser colhidos dentro de um período de tempo muito curto e armazenados para consumo durante o resto do ano enquanto que outros podem ser colhidos e consumidos dentro de poucos dias, sendo muito poucos armazenados para consumo durante o resto do ano.

Para particularizar estes diferentes períodos, consideram-se normalmente três épocas por ano: período de crescimento; período de colheita e o período em que não há fruto presente. No caso dos frutos, é necessário que o período de crescimento coincida com o tempo no qual o fruto já se desenvolveu suficientemente para o processo de transferência se iniciar.

No caso dos frutos colhidos num período de tempo curto e armazenados para consumo ao longo de todo o ano, a estimativa da actividade, pode ser feita assumindo uma colheita instantânea, ou seja, a remoção de parte da actividade do sistema, deixando apenas a contaminação do solo, uma vez que todos os frutos são colhidos ao mesmo tempo.

No caso das plantas herbáceas (e arbustos de frutos), os seus frutos são tipicamente colhidos durante um período curto de tempo e consumidas dentro de poucos dias. Neste caso, considera-se um período de colheita durante o qual o fruto é consumido directamente, isto é, a actividade é estimada pressupondo que os frutos são consumidos imediatamente após serem colhidos e assim as eventuais perdas da actividade durante este período são desprezáveis.

#### **12.9.** Armazenamento e processamento

A contaminação pode ser reduzida após a colheita dos produtos, através da preparação dos produtos para consumo (por lavagem ou remoção da casca) ou

através do período de armazenamento que antecede o consumo. As perdas por armazenamento devem-se ao decaimento radioactivo entre a altura em que os produtos são colhidos e a altura em que são consumidos. Alguns autores consideram que não há perdas por armazenamento, isto é, pressupõem que os frutos são sempre consumidos após serem colhidos.

Para os actinídeos, a tempo de semi-vida é suficientemente longo tendo apenas um efeito reduzido na concentração da actividade ao longo do tempo durante o qual os frutos são armazenados. Os processos de perda são mais significativos na preparação dos produtos agrícolas para consumo ou armazenamento. Para os actinídeos, que são elementos imóveis, a quantidade de actividade provável de se encontrar nos frutos frescos é relativamente pequena, permanecendo a maior parte na superfície exterior removida.

Geralmente, os frutos são consumidos directamente, sem grandes processos de tratamento, apesar de o seu consumo poder ser precedido de uma lavagem. Se considerarmos as perdas devido aos processos de preparação ou de processamento, antes de consumo, estas apenas se devem referir à contaminação da superfície. Os factores de transferência solo/planta, que se referem à contaminação interna do fruto, já pressupõem a parte do processamento, uma vez que apenas se referem à parte comestível. No caso dos produtos armazenados durante algum e só depois consumidos, o decaimento radioactivo entre a colheita e a altura em que são consumidos deveria (teoricamente) ser incluído. No entanto, como a maioria dos actinídeos têm um período de semi-vida bastante longo (para o urânio é 4,5 x 10⁹ anos) este decaimento é insignificante para a concentração da actividade final.

#### 13. Descrição da transferência por um modelo conceptual

Considerando os processos envolvidos na transferência dos actinídeos através da deposição atmosférica, é possível agrupar estes processos num modelo constituído por vários compartimentos em cada uma vai incluir um, vários, ou todos estes processos.

Os elementos do grupo dos actinídeos considerados são o Pu e o Am, com o pressuposto de ser legítimo extrapolar os resultados para os restantes elementos do mesmo grupo, nomeadamente para o Th e para o U. A trajectória principal de contaminação é a deposição atmosférica e a vegetação alvo, os frutos que vão ser

ingeridos posteriormente e que vão constituir a entrada directa da actividade na cadeia alimentar.

A libertação pode ser considerada pontual ou contínua. Os resultados obtidos e apresentados na bibliografia referem-se ao ²³⁹Pu (Teale & Brown, 2003). De forma geral, dada a incerteza na transferência dos actinídeos para os frutos, os resultados podem ser considerados apropriados para todos os actinídeos com período de semi-vida superior a algumas dezenas de anos. O período de semi-vida do Pu é de 7,6 x 10⁷ anos. No entanto, os resultados são considerados sobrestimados para isótopos com vida média muito inferior à do Pu.

No caso dos resíduos da mineração e tratamento do urânio e segundo a trajectória da deposição atmosférica, os RDN que poderão estar presentes são: o radão (Rn), o urânio (U), o tório (Th) e o rádio (Ra). Apenas o U e o Th pertencem ao grupo dos actinídeos. O período de semi-vida para o ²³⁸U é igual a 4,5 x 10⁹ anos e para o ²³²Th é igual a 1,39 x 10¹⁰ anos.

Quatro compartimentos básicos podem ser considerados para simular os processos de transferência: solo, superfície (exterior) do fruto, interior do fruto e contaminação fruto/solo. A estrutura do modelo pode ser esquematizado de acordo com o esquema proposto por Teale & Brown (2003):



Figura I-1: Trajectórias de transferência dos RDN por deposição. Fonte: Teale & Brown (2003).

Ai representa a entrada inicial para cada compartimento:

- deposição no solo [A1]
- deposição na superfície do fruto [A2]

K_{ii} débito de transferência (d⁻¹) do compartimento i para o compartimento j (i≠j):

- k₁₂ do compartimento 1 (solo) para o 2 (superfície do fruto)
- k₂₁ do compartimento 2 (superfície do fruto) para o 1 (solo)
- k₁₃ do compartimento 1 (solo) para o 3 (interior do fruto)
- k₃₁ do compartimento 3 (interior do fruto) para o 1 (solo)
- k₁₄ do compartimento 1 (solo) para o 4 (solo/fruto)
- k₄₁ do compartimento 4 (solo/fruto) para o 1 (solo)

K_{ii} débito de perdas (d⁻¹) do compartimento i:

- k₁₁ do compartimento 1 (solo)
- k₂₂ do compartimento 2 (superfície do fruto)
- k₃₃ do compartimento 3 (interior do fruto)
- k₄₄ do compartimento 4 (solo/fruto)

Os compartimentos 2 e 4 podem ser adicionados para estimar a concentração externa do fruto colhido. O compartimento 3 fornece uma estimativa da contaminação interna do fruto. As entradas A₁ e A₂ têm unidades de Bq/m² (actividade depositada por unidade de área de solo). A saída de cada compartimento do modelo é convertido na concentração da actividade (Bq/kg) através da produção de biomassa do fruto (kg/m²). A concentração da actividade de cada compartimento é então usada para estimar a concentração total no fruto, independentemente da altura em que é consumido.

#### 14. Cálculo dos débitos de transferência do modelo

#### I4.1. Intercepção

Assume-se que os actinídeos são imóveis e desta forma não há qualquer translocação do material interceptado pelas folhas para o fruto. Isto significa que a deposição ou é interceptada pelo fruto ou vai directamente para o solo.

Para a deposição durante o período de crescimento ou de colheita, a proporção que é interceptada no exterior do fruto é dependente da produção de biomassa. Na ausência de frutos, toda a deposição é recebida pelo solo. Desta forma, é necessário considerar dois períodos diferentes para a deposição.

Os parâmetros necessários para calcular a fracção de intercepção devem constituir uma entrada no modelo.

No período de crescimento ou de colheita a deposição no solo é dada por (Teale & Brown, 2003):

$$A_1 = (1 - P) \cdot DEP$$
 (I-5)

e a deposição na superfície da vegetação (fruto) é dada por (Teale & Brown, 2003):

$$A_2 = P \cdot DEP \tag{I-6}$$

em que, DEP pode representa a actividade depositada por unidade de área (Bq.m⁻²) ou o fluxo de deposição (Bq.m⁻².s⁻¹).

No período de ausência de frutos a deposição é nula ( $A_2 = 0$ ) e a deposição no solo é dada por (Teale & Brown, 2003):

#### I4.2. Ressuspensão e subsequente deposição

No período de crescimento ou de colheita, a deposição na superfície da vegetação devido à ressuspensão é dada por (Teale & Brown, 2003):

$$\mathbf{k}_{12} = \mathbf{R}_{e} \cdot \mathbf{V}_{d} \cdot \mathbf{P} \tag{I-8}$$

R_e: factor de ressuspensão, (m⁻¹)

V_d: velocidade de deposição, (m/d)

P: fracção de intercepção, (-).

Para os restantes períodos a deposição na superfície devido à ressuspensão é nula ( $k_{12} = 0$ ) (Teale & Brown, 2003).

#### I4.3. Meteoração

A contaminação directa do solo é estimada através do factor de transferência da vegetação para a superfície do solo com base no tempo médio da meteoração (14 dias por defeito).

No período de crescimento ou de colheita e de cultivo contínuo, o débito de meteoração é dado por (Teale & Brown, 2003):

$$k_{21} = \frac{\ln 2}{\lambda_w}$$
(I-9)

Na ausência de frutos, o débito de meteoração é nulo ( $k_{21} = 0$ ).

#### I4.4. Absorção pelas raízes

Os dados relativos à absorção pelas raízes são expressos na forma de factores de transferência que descrevem o quociente entre a concentração da actividade na planta e a concentração no solo. De acordo a Figura I-1, a absorção das raízes é traduzida por um par de factores de transferência entre os compartimentos solo/fruto (interior), em equilíbrio.

No período de crescimento ou de colheita e de cultivo contínuo, a transferência através das raízes é dada por (Teale & Brown, 2003):

$$k_{13} = FT \cdot (\frac{WM}{SMASS}) \cdot EQ$$
 (I-10)

$$SMASS = SDEN \cdot SDEP$$
 (I-11)

FT: factor de transferência solo/fruto, (d⁻¹)

WM: massa do fruto,  $(kg.m^{-2})$ 

SMASS: massa do solo no compartimento do solo (peso seco), (kg.m⁻²)

SDEN: densidade do solo (peso seco), (kg.m⁻³)

SDEP: profundidade do solo, (m)

EQ: factor de equilíbrio,  $(d^{-1})$ .

A absorção pelas raízes é dada pelo factor de equilíbrio (Teale & Brown, 2003):

k₃₁ =EQ (I-12)

Na ausência de frutos, a transferência através das raízes é nula ( $k_{13} = 0$ ) e o factor de equilíbrio é nulo ( $k_{31} = 0$ ).

#### I4.5. Contaminação directa pelo solo

Para estimar a contaminação directa pelo solo é usado um par de factores de transferência para determinar a quantidade de solo no fruto, em função da % da sua massa (v), no momento da colheita. Eventualmente esta transferência já estaria incluída na ressuspensão, apesar do conceito ser diferente uma vez que esta transferência refere-se aos "salpicos" de solo contaminado para a superfície dos frutos que serão provocados por outros processos distintos da ressuspensão.

No período de crescimento ou de colheita e de cultivo contínuo a transferência é dada por (Teale & Brown, 2003):

Anexo I

$$k_{14} = \frac{\vartheta}{100} \cdot \left(\frac{\mathsf{DM}}{\mathsf{SMASS}}\right) \cdot \mathsf{EQ}$$
 (I-13)

$$\mathsf{DM} = \mathsf{WM} \cdot \frac{100 - \mathsf{WTR}}{100} \tag{I-14}$$

DM: massa do fruto, (peso seco), (kg.m⁻²)

WTR: % de água no fruto.

O factor de equilíbrio da transferência do fruto para o solo pode ser dado por (Teale & Brown, 2003):

Na ausência de frutos, a transferência é nula ( $k_{14} = 0$ ) e o factor de equilíbrio também é nulo ( $k_{41} = 0$ ).

#### I4.6. Colheita

Designa-se por perda rápida dos compartimentos envolvidos na contaminação dos frutos, a perda instantânea da actividade no final do período da colheita. Para longos períodos após a deposição pode ser adequado ignorar os períodos de crescimento e considerar um período contínuo de cultivo, no qual a actividade perdida do sistema deve-se à contínua substituição dos frutos, isto é, os frutos contaminados são colhidos dando lugar a frutos novos.

No período de crescimento ou de colheita, não há perdas e segundo Teale & Brown (2003):

$$k_{22}, k_{33}, k_{44} = 0$$
 (I-16)

Na ausência de fruto, ocorrem perdas rápidas (Teale & Brown, 2003):

$$k_{22}, k_{33}, k_{44} = 8,64 \times 10^{-4}$$
 (I-17)

No período de cultivo contínuo, as perdas são referentes ao período de um ano, ao débito de uma colheita por ano (Teale & Brown, 2003):

$$k_{22}, k_{33}, k_{44} = \frac{1}{365}$$
 (I-18)

#### I4.7. Migração no solo

A perda de actividade na coluna do solo e fora da zona das raízes pode ser quantificada através da perda do solo com base no período de semi-vida de migração no solo. O valor por defeito descrito na bibliografia é de 3,65 x 10⁴ d⁻¹ (Teale & Brown, 2003). Em qualquer período, a migração no solo é dada por (Teale & Brown, 2003):

$$k_{11} = \frac{\ln 2}{\lambda_s}$$
 (I-19)

#### I4.8. Os modelos de transferência

Os débitos de transferência e perdas no modelo são dependentes dos diferentes períodos, reflectindo as práticas agrícolas assumidas inicialmente. Os factores de transferência que representam a ressuspensão também dependem do período durante o qual o fruto é sujeito à ressuspensão antes de ser colhido. Alguns factores de transferência foram calculados para as 4 situações reflectindo as diferentes aplicações para as quais o modelo pode ser usado. A Tabela I-2 representa estes valores, por defeito, e as 4 situações respectivas (Teale & Brown, 2003): TP (para todos os períodos); CC (períodos de crescimento e de colheita); AF (ausência de fruto); C (cultivo contínuo). O período referente à 1.ª época de crescimento está identificado por (1) e todos os períodos após a 1.ª época de crescimento estão identificados por (> 1).

O valor de  $k_{12}$  depende do período considerado e do tipo de vegetação (árvores, plantas herbáceas, etc.) para uma libertação pontual. No caso de uma libertação contínua, o valor por defeito é igual a 3,94 x 10⁻⁸ d⁻¹.

Parâmetro	Período	Valor (d⁻¹)
<b>K</b> ₁₁	TP	1,90 x 10 ⁻⁵
K ₂₂	CC	0
	AF	8,64 x 10 ⁴
	С	2,74 x 10 ⁻³
K ₃₃	CC	0
	AF	8,64 x 10 ⁴
	С	2,74 x 10 ⁻³
K ₄₄	CC	0
	AF	8,64 x 10 ⁴
	С	2,74 x 10 ⁻³
<b>K</b> ₂₁	CC, C	4,95 x 10 ⁻²
	AF	0
<b>K</b> 31	CC, C	8,64 x 10 ⁴
	AF	0
<b>K</b> ₁₃	CC, C	3,25 x 10 ⁻³ (árvores de fruto)
		2,52 x 10 ⁻² (herbáceas)
		1,08 x 10 ⁻² (arbustos)
	AF	0
K ₄₁	CC, C	8,64 x 10 ⁴
	AF	0
<b>K</b> ₁₄	CC, C	0 (árvores de fruto)
		2,53 x 10 ⁻² (herbáceas)
		2,15 x 10 ⁻² (arbustos)
	AF	0
K ₁₂	CC(1)	3,94 x 10 ⁻⁸
	AF( > 1)	0

Tabela I-2: Fluxos de transferência entre os vários compartimentos considerados.

Fonte: Teale & Brown (2003).

# ANEXO J

# Artigos publicados no âmbito deste trabalho

## SIMULATION OF LIBERATION AND DISPERSION OF RADON FROM A WASTE DISPOSAL

#### M. L. Dinis and A. Fiúza

Department of Mining Engineering, Geo-Environment and Resources Research Center (CIGAR), Engineering Faculty of Oporto University, Rua Dr. Roberto Frias, s/n 4200-465 Oporto, Portugal, mldinis@fe.up.pt; afiuza@fe.up.pt

**Abstract:** Radon emissions from a radioactive waste disposal may constitute a major source of environment contamination and consequently a potential health hazard to the nearby population. Gaseous Radon-222 is generated from the radioactive decay of Radium-226 present in the tailings. When it is formed, radon is free to diffuse along the pores of the residues to the surface and escape to the atmosphere.

Waste management and long term stabilisation has a major concern in reducing radon emissions to near-background levels. The common theoretical approach is done by calculating the cover thickness that allows a radon flux inferior to a stipulated and accepted value. The fundamentals of the conceptual model are based in the principles of diffusion across a porous medium, which allows the mathematical description of the radon transport through the waste and the cover.

The basic diffusion equations are used for estimating the theoretical values of the radon flux formed from the decay of the Radium-226 contained in the waste material. The algorithm incorporates the radon attenuation originated by an arbitrary cover system placed over the radioactive waste disposal.

Once the radon is released into the atmosphere, it is available for atmospheric transport by the wind. Radon atmospheric dispersion is modelled by a modified Gaussian plume equation, which estimates the average dispersion of radon released from a point source representative of one or several uniform area sources. The model considers the medium point release between all the areas contaminated. The dispersion can be simulated in different wind directions, with different wind velocities, as well as in the dominant wind direction.

Key words: <u>Waste</u>, <u>disposal</u>, radium, <u>radon</u>, flux, dispersion.

#### 1. INTRODUCTION

Uranium milling tailings represent the highest potential source of environmental contamination for the great majority of uranium mining activities. In the ore milling, the uranium ore is grinded promoting liberation and thus increasing the possibility of radon to escape to the environment. The milling process generates large volumes of tailings being generally disposed in piles. The radionuclides presents in the tailings, ²²⁶Ra, ²³⁰Th and ²²²Rn, are a major concern to the human health and to the environment. They are not dissolved during the leaching process, which breaks down the equilibrium chains of the ²³⁸U and ²³⁵U decay families.

The principal radon isotope, ²²²Rn, formed from the ²²⁶Ra radioactive decay, has a half-life of 3.82 days, which allows a large period of time for migration before it decays to another nuclide. Radon generation may continue for thousand of years due to the long decay periods of ²²⁶Ra and ²³⁰Th, present in the uranium tailings. Radon is an inert gas, which emanates from the solid tailings particles and is free to diffuse to the surface of the pile, escaping to the atmosphere. Coming up from the ground, it may become locally hazardous or it may be transported by the wind into the surrounding area, dispersing the potential damages.

The work proposes a two-dimensional model for calculating the ²²²Rn flux diffusion from a radioactive waste disposal, having as a result the ²²²Rn concentrations at a defined mixing height which will be the starting point to the atmospheric dispersion, as well as the bidimensional dispersion in the prevalent wind direction.

#### 2. METHODS AND RESULTS

## 2.1 The ²²²Rn diffusion

The basic equations of diffusion may be used for estimating the theoretical values of the radon flux from the ²²⁶Ra content in the waste material. Radon migration to the surface is a complex process controlled mainly by porosity ( $\varepsilon$ ) and moisture ( $\theta$ ), leading the cover efficiency in attenuating the radon flux. This efficiency depends on the capacity of the cover material for keeping the diffusion so slow that radon decays to another non-gaseous nuclide, becoming trapped by the cover system.

The movement of radon in soil is characterised by the diffusion coefficient, D, which can be measured, either in laboratory or in field, or be estimated by empirical correlation. These have the advantage of being simple

#### SIMULATION OF LIBERATION AND DISPERSION OF RADON FROM A WASTE DISPOSAL

and easy to use with a minimal amount of information needed. A correlation using the fraction of saturation, m, is recommended (Rogers, 1984):

$$D(cm^2.s^{-1}) = 0,07e^{\left[-4(m-m\epsilon^2+m^5)\right]}$$
 (1)

Values for radon diffusivity in porous media may vary over a wide range of several orders of magnitudes depending on the porous material and particularly on its degree of water saturation. The generic diffusion equation can be represented by:

$$D\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \lambda C + \frac{R\rho\lambda E}{\varepsilon} = 0 (2)$$

The diffusion process occurs in a multiphase system, where the porosity is either filled with air, either with water. If we apply the generic diffusion equation to each one of the phases (a-air, w-water, filled pore space):

$$D_{a} \frac{\partial^{2} C_{a}}{\partial x^{2}} - \lambda C_{a} + \frac{R\rho\lambda E_{a}}{\varepsilon - \theta} + \frac{T_{wa}}{\varepsilon - \theta} = 0 (3)$$

$$D_{w} \frac{\partial^{2} C_{w}}{\partial x^{2}} - \lambda C_{w} + \frac{R\rho\lambda E_{w}}{\theta} - \frac{T_{wa}}{\theta} = 0 (4)$$

In these equations, D (m².s⁻¹) represents the radon diffusivity,  $\lambda$  the radon decay constant (s⁻¹), C (Bq.m⁻³) the radon concentration in the pore space, R (Bq.kg⁻¹) the radium concentration in the material,  $\rho$  (kg.m⁻³) the bulk density of the dry material, E (dimensionless) the radon emanation power coefficient for the pore spaces,  $\epsilon$  (dimensionless) the total porosity,  $\theta$  (dimensionless) the moisture and  $T_{wa}$  (Bq.m⁻³.s⁻¹) the radon transfer rate from water to the air.

The solution of the diffusion equation for a homogeneous medium represents the flux release from the tailings to the surface, J (Bq.m⁻².s⁻¹). For a system without cover we obtain (Rogers, 1984):

$$J_{t} = R\rho E \sqrt{\lambda D_{t}} \tanh\left(\sqrt{\frac{\lambda}{D_{t}}} x_{t}\right) (5)$$

In this equation,  $x_t$  represents the tailings thickness. If we consider a two media problem represented by the tailings (t) and a homogeneous cover material (c), the solution of the diffusion equation can be represented by (Rogers, 1984):

$$J_{c}(x_{c}) = \frac{2J_{t}e^{-b_{c}x_{c}}}{\left[1 + \sqrt{\frac{a_{t}}{a_{c}}} \tanh(b_{t}x_{t})\right] + \left[1 - \sqrt{\frac{a_{t}}{a_{c}}} \tanh(b_{t}x_{t})\right]e^{-2b_{c}x_{c}}}$$
(6)

In this solution,  $b_i = \sqrt{(\lambda/D_i)}$  (m) (i = c or t) and  $a_i = \epsilon_i^2 D_i [1-0.74m_i]^2$  (m².s⁻¹), where m is the degree of saturation of the soil.

From the precedent equations it is possible to obtain a generic solution for the radon released in three main situations: flux directly diverted to the atmosphere without cover trapping; radon flux through a homogeneous cover and radon flux through a multilayer cover system.

Another possible approach consists in calculating the thickness of the cover which allows a value stipulated and accepted for the radon flux. This can be done directly using the waste and cover parameters, mainly the ²²²Rn coefficient diffusion, porosity and moisture, the ²²⁶Ra content in the waste material and ²²²Rn emanation, rearranging the last equation (Rogers, 1984):

$$\mathbf{x}_{c} = \sqrt{\frac{\mathbf{D}_{c}}{\lambda}} \ln \left[ \frac{2\mathbf{J}_{t} / \mathbf{J}_{c}}{\left(1 + \sqrt{\frac{\mathbf{a}_{t}}{\mathbf{a}_{c}}} \tanh(\mathbf{b}_{t} \mathbf{x}_{t})\right) + \left(1 - \sqrt{\frac{\mathbf{a}_{t}}{\mathbf{a}_{c}}} \tanh(\mathbf{b}_{t} \mathbf{x}_{t})\right) \left(\mathbf{J}_{t} \mathbf{J}_{t}\right)^{2}} \right] (7)$$

## 2.2 The ²²²Rn atmospheric dispersion

The model uses a Gaussian model of plume dispersion to account for the transportation of ²²²Rn from the source area to a downwind receptor, and is represented by the equation of Pasquill as modified by Gifford (Chacki, 2000):

#### SIMULATION OF LIBERATION AND DISPERSION OF RADON FROM A WASTE DISPOSAL

$$X = \frac{Q}{2\pi\mu\sigma_{y}\sigma_{z}}e^{\left[-1/2\left(\frac{y}{\sigma_{y}}\right)^{2}\right]}\left\{e^{\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{z-H}{\sigma_{z}}\right)^{2}\right]}+e^{\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{z+H}{\sigma_{z}}\right)^{2}\right]}\right\}$$
(8)

This equation represents a Gaussian distribution, where X (Bq.m⁻³) represents the radionuclide concentration, Q (Bq.s⁻¹) the source strength, and H (m) the corrected source released height. Dispersion parameters,  $\sigma_y$  (m) and  $\sigma_z$  (m), are the standard deviations of the plume concentration in the horizontal and vertical directions, respectively. The standard deviations can be evaluated by the Pasquill-Gifford coefficients for flat rural areas or by Briggs method for urban areas. The atmospheric transport is done at wind-speed (height-independent), u (m.s⁻¹), to a sampling position located at surface elevation, z, and transverse horizontal distance, y, from the plume centre.

The concentration available for the dispersion is calculated from the radon flux released. The contamination source is defined as an emission area, or the sum of several areas, where the radon is diluted directly in the ambient airbreathing zone above the contaminated source zone. The wind speed for ²²²Rn dilution should be matched to the average annual value through the mixing zone.

The contaminated area can be compared to an environment compartment in which the ²²²Rn emission is uniform in all the area, characterised by its length and width. These values and the mixing height define the volume in which the concentrations are spatially homogeneous and instantaneously mixed.

The modified Gaussian plume equation estimates the average dispersion of radon released from a point source representative of one or several uniform area sources. This point represents the medium point release between all the areas contaminated, with the same mass flux as the entire affected zones, and it should be located in the weighted centre of the total contaminated area.

The ²²²Rn concentration dispersion is calculated from the release point, at the mixing height, for defined distances in each wind direction. The release point source is located in the centre of a conceptual regular polygon area defined as the contaminated site. The concentrations along each direction are evaluated taking into account the respective mean wind velocity and the frequency of the occurrence. This will lead to different ²²²Rn concentrations in the sectors defined by each direction in the collateral wind rose.

When we consider exclusively the dominant wind direction, we assume that all the ²²²Rn concentration is being distributed in that direction, being inexistent in all other directions. Another assumption is that ²²²Rn concentration is uniform in the volume defined by the central point source and the boundaries of the release area, and by the mixing height. Dispersion occurs outside this area.

#### 2.3 A case study

The model was applied to a specific contaminate site, the Urgeiriça uranium tailings. The Urgeiriça uranium mine is located in the north of Portugal near Nelas (Viseu). The mine is surrounded by small farms and country houses, with most of the local population living in the village Canas de Senhorim within about 2 km of the mine.

The exploitation of the mine began in 1913 for radium extraction. The activity of the Urgeiriça mine was maintained until 1944 then exclusively dedicated to the production of radium. In 1951, a chemical treatment unit for the production of low-grade  $U_3O_8$  concentrates was built, and in 1967 was transformed into a modern unit (Bettencourt *et al*, 1990). In 1991, local mining stopped but the facilities were still used for the treatment of ores from other mines, in the same region, until 2000.

The extensive exploitation and treatment of the uranium ore in the Urgeiriça mine, has led to an accumulation of large amounts of solid wastes (tailings). About  $4x10^9$  kg of rock material was routed into natural depressions confined by dams that cover an area of about 0.11 km². The solid wastes are composed mainly of sand and silt particles, transported as a pulp to the site from the counter-current decantation. This operation was proceeded by grinding and acid leaching. The radon exhalation from the tailings is potentially one of the main sources of contamination for the nearby areas.

We tested the model in simple situations varying some of the parameters involved. The necessary parameters were adopted from some measurements made by ITN (Nuclear and Technological Institute) in the Urgeiriça tailings piles (Reis *et al*, 2000). Local meteorological data, namely wind velocity and frequency, was used for simulating the dispersion. The unknown parameters were estimated from available data.

The calculating procedure uses the following steps: (i) estimative of the ²²²Rn diffusivity in the waste and in the cover, (ii) estimate of the ²²²Rn flux release to the air in the breathing zone and (iii) calculation of the ²²²Rn concentration dispersed in the atmosphere along each wind direction, taking into account for its intensity and frequency of blow.

#### SIMULATION OF LIBERATION AND DISPERSION OF RADON FROM A WASTE DISPOSAL

The contaminated site is composed by four different tailings with a total area of approximately 110 321 m². We considered the inexistence of a covering system in this area. The medium point for the global area was defined by the arithmetic average of the medium point for each singular area and has the following coordinates x = 20612, y = 93326.

The ²²²Rn flux was calculated for the global area, now conceptually defined as a regular octagon. Each sector has a characteristic average wind speed. The area contaminated is the same as the polygon area, and from it, one can estimate the length of the polygon sides and the radius of the circumscribed circumference. The air breathing or mixing height was defined as 1.7 m. The ²²²Rn concentrations were calculated in each sector at this height. The total average flux estimated is 0.2042 Bq.m⁻².s⁻¹.

The wind speed data in each direction (N S E W NW NE SE SW) refers to the Nelas meteorological station. The values fit in the Pasquill stability class D (neutral) so this was chosen to estimate the typical dispersion coefficients. The dominant wind direction is NE.

The concentration at the breathing height in the dominant wind direction refers only to the polygon side that limits the respective sector.

The dispersed concentrations are different in each sector. We defined a 2km distance from the centre for simulating the ²²²Rn dispersion in each wind direction; the same distance was considered for the dominant wind direction (NE). The dispersion results can be seen in the figures below.



Figure 1: Radon dispersion in each wind direction, Bq.m⁻³.



Figure 2: Radon dispersion in each wind direction, amplified, Bq.m⁻³.



Figure 3: Radon dispersion in the dominant wind direction, Bq.m⁻³.

A new simulation was done by estimating the radium content in the tailings assuming initial equilibrium in the two uranium series  238 U and  235 U. We have considered the same four contaminated areas (dams) but with different radium content from the previous case. We admitted that three of the tailings result from the treatment of an ore with an average grade of 1 kg.ton⁻¹, being leached at 90% and the other one results from the treatment of an ore with an average grade of 0.2 kg.ton⁻¹, being leached at 100%.

The values estimated for the radium content are respectively 10376 Bq.kg⁻¹ and 2075 Bq.kg⁻¹. The ²²²Rn flux was estimated for the global area also without cover. The value obtained was 5.96 Bq.m⁻².s⁻¹. The average concentration obtained inside the compartmental box was 70.2 Bq m⁻³. All the others values from the first case study were assumed in this simulation. The results of the dispersion for this case can be seen in the figures below.

#### SIMULATION OF LIBERATION AND DISPERSION OF RADON FROM A WASTE DISPOSAL



Figure 4: Radon dispersion in each wind direction, amplified (2nd case), Bq.m⁻³.



*Figure 5:* Radon dispersion in the dominant wind direction, (2nd case), Bq.m⁻³.



Figure 6: Radon dispersion in the dominant wind direction, amplified (2nd case), Bq m⁻³.

#### 3. CONCLUSIONS

The work presented may be considered a first approach in modelling the dispersion of ²²²Rn, thus allowing the assessment of exposure to uranium tailing piles. The obvious limitations are mostly related to the reduction of the source to a point. In addition, variations due to complex terrain topography cannot be modulated; our model assumes implicitly a flat plain. The wind velocity is constant with height and the dispersion is only two-directional, although this direction rotates horizontally.

We should to refer the difficulties that may be found when trying to obtain the data needed to characterise the contaminated soil and also the variability of these data, both in space and time. We stress that the radon flux depends on the diffusion coefficient, which greatly varies with the material moisture and porosity. These parameters will vary over the year, due to the climatic changing. They also depend on the radium content in the tailing which may be different in each pile and on the water retention which is also a seasonal parameter, with spread values at the Urgeiriça site (Reis *et al*, 2000).

Acknowledgements: This work has been carried out with the financial support of Foundation for Science and Technology (FCT-MCES).

#### 4. **REFERENCES**

- Betteencourt, A. O., Teixeira, M. M., Elias, M. D., & Madruga, M. J., 1990, Environmental monitoring in uranium mining areas. In: Environmental behaviour of radium, vol. 2. Technical Reports Series n.º 310, pp. 281-294, Vienna, IAEA.
- Chacki S. and Parks B., 2000, Update's User's Guide for Cap88-PC, Version 2.0. U. S. Environmental Protection Agency, EPA 402-R-00-004.
- International Atomic Energy Agency, 1982, Current Practices for the Management and Confinement of Uranium Mill Tailings. Technical Reports Series n.º 335, Vienna, Austria.
- Madruga, M. J., Brogueira, A., Alberto, G., Cardoso, F., 2001, ²²⁶Ra bioavailability to plants at the Urgeiriça uranium mill tailings site. *Journal of Environmental Radioactivity*, 54, pp. 175-188.
- Reis M., Faísca C., Brogueira A. and Teixeira M., 2000, Avaliação da Exalação de ²²²Rn para a Atmosfera em Barragens de Estéreis das Minas da Urgeiriça. Report DPRSN serie A, n.º 2.
- Rogers V. C. and Nielson K., 1984, Radon Attenuation Handbook for Uranium Mill Tailings Cover Design. U.S. Nuclear Regulatory Commission, NUREG/CR-3533.

# Simulation of Liberation and Transport of Radium from Uranium Tailings

Maria de Lurdes Dinis¹, António Fiúza

¹Department of Mining Engineering, Research Center in Environment and Resources – CIGAR. Engineering Faculty of Oporto University. Rua Dr. Roberto Frias, s/n, 4200-465 Oporto, Portugal. mldinis@fe.up.pt;afiuza@fe.up.pt.

**Abstract.** The uranium tailings contain a large amount of radium, besides other radionuclides like uranium, thorium, polonium and lead. The transport and fate of radionuclides in groundwater are assumed to follow the theoretical approach represented by the basic diffusion/dispersion – advection equation. Our algorithm uses the analytical solution for the one dimensional steady-state transport problem of a reactive substance with simultaneous retardation and radioactive decay. The final output is the radionuclides concentration in a hypothetical well location as function of the elapsed time.

#### Introduction

The environmental effects resulting from uranium mining activities are mainly derived from the wastes generated by the ore processing.

Uranium mill tailings are the solid residues resulting from the leaching of the ores. The tailings possess, in their composition, hazardous radioactive and toxic by-products and are generally disposed in open air piles. Since only the first four isotopes in the uranium 238 decay series are extracted, all other member of the family remain in the tailings at their original activities. In addition, small residual amounts of uranium are left in the tailings, depending on the efficiency of the extraction process used. Although the activity in most uranium tailings is relatively low, some radiological hazard will last virtually forever because of the long half-life of the radionuclides involved.

The uranium tailings disposal represents the highest potential source of environmental contamination for the great majority of uranium mining activities. Approximately 70% of the original activity from uranium ore remains in the tailings and it is essentially due to the ²³⁰Th and its descendents, in particular ²²⁶Ra. The radionuclides in the tailings are more mobile and chemically reactive than in

original ore. They are now potentially more able to enter in the environment by seepage, leaching and as dust, becoming a contamination source to the air, soil, superficial water and groundwater.

Radium is often considered to be the most important radiotoxic decay product in the uranium decay series not only by its high radioactivity but because it also produces radon (²²²Rn), an inert gas whose decay products can cause lung cancer. Airborne radon degrades into a series of short half-life decay products that are hazardous if inhaled. However, ²¹⁰Pb is also an important decay product, both because of its radiotoxicity and because of the mobility of ²¹⁰Po, a subsequent daughter.

Uranium mill tailings also contain potentially dangerous materials such as arsenic and selenium. These toxic and other radioactive materials like radium and uranium may get into the human body mainly through the food chain if they are not properly disposed off.

The transport of radionuclides from a site may occur by the infiltrated precipitation. As water percolates through the pores, some radionuclides are released from the pile where they are exposed, adsorbed to sediments or dissolved in water. This contaminated water may migrate downward to the subsoil and contaminate the groundwater. Once in the groundwater the radionuclides may become accessible to humans or other forms of life when they reach a hypothetical well. The radionuclides present in the water pumped from a well will represent a potential hazard to the nearby population resulting either from a possible ingestion or from its use for irrigation.

This work proposes a two-direction model for simulating the radionuclides release from a uranium tailings pile and its migration process through the soil to the groundwater. The final result is the radionuclide concentration in the groundwater as function of the elapsed time, at a defined distance from the pile, where is considered to be located the well.

#### Methods and Results

#### The Release Mechanism

The model is divided into three sub-models describing each one different processes: (i) the release mechanism which accounts for the infiltrating water through the cover and the radionuclides leaching out from the contaminated material, (ii) the transport either in the vertical direction, downwards into the soil through the unsaturated zone until an aquifer is reached, either in the horizontal direction, through the saturated zone to the well, and finally (iii) the radionuclides concentration in the well water after the elapsed time.

The algorithm may incorporate four zones with different properties for the vertical transport: the cover, the contaminated zone, the unsaturated zone and the saturated zone. The source is considered homogenous, without taking in account the spatial distribution of the radionuclides activity, and is modelled as an infiltration point where the vertical transport starts.

A simple water balance concept is used to estimate the amount of infiltrating water into the soil which will leach the radionuclides from the contaminated matrix (IAEA 1992). The annual infiltrating water rate can be estimated as a function of the cover failure. It may be necessary to consider both components: the intact portion and the failed portion. For the failed portion, the inflow rate will increase as a consequence of the cover cracking or erosion effects.

The infiltrated water will leach some radionuclides adsorbed in soil being contaminated after the contact with the waste material. A simplified model is adopted in our work considering a single-region flow transport where the water flow is assumed to be uniform through relatively homogeneous layers of soil profile (EPA 1996). The simplified model assumes an idealized steady-state and uniform leaching process to estimate the radionuclides concentration in the infiltrated water based on a chemical exchange process.

The leaching model is characterized by a sorption-desorption process where the radionuclide concentration is estimated as a function of the equilibrium partioning between the solid material and the solution. The degree of sorption between the two phases is described by a distribution or partitioning coefficient,  $K_d$ . The following equation is used to estimate the leachate concentration under equilibrium partitioning conditions (EPA 1996; Hung 2000):

$$C_{wt} = I_t / [A (D\theta + D\rho K_d)]$$
(1)

From the above equation, it is known that leachate concentration,  $C_{wt}$  (Bq/m³) is determined by (1) its  $K_d$  (cm³/g) value, which decides the relative transport speed of the radionuclide to that of water in the pore space; (2) soil properties such as bulk density,  $\rho$  (g/cm³), the volumetric water content,  $\theta$  (dimensionless); and (3) the extent of contamination, which is described by the contaminated zone thickness, D (m), area, A (m²) and the amount of radionuclide activity in the source, I_t (Bq).

Another important mechanism of release is uncontrolled seepage of contaminated liquids contained in the tailings pile. Seepage may initially occur due to the tailings liquids associated with the solids when placed. However, in a longer term, seepage is provoked by water seeping into the tailings moving the radionuclides as water moves through and out of the tailings (IAEA 1992).

#### The Radionuclides transport

#### The Vertical Transport

The radionuclides are considered to be mobilized sequentially in two directions: vertically downwards into the soil until it reaches an aquifer and then horizontally through the aquifer to a hypothetical well.

The flow in the vertical direction is simulated for different degrees of saturation depending on the properties of the geologic strata involved. It is also assumed that there is retardation during the vertical transport. The retardation factor ( $R_v$ ) is the ratio of the average pore water velocity to the radionuclide transport velocity and is calculated assuming that adsorption-desorption process can be represented by a linear isotherm. Following the simplest mathematical approach derived from the Freudlich isotherm equation, the retardation factor can be estimated with the following formula (EPA 1996; Hung 2000):

$$R_{v} = 1 + \frac{\rho K_{d}}{\epsilon R_{c}}$$
(2)

Concentrations of radionuclides in the well water are time-dependent and are function of two transport times – the breakthrough time (vertical transport time to reach the aquifer) and the rise time (horizontal transport time to reach the well). These parameters are combined to estimate the time necessary to transport vertically the radionuclides to the aquifer and also the water velocity in the vertical direction.

#### The Horizontal Transport

Among the great variety of hydrologic models available in the literature describing the contaminants transport in groundwater, most of them fail in considering the process of radionuclide decay and its sorption and in this way these models are not adjusted for the exposure assessment purpose.

Radionuclides transport and fate in groundwater follow the theoretical approach of the transport processes represented by the basic diffusion/dispersion-advection equation. The model uses the analytical solution for the one dimensional steadystate transport problem of a reactive substance with radioactive decay. The general equation describing the mass conservation law applied to a reactive solute can be represented by:

$$D\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - V\frac{\partial C}{\partial x} \pm \frac{r}{\theta} = \frac{\partial C}{\partial t}$$
(3)

In this equation, D represents the molecular diffusion coefficient  $(L^2.T^{-1})$ , C represents the solute concentration  $(M.L^{-3})$ , V represents the interstitial velocity  $(L.T^{-1})$ ,  $\theta$  represents the moisture content (dimensionless) and the r represents the mass produced or consumed. The term  $\pm r/\theta$  may have different forms depending on the kind of reactions involved. The component dispersive and diffusive is represented by  $\partial^2 C/\partial x^2$ , the advection is represented by  $V.\partial C/\partial x$  and the concentration gradient is represented by  $\partial C/\partial x$ .

For the radioactive substances, having a first order kinetic, the parameter r, describes the radioactive decay in the mass conservation law:

$$c = \frac{d(\theta C)}{dt} = -\lambda \theta C$$
(4)

Radionuclides that finally reach the aquifer will generally be transported at velocities lower or equal than the flow velocity of the aquifer due to retardation by the sorption phenomena. The retardation factor, R, is used to estimate the time that it takes to transport the radionuclides to the well located at a defined distance and can be estimated by the equation (2) assuming that all hydro-geologic parameters refers to the aquifer material, namely, the aquifer material density, the aquifer porosity (dimensionless) and the distribution coefficient between the radionuclide and the aquifer material.

The following expression describes the basic equation for the advective and dispersive transport with radioactive decay and retardation for the radionuclide transport in the groundwater:

$$D\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - V\frac{\partial C}{\partial x} - R\frac{\partial C}{\partial t} - \lambda RC = 0$$
(5)

Using this equation implies that the flow of the fluid carrying the radionuclides is steady, uniform and one-dimensional, that the dissolved radionuclides are in equilibrium with those adsorved by the solids in the aquifer formation and that the radioactive decay occurs for both dissolved and adsorved radionuclides. The analytical solution was obtained assuming the mathematical simplification as presented by Hung (Hung 1986) in his optimum groundwater transport model. The term for the contaminant concentration, C, was replaced by the rate of radionuclide transport, Q, in the previous equation (Hung 1986):

$$Q'(t) = Q_0 \left( t - \frac{RL}{V} \right) e^{\left[ -(\lambda_d RL)/V \right]}$$
(6)

One of the simplifications assumed is neglecting the dispersion term  $(\partial^2 Q/\partial x^2)$ and in this way Q'(t) (Bq/yr) represents the rate of radionuclide transport with the dispersion effects neglected. The others parameters represents the rate of radionuclides transport at x = 0, Q₀ (Bq/yr), the elapsed time, t (yr), the retardation factor, R (dimensionless), the distance from the disposal site to the well point, L (m), the interstitial groundwater velocity, V (m/yr), and the radioactive decay constant,  $\lambda_d$ (yr⁻¹).

Neglecting the dispersion in the basic transport equation will generate an inherent error that should be compensated. In this way, a correction factor is used to compensate the effects of longitudinal dispersion (Hung 1986).

The correction factor,  $\eta$ , is defined as a function of the Peclet number and the parameter expressed by  $\lambda_d$ .R.L/V. This parameter represents the ratio of the radioactive decay constant,  $\lambda_d$ , and the transport number V/(R.L). The Peclet number is a dimensionless parameter which expresses the diffusion process and the convective transport. The transport number can be estimated by the hydrologic system parameters (Hung 1986).  $[(n_1/2), (n_2/2), (n_2/$ 

$$\eta = \frac{e^{[(P_e/2)-(P_e/2)]\sqrt{1+(4\lambda_d R L)/(P_e V))]}}{e^{[-(\lambda_d R L)/V]}}$$
(7)

The final analytical solution for the radionuclides transport with the dispersion effects considered,  $Q_p(t)$  (Hung 1986):

$$Q_{p}(t) = \eta Q_{0} \left( t - \frac{RL}{V} \right) e^{\left[ -(\lambda_{d} R L)/V \right]}$$
(8)

#### The Radionuclides Concentration in the Well Water

The processes that control the radionuclides fate as they are transported from the source to the receptor may be divided into the radioactive decay and the transport - destiny. These last processes (sorption, ion exchange and precipitation) can facilitate or retard the movement of groundwater contaminants but radioactive decay always result in loss of the initial activity of the radionuclide. However, radioactive decay also result in an increase of radioactive or chemically toxic daughter products as the parent radionuclides disintegrates.

The leachate concentrations will be diluted by mixing with the ambient water along the travel path. As a first approximation, the degree of mixing may be estimated by the aquifer volumetric flow rate which means the total rate of flow available for dilution,  $W_A (m^3/yr)$ .

The concentration of a radionuclide in a downgradient receptor may subsequently be adjusted for dilution using the  $Q_p(t)$  obtained from the previous expression in conjunction with the aquifer volumetric flow rate. As a result, a simple algebraic equation (9) can be used to estimate the radionuclides concentration in the well water,  $C_{wp}$  (Bq/m³), corrected for dilution, using the radionuclide transport through the section of the well,  $Q_p$  (Bq/yr) and the rate of contaminated water flow available for dilution,  $W_A$  (m³/yr). This term,  $W_A$ , is calculated considering the lateral dispersion of the flow, the depth of the well penetrating into the aquifer, the groundwater velocity, the porosity of the aquifer material, the site width and the distance from the center of the contaminated site to the well. The final output is the radionuclides concentration in a hypothetical well location as function of the elapsed time (Hung 2000).

$$C_{wp} = \frac{Q_p}{W_A}$$
(9)

#### A Case Study

The model was applied to a specific contaminate site, the Urgeiriça uranium tailings. The Urgeiriça uranium mine is located in the north of Portugal, near Nelas (Viseu). The mine is surrounded by small farms and country houses, with most of the local population living in a village within about 2-km of the mine.

The mine's exploitation began in 1913 for radium extraction. The activity of the Urgeiriça mine was maintained until 1944 then exclusively dedicated to the radium production. In 1951, a chemical treatment unit for the production of low-grade  $U_3O_8$  concentrates was built, and in 1967 was transformed into a modern unit with the capacity to treat about 150 t of ore per day (Bettencourt et al. 1990). In 1991, local mining stopped but the facilities were still being used for the treatment of ores from other mines in the same region until 2000.

The exhausted exploitation and treatment of the uranium ore in the Urgeiriça mine, has led to an accumulation of large amounts of solid wastes (tailings). About  $4x10^9$  kg of rock material was routed into natural depressions confined by

dams that cover an area of about 0,13 km². A tailings pile is located near the mine and in addition, liquid effluents after neutralization and decantation were used to be discharged into a small streamlet. The solid wastes are composed mainly of sand and silt particles, transported as a pulp to the site from the counter-current decantation, that were previously submitted to grinding and acid leaching.

The model was tested in different situations varying some of the parameters involved. Some parameters were adopted from published data referring to the Urgeiriça site (Bettencourt et al. 1990; Reis et al. 2000; Pereira et al. 2004). The unknown parameters were estimated from available data.

Data concerning meteorological parameters, namely precipitation and evaporation were used for estimate the infiltrating water rate into the contaminated zone. The precipitation and evaporation data refers to the Nelas meteorological station. It was considered that there is no irrigation in the local so the only inflow rate to the water balance is due to precipitation rate.

The calculating procedure uses the following steps: i) estimative of infiltrating water rate, ii) estimative of the radionuclide concentration in the leachate, iii) the transport in the vertical direction through the unsaturated zone, vi) estimative of the radionuclide release rate to groundwater, v) the transport in the horizontal through the saturated zone and vi) the radionuclide concentration in the well.

The contaminated site is considered to be a total area of approximately 133 000  $m^2$ . We considered, for this case, the inexistence of a covering system in this area and that surface is homogeneous without cracking. The radionuclide concentration was also considered homogenous and equal in all the contaminated area: an average value for each radionuclide concentration was used.

Local hydro-geological conditions were considered for each zone where the radionuclides transport occurs (Pereira et al. 2004), namely for the contaminated zone, for the unsaturated zone and for the saturated zone, different density, porosity, hydraulic conductivity, radionuclide distribution coefficient and thickness, were used. The well is located at the downgradient edge of the contaminated zone.

We considered as initial conditions that for t = 0 the well water is not contaminated and the simulation is done from 0 year until 300 years after the groundwater contamination starts. For the breakthrough time no radionuclides can reach the aquifer until the model simulation exceeds the travel time. As final output we obtain the radionuclide concentration in the well water and also the cumulative rate of radionuclides transported to the well, after the time considered.

The nuclides initially considered were uranium, radium, thorium, polonium and lead. The concentration in the well water was calculated for each radionuclide.

The results presented were obtained for the same case study applied for uranium and radium. Other radionuclides were considered and the results were in accordance with the expected. Due to the slow rates of contamination migration, only radionuclides with relatively long half-life are of importance in the transport process. This is what happened with polonium: a nil concentration was obtained in the well water and it can be explained by the fact that polonium half-life is three minutes for the isotope ²¹⁸Po and  $1,6x10^{-4}$  seconds for the isotope ²¹⁴Po which means that their half-life is not enough to be mobilized by the groundwater flow and they will decay before they can reach the exposition point, the well water. The radionuclides ²³⁰Th and ²¹⁰Pb are generally not transported to significant distances due to the particle reactive nature of thorium, which will tend to react slowly in-situ with water, oxygen and other compounds; by in-situ decay forms a wide variety of compounds; the lead has a great tendency to be adsorbed by the aquifer sediments (although such transport may occur under acid conditions). Consequently, the radionuclides of primary concern are ²³⁸U, ²³⁴U and ²²⁶Ra. The figures bellow shows the results obtained for radium and total uranium (combined ²³⁴U and ²³⁸U).



Fig. 1. Radium activity concentration in the well water, Bq/L.



Fig. 2. Cumulative rate of radium release, Bq/yr.



Fig. 3. Uranium activity concentration in the well water, Bq/L.



Fig. 4. Cumulative rate of uranium release, Bq/yr.

### Conclusions

The work presented may be considered a first approach in modeling the radionuclide release and transport in the groundwater to the purpose of exposure assessment to contaminated water from wells located close to a uranium tailings pile. It predicts the cumulative amount of radionuclides flowing through a section and also the amount of radionuclides reaching the well point.

We should be aware that the application of an analytical solution is limited by its specific form of boundary conditions which can result from some approximation even before the analytical solution can be applied. This will generate some error due to the approximation of the boundary conditions. However, the magnitude of this error depends largely on the conformity between the local conditions and those of the theoretical model.

The model is idealized for a situation in which the hydrological strata can reasonably be approximated by a sequence of uniform, horizontal data.

Many soil specific parameters can affect the amount of time that it takes for a radionuclide to travel to groundwater. We should refer the difficulties that may be found when trying to obtain the data needed to characterize the soil specific parameters for the contaminated soil, the unsaturated zone and the saturated zone for a particular contaminated site. Also the water transporting the radionuclides depends on detailed variations of the hydraulic properties of the media through which the water passes and even during the site characterization phase these data are rarely available. The accuracy of the results predicted is determined by the accuracy of the effective input parameters used.

#### References

- Bettencourt A. O., Teixeira M. M., Elias M. D., Madruga M. J. (1990), Environmental Monitoring in Uranium Areas. In: Environmental Behaviour of Radium, Vol. 2. Technical Reports Series N.^o 310, pp. 281-294, IAEA, Vienna.
- EPA (1996), Documenting Ground-Water Modeling at Sites with Radioactive Substances. U.S. Environmental Protection Agency, 9355.0-60, EPA 402-R-96-003, PB96-963302, Washington, D.C.
- Hung C. Y. (1986), An Optimum Groundwater Transport Model for Application to the Assessment of Health Effects Due to Land Disposal of Radioactive Wastes. Proceedings of Nuclear and Chemical Wastes Management, Vol. 6, pp. 41-50.
- Hung C. Y. (2000), User's Guide for PRESTO-EPA-CPG/POP Operation System. U.S. Environmental Protection Agency, Version 4.2, EPA 402-R-00-007, Washington, D.C.
- IAEA (1992), Current Practices for the Management and Confinement of Uranium Mill Tailings. International Atomic Energy Agency, Technical Reports Series N. °335, IAEA, Vienna.
- Pereira A.J.S.C., Dias J.M.M., Neves L.J.P.F. & Nero J.M.G. (2004), Modelling Efficiency of a Rehabilitation Plan for a Uranium Mill Tailing Deposit (Urgeiriça, Central Portugal). XI International Congress of the Radiation Protection Association, Madrid, Spain, 23-28 May.
- Reis M., Faísca C., Brogueira A., Teixeira M. (2000), Avaliação da Exalação de ²²²Rn para a Atmosfera em Barragens de Estéreis das Minas da Urgeiriça. Report DPRSN Serie A, N.º 2, Sacavém, Portugal.

# MODELING THE TRANSPORT AND FATE OF CONTAMINANTS IN THE ENVIRONMENT: SOIL, WATER AND AIR

## MODELING THE TRANSPORT AND FATE OF CONTAMINANTS IN THE ENVIRONMENT: SOIL, WATER AND AIR

MARIA DE LURDES DINIS AND ANTÓNIO FIÚZA

Geo-Environment and Resources Center Research (CIGAR), Engineering Faculty of Oporto University, Rua Dr. Roberto Frias, s/n, 4465-024, Oporto, Portugal, <u>mldinis@fe.up.pt</u>; afiuza@fe.up.pt.

Abstract: The environmental effects originated by uranium mining activities result mainly from the wastes generated by the ore processing. Large quantities of radioactive wastes are generated in this extractive process requiring a safe management. Besides the radioactivity these wastes may also hold different amounts of chemicals used in the extraction process, toxic pollutants associated with the mineralization and precipitates provoked by pH or Eh alterations.

The main concern of waste management and long term stabilization is to confine the residues in order to reduce the dispersion of contaminants to concentrations that not exceed the trigger values considered to be safe: there is thus a need to ensure that the environmental and health risk from these materials are reduced to an acceptable level. However, the confinement will always represent a potential source of environmental contaminants release and transport in the environment, which may occur by natural erosion agents like rainfall or wind.

Keywords: Waste, disposal, release, dispersion, risk, environment.

#### 1. Introduction

Uranium mining activities generates large volume of wastes composed by overburden, waste rock and tailings. Generally, these materials are deposited in waste rocks piles or dumps. Uranium mill tailings are the solid residues resulting from the leaching of the ore.

The Environmental effects resulting from the uranium mining activities are mainly derived from the wastes generated by the ore processing. Wastes constituents of concern include radionuclides (uranium, radium, radon and thorium), arsenic, copper, selenium, vanadium, molybdenum, heavy metals and dissolved solids. The radionuclides in the tailings are more mobile and chemically reactive than in the original ore and may get into the environment becoming a contamination source to the soil, air, superficial water and groundwater. When modeling contaminant release and transport mechanisms for each environmental compartment, the major output chosen is the contaminant concentration in each exposition point selected (for instance, breathing air zone, superficial soil and well water). This will allow the assessment of doses using an additional exposure scenery, attempting to quantify the potential exposure levels of the hazard at the receptor site by answering to these main tasks: Which is the contaminant concentration in the exposition point? How much of a contaminant do people inhale or ingest during a specific period of time?

This work proposes a generic exposure model which has incorporated an atmospheric and an hydrologic transport model. In the atmospheric transport a two-dimensional model is used for calculating the flux diffusion from a radioactive waste disposal, having as result the hazard concentration at a defined distance from the soil (the breathing or mixing height) which will be the starting point for the dispersion in each wind direction and also in the dominant wind direction. For the hydrologic transport a two-direction model is proposed for simulating the contaminants release form the waste disposal and its migration process through the soil to the groundwater. The final result is the contaminant concentration in the groundwater as function of the elapsed time, at a defined distance from the waste disposal, where is considered to be located the exposition point represented by an hypothetical well.

#### 2. Methods and Results

#### 2.1. ATMOSPHERIC TRANSPORT MODEL

For the gaseous contaminants the release mechanism from the soil is generally based in the principles of diffusion across a porous medium. Basic diffusion equations are used for estimating the theoretical values of the gaseous flux from the waste material. The generic diffusion equation can be represented by a one-dimensional steady-state equation:

$$D\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \lambda C + \frac{R\rho\lambda E}{\varepsilon} = 0 \quad (1)$$

In this equation D (m².s⁻¹) represents the radon diffusivity,  $\lambda$  the radioactive decay constant (s⁻¹), C (Bq.m⁻³) the radon concentration in the pore space, R

# MODELING THE TRANSPORT AND FATE OF CONTAMINANTS IN THE ENVIRONMENT: SOIL, WATER AND AIR

(Bq.kg⁻¹) the radium concentration in the material,  $\rho$  (kg.m⁻³) the bulk density of the dry material, E (dimensionless) the radon emanation power coefficient for the pore spaces,  $\varepsilon$  (dimensionless) the total porosity and  $\theta$  (dimensionless) the moisture. The solution of the diffusion equation for an homogeneous medium represents the flux release from the tailings to the surface, J_t (Bq.m⁻².s⁻¹). For a system without cover we obtain (Rogers, 1984):

$$J_{t} = R\rho E \sqrt{\lambda D_{t}} \tanh\left(\sqrt{\frac{\lambda}{D_{t}}} x_{t}\right)$$
(2)

The contaminant concentration released is estimated by a box model formulation which is implicit a mass balance formulation. The box volume (V) is defined by its length (L), width (W) and the mixing height (h). As a consequence of a steady state assumption, we have that he pollutant concentration (C) is constant in time, the mass flow rate entering ( $\phi$ A) into the box is equal to the flow rate leaving the box (uSC):

$$V\frac{dC}{dt} = \phi A - uSC \quad (3)$$

The atmospheric dispersion is modeled by a modified Gaussian plume equation which estimates the average dispersion of the contaminants released from the source in each wind direction. The Gaussian model of a plume dispersion accounts for the gaseous contaminant transport from the source area to a downwind receptor and is represented by the equation of Pasquill as modified by Gifford (Chacki, 2000):

$$C = \frac{Q}{2\pi\mu\sigma_{y}\sigma_{z}}e^{\left[-1/2\left(\frac{y}{\sigma_{y}}\right)^{2}\right]}\left\{e^{\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{z-H}{\sigma_{z}}\right)^{2}\right]}+e^{\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{z+H}{\sigma_{z}}\right)^{2}\right]}\right\}}$$
(4)

This equation represents a Gaussian distribution, where C (Bq.m⁻³) represents the radionuclide concentration, Q (Bq.s⁻¹) the source strength, and H (m) the corrected source released height. Dispersion parameters,  $\sigma_y$  (m) and  $\sigma_z$  (m), are the standard deviations of the plume concentration in the horizontal and vertical directions respectively. The atmospheric transport is done at wind-speed (height-independent), u (m.s⁻¹), to a sampling position located at surface elevation, z (m), and transverse horizontal distance, y (m), from the plume centre.

#### 2.2. HYDROLOGIC TRANSPORT MODEL

A leaching model based on a sorption-desorption process is used for describing the contaminant release to the leaching solution. The leachate concentration,  $C_L$  (Bq.m⁻³), is determined by the a distribution or a partioning coefficient,  $K_d$  (cm³.g⁻¹) which describes the relative transport speed of the contaminant to that of water in the pore space; soil properties such as bulk density,  $\rho$  (g cm⁻³) and water content,  $\theta$ ; the extent of contamination, described by the contaminated zone thickness,  $x_t$  (m), area, A (m²) and the amount of contaminant in the source, I_t (Bq), (EPA 1996; Hung 2000):

$$C_{L} = I_{t} / [A (x_{t} \theta + x_{t} \rho K_{d})]$$
(5)

The transport for the dissolved contaminants is considered to occur either in the vertical direction through the unsaturated zone until an aquifer is reached either in the horizontal direction, through the saturated zone to an hypothetical well, where the contaminants become accessible to humans or other forms of life. The vertical flow is one-dimensional and the calculations are also performed in one-dimension. It is assumed that there is retardation during the vertical transport and it is estimated assuming that adsorption-desorption process can be represented by a linear isotherm which means that there is a linear relationship between the radionuclides concentration in the solid and liquid phases.

Movement and fate of radionuclides in groundwater follow the transport components represented by the basic diffusion/dispersion–advection equation. The following expression describes the basic equation for the advective and dispersive transport with radioactive decay and retardation for the radionuclide transport in the groundwater:

$$D\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - V\frac{\partial C}{\partial x} - R\frac{\partial C}{\partial t} - \lambda RC = 0 \quad (6)$$

In this equation, D represents the molecular diffusion coefficient  $(L^2.T^{-1})$ , C represents the solute concentration  $(M.L^{-3})$ , V represents the interstitial velocity  $(L.T^{-1})$ , R represents the retardation factor due the sorption phenomena. The component dispersive and diffusive is represented by  $\partial^2 C/\partial x^2$ , the advection is represented by  $V \partial C/\partial x$  and the concentration gradient is represented by  $\partial C/\partial x$ . In the analytical solution the term for the contaminant concentration, C, was replaced by the rate of radionuclide transport, Q'(t), (Hung 1986):

$$\mathbf{Q}'(\mathbf{t}) = \mathbf{Q}_0 \left( \mathbf{t} - \frac{\mathbf{R} \mathbf{L}}{\mathbf{V}} \right) \mathbf{e}^{\left[ -(\lambda_d \mathbf{R} \mathbf{L}) / \mathbf{V} \right]}$$
(7)

The rate of radionuclide transport to the well point is represented by Q'(t) (Bq.yr⁻¹), the rate of radionuclides transport at x = 0 is represented by Q₀,
# MODELING THE TRANSPORT AND FATE OF CONTAMINANTS IN THE ENVIRONMENT: SOIL, WATER AND AIR

(Bq.yr⁻¹), t (yr) is the elapsed time and L (m) the distance from the disposal site to the well point.

#### 2.3. A CASE STUDY

The model was applied to a specific case of contaminants from a uranium waste disposal. The contaminants of main concern were considered to be radon in air and radium in groundwater. The exposition point for the atmospheric model is a receptor located about 2 km from the source and for the hydrological model the exposition point is a hypothetical well located about 100 meters from the source.

The final output for the atmospheric model is the radon concentration at a defined distance from the source, in each wind direction and in the dominant wind direction, where is considered to be located the receptor. For the hydrological model the final outputs are the radium concentration in the well water and the corresponding cumulative rate of radium transported to the well after the time considered.

The necessary parameters for the simulation were adopted from some local measurements made in this site (Vicente 2005).

Local meteorological data, namely wind velocity and frequency, was used for simulating the dispersion in each direction (N S E W NW NE SE SW). These data refers to a local automatic meteorological station (INAG 2005). The dominant wind direction is NW. The unknown parameters were estimated from available data.

The contaminated site is composed by  $1,6x10^6$  ton of two different kind of wastes with a total area of approximately 75000 m². The total waste volume is about  $1,5x10^3$  m³. It was assumed in the simulation that there is no covering system although there is some natural vegetation partially covering the site.

The air breathing or mixing height was defined as 1,0 m. The radon concentrations were calculated in each sector at this height. The concentration at the breathing height in the dominant wind direction refers only to the boundary side that limits the respective sector. The dispersion results can be seen in the figures below.

Local hydro-geological condition were considered for each zone where the radionuclides transport occurs, namely for the contaminated zone, for the unsaturated zone and for the saturated zone, different density, porosity, hydraulic conductivity, radionuclide distribution coefficient and thickness were used. The well is located at the downgradient edge of the contamination source.

Meteorological data, precipitation and evaporation from the same automatic meteorological station were used for estimate the infiltrating water rate into the

contaminated zone. The figures bellow shows the results obtained for radium in groundwater.



Figure 1: Radon dispersion in each wind direction, Bq.m⁻³.



Figure 2: Radon dispersion in each wind direction, Bq.m⁻³.



Figure 3: Radon dispersion, dominant wind direction, Bq.m⁻³.

# MODELING THE TRANSPORT AND FATE OF CONTAMINANTS IN THE ENVIRONMENT: SOIL, WATER AND AIR



Figure 4: Radium activity concentration in the well water, Bq/L.



Figure 5: Cumulative rate of radium release, Bq.

### 3. Conclusions

Contaminants may travel through the atmosphere, soil, groundwater and superficial water affecting the organisms that inhabit in these media. The exposure modeling quantifies the impacts of contaminants as they travel through more than one of these compartments.

The atmospheric model describes the contaminant transport from the source area to a downwind receptor and simulation quantifies the contaminant dispersion concentration in each wind direction.

The hydrologic model quantifies the movement of subsurface water and provides inputs to contaminant transport models. Simulation provides

contaminant behaviour in the groundwater and quantitative assessments for the contamination in the exposition point.

The model limitations are mostly related with the application of an analytical solution which is limited by its specific form of boundary conditions. The boundary conditions are stipulated in order to solve the unknowns in the problem domain. This will generate some error which magnitude will depend on the conformity between the local conditions and those stipulated in the model. The predicts accuracy of models are often compromised since some key parameters are imperfectly known and may have to be estimated from literature references in the absence of actual site specific measurements.

Many soil specific parameters shows a great variability both in space and in time. Also these parameters will vary over the year due to climatic changing. This will generate some difficulties in obtain the data needed to characterize the contaminated site.

#### References

- Chacki S. and Parks B., (2000), Update's User's Guide for Cap88-PC, Version 2.0. U. S. Environmental Protection Agency, EPA 402-R-00-004.
- EPA (1996), Documenting Ground-Water Modeling at Sites with Radioactive Substances. U.S. Environmental Protection Agency, 9355.0-60, EPA 402-R-96-003, PB96-963302, Washington, D.C.
- Hung C. Y. (1986), An Optimum Groundwater Transport Model for Application to the Assessment of Health Effects Due to Land Disposal of Radioactive Wastes. Proceedings of Nuclear and Chemical Wastes Management, Vol. 6, pp. 41-50.
- Hung C. Y. (2000), User's Guide for PRESTO-EPA-CPG/POP Operation System. U.S. Environmental Protection Agency, Version 4.2, EPA 402-R-00-007, Washington, D.C.
- INAG (2005), <u>http://snirh.inag.pt</u>, Water Resources Database, data extracted from the Mesquitela automatic monitoring station.
- Rogers V. C. and Nielson K. (1984), Radon Attenuation Handbook for Uranium Mill Tailings Cover Design. U.S. Nuclear Regulatory Commission, NUREG/CR-3533.
- Vicente, A. M. (2005), Potencial de Exalação do Gás Radão em Esccombreiras de Antigas Explorações de Urânio. Dissertação para a obtenção do grau de Mestre em Geociências. Departamento de Ciências da Terra. Faculdade de Ciências e Tecnologia. Universidade de Coimbra.

# EXPOSURE ASSESSMENT TO RADIONUCLIDES TRANSFER IN FOOD CHAIN

#### SHORT TITLE: RADIONUCLIDES TRANSFER IN FOOD CHAIN

MARIA DE LURDES DINIS AND ANTÓNIO FIÚZA Geo-Environment and Resources Research Centre (CIGAR) Engineering Faculty, Porto University, Rua Dr. Roberto Frias, 4200-465, Porto, Portugal. <u>mldinis@fe.up.pt</u>; <u>afiuza@fe.up.pt</u>

Abstract: Generally sites with radioactive contamination are also simultaneously polluted with many other different toxics, especially heavy metals. Besides the radioactivity, these wastes may also hold different amounts of chemicals, toxic pollutants and precipitates. The radionuclides released into the environment can give rise to human exposure by the transport through the atmosphere, aquatic systems or through soil sub-compartments. The exposure may result from direct inhalation of contaminated air or ingestion of contaminated water, or from a less direct pathway, the ingestion of contaminated food products. Contamination of the trophic chain by radionuclides released into the environment will be a component of human exposure to ionizing radiations by transferring the radionuclides into animal products that are components of the human diet. This can occur by first ingestion of contaminated pasture by animals and then by ingestion of animal products contaminated. The relevant incorporation of the radionuclides into cow's milk is usually due to the ingestion of contaminated pasture. This transfer process is often called the *pasture-cow-milk* exposure route. A compartment dynamic model is presented to describe mathematically the radium behaviour in the *pasture-cow-milk* exposure route and predict the activity concentration in each compartment. The dynamic model is defined by a system of linear differential equations with constant coefficients based in a mass balance concept. For each compartment a transient mass balance equation defines the relations between the inner transformations and the input and output fluxes. The concentration within each compartment is then transcribed to doses values based on a simplified exposure pathway and a pre-defined critical group.

Keywords: exposure assessment, radium, dynamic model, differential equations

#### 1. Introduction

The environmental effects originated by uranium mining activities result mainly from the large volume of residues produced by the ore processing. Besides the radioactivity these wastes may also hold different amounts of chemicals, toxic pollutants and precipitates originated by pH or Eh alterations. The radionuclides released from these wastes can give rise to human exposure by transport through the atmosphere, aquatic systems or through soil subcompartments. The exposure may result from direct inhalation of contaminated air or ingestion of contaminated water, or from a less direct pathway - the ingestion of contaminated food products. Nevertheless this pathway can be quite significant as a result of biological concentration in the foodstuff.

The exposure resulting from airborne particulates containing ²³⁰Th, ²²⁶Ra, and ²¹⁰Pb as well as uranium, is primary by the inhalation of particles and or through the food chain. The predominant target effective dose from these radionuclides is to the bones. Non-radioactive metals and other chemical reagents may also induce chronic or acute health effects. The harmful effects of radionuclides do not come from their chemistry within tissue, but from the radiation associated with radioactive decay which increases the risk of cancer.

Radionuclides deposition can be a significant pathway to human exposure by first ingestion of contaminated pasture by animals and then by the ingestion of animal products contaminated (dairy or meat). Plants in general tend to accumulate radionuclides in a scale dependent on many factors and within animals and humans, certain tissues tend to accumulate selected radionuclides. The relevant incorporation of the radionuclides in the milk is usually due to the ingestion of contaminated pasture. This transfer process is often called the *pasture-cow-milk* exposure route. We developed a compartment dynamic model to describe mathematically the radionuclide behaviour in the *pasture-cow-milk* exposure route and predict the activity concentration in each compartment following an initial radionuclide deposition.

#### 2. Methods and Results

#### 2.1. DESCRIPTION OF THE MODEL

The dynamic model consists of a system of linear differential equations with constant coefficients describing the mass balance in different compartments taking in account the fluxes in and out of the compartment and the radionuclides decay. For each compartment, a transient mass balance equation defines the relations between the inner transformations and the input and output fluxes. The fluxes between the compartments are estimated with a

transfer rate proportional to the amount of the radionuclide in the compartment. The model also considers possible transformations within the compartment.

The first model considered for the propagation through the food chain is relatively simple and classic and considers as initial state a contaminated pasture that is consumed by a cow that produces a certain quantity of milk. The transfer coefficients for soil and pasture compartments are expressed as function of soil characteristics and ecological parameters. A more sophisticated model is also described taking into account the spread of radium within the cow by including the sub-compartments involved: the gastrointestinal system (GIT), the plasma and the bones. The transfer coefficients for the sub-compartments within the cow are combined with biological half-lives which is the time taken for the radionuclide activity concentration in tissues or milk be reduced by one half of its initial value.

The processes involved in the radionuclide transfer to cow milk resulting from consumption of contaminated pasture are: i) pasture deposition; ii) deposition on the soil; iii) retention of radionuclides by pasture over a certain period of time; iv) root uptake; v) consumption of contaminated pasture by the cow and vi) the secretion of radionuclides into the milk. A scheme of the conceptual model is given in Figure 1.



Figure 1: Conceptual scheme of the model for the pasture-cow-milk exposure route.

For the compartment 1 the input fluxes results from the fraction of the radionuclides deposition (d,  $Bq \cdot m^{-2} \cdot d^{-1}$ ) that is not intercepted by pasture (1-F) and goes directly to the soil, the radionuclides weathering from pasture surface ( $k_{21}$ ,  $d^{-1}$ ), after the material has been deposited onto the pasture surface it will

begin to weather off the surface, and the transfer from pasture to soil  $(k_{31}, d^{-1})$ , considering that root uptake is a reversible process described with first order kinetic equations for the root uptake balance (Teale *et al*, 2003; IAEA, 2002). The outputs fluxes results from losses in the compartment 1 due to radioactive decay and environmental processes related to radionuclide migration in soil  $(k_{11}, d^{-1})$ , resuspension of radioactive particles from soil and subsequent deposition onto pasture surface  $(k_{12}, d^{-1})$  and root uptake  $(k_{13}, d^{-1})$ . The transient mass balance equation for compartment 1 is defined by the following equation:

$$\frac{dA_1}{dt} = d \cdot (1 - F) \cdot A_s - k_{11}A_1 - k_{13}A_1 - k_{12}A_1 + k_{21}A_2 + k_{31}A_3$$
(1)

For the compartment 2 the inputs fluxes results from the fraction of radionuclides deposition intercepted by pasture surface (F), the resuspension of radioactive particles from soil and subsequent deposition onto pasture surface  $(k_{12}, d^{-1})$  and the translocation from pasture roots to the interior of the grass or to any other edible parts  $(k_{32}, d^{-1})$ . The output fluxes results from the losses in this compartment due to radioactive decay  $(k_{22}, d^{-1})$ , the radionuclides weathering from pasture surface  $(k_{21}, d^{-1})$  and by the ingestion of contaminated pasture  $(k_{24}, d^{-1})$ . The transient mass balance equation for compartment 2 is defined by the following equation:

$$\frac{dA_2}{dt} = d \cdot F \cdot A_p + k_{12}A_1 - k_{22}A_2 - k_{21}A_2 - k_{24}A_2 + k_{32}A_3$$
(2)

The input flux in compartment 3 results from the radionuclides transfer from soil to pasture by root uptake  $(k_{13}, d^{-1})$ . The outputs fluxes in this compartment results from the losses by radioactive decay  $(k_{33}, d^{-1})$ , the translocation from pasture roots to the interior of the grass or to other edible parts  $(k_{32}, d^{-1})$  and the transfer from pasture roots to soil  $(k_{31}, d^{-1})$ , considering that root uptake is a reversible process. In the simpler approach root uptake transfer  $(k_{13})$  is estimated with the soil to grass transfer factor, TF (Bq·kg⁻¹, fresh mass/Bq·kg⁻¹, dry mass), pasture roots biomass, M_p  $(kg \cdot m^{-2})$ , the soil mass in soil compartment, M_s  $(kg \cdot m^{-2})$ , and the equilibrium root uptake transfer,  $k_{31}$  $(d^{-1})$  (Teale *et al*, 2003). The transient mass balance equation for compartment 3 is defined by the following equation:

$$\frac{dA_3}{dt} = k_{13}A_1 - k_{33}A_3 - k_{32}A_3 - k_{31}A_3$$
(3)

and k₁₃ is defined by

$$k_{13} = TF \cdot \frac{M_p}{M_s} \cdot k_{31}$$
(4)

For the compartment 4, the input flux results from the cow intake of contaminated pasture  $(k_{24}, d^{-1})$  and the outputs results from the losses in this compartment due to radioactive decay  $(k_{44}, d^{-1})$  and the secretion into cow's milk  $(k_{45}, d^{-1})$ . The transient mass balance equation for compartment 4 is defined by the following equation:

$$\frac{dA_4}{dt} = k_{24}A_2 - k_{44}A_4 - k_{45}A_4 \quad (5)$$

Finally, for the compartment 5, the input flux results from radionuclides secretion into cow's milk ( $k_{45}$ ,  $d^{-1}$ ) and the output is the loss due to radioactive decay ( $k_{55}$ ,  $d^{-1}$ ). The transient mass balance equation for compartment 5 is defined by the following equation:

$$\frac{dA_5}{dt} = k_{45}A_4 - k_{55}A_5 \quad (6)$$

In the previous equations, d represents the total deposition  $(Bq \cdot m^{-2} \cdot d^{-1})$ ,  $A_s$  the soil compartment area  $(m^2)$ ,  $A_p$  the pasture compartment area  $(m^2)$ , F is the interception factor (dimensionless) defined as the fraction of the activity deposited on the ground (soil and pasture) which is intercepted by vegetation during the time of deposition,  $k_{ii}$  are the losses from compartment i  $(d^{-1})$  and  $k_{ij}$  are the kinetic transfer from compartment i to compartment j  $(d^{-1})$ . The equations system can be represented in the following matrix form and solved numerically in appropriate software.

$\left[\frac{dA_1}{dt}\right]$		$-k_{11} - k_{13} - k_{12}$	+ k ₂₁	+ k ₃₁	0	0	A ₁		$d \cdot (1 - F) \cdot A_s$
$\left  \frac{dA_2}{dt} \right $		+k ₁₂	$-k_{22} - k_{21} - k_{24}$	+ k ₃₂	0	0	A ₂		$d\cdot F\cdot A_p$
$\left  \frac{dA_3}{dt} \right  =$	=	+ k ₁₃	0	$-k_{33}-k_{32}-k_{31}$	0	0	A ₃	+	0
$\frac{dA_4}{dt}$		0	+ k ₂₄	0	$-k_{44} - k_{45}$	0	$A_4$		0
$\left\lfloor \frac{\mathrm{dA}_5}{\mathrm{dt}} \right\rfloor$		0	0	0	+ k ₄₅	-k ₅₅	A ₅		0

Figure 2: Matrix form of the balance equations from the conceptual model (simple).

In the complete model, the radium distribution within the cow is modelled by including 3 more sub-compartments: the gastrointestinal system (GIT), the plasma and the bones. The scheme for the conceptual model describing the radionuclide transfer within the cow adapted from the International Commission on Radiological Protection (ICRP) biokinetic models (Leggett *et al*, 2003) is represented in Figure 3.



Figure 3: Conceptual model for radium kinetics in the cow (IAEA, 2004; Leggett et al, 2003).

Within animals and humans certain tissues tend to accumulate selected radionuclides. From what is known about radium retention and distribution in the organism after oral exposure, radium is quickly distributed to body tissues followed by a rapid decrease of its content in blood. It later appears in the urine and feces. Retention in tissues decreases with time following maximal uptake, not long after the intake to blood. Bones become the principal radium repository in the body and this is due to its chemical similarity with calcium. Two compartments are considered for bones: a bone surface compartment (5) in which radium is retained for short periods and a bone volume compartment (6) in which radium is retained for long periods (Leggett *et al*, 2003). The system of linear equations for this conceptual model is obtained as previous by defining a transient mass balance equation for each compartment. The resulting matrix with constant coefficients is represented below.

$\left\lceil dA_1 \right\rceil$	$-k_{11}-k_{12}$	k ₂₁	0	0	0	0	0	Δ.	$d \cdot (1 - F) \cdot A_s$
$\frac{dt}{dA_2}$	k ₁₂	$-k_{22}-k_{21}-k_{23}$	0	0	0	0	0	A1 A2	$d\cdot F\cdot A_p$
$\frac{dt}{dA_3}$	0	k ₂₃	$-k_{34}-k_{33}$	0	0	0	0	A ₃	0
$\left  \frac{dA_4}{dt} \right  =$	0	0	k ₃₄	$-k_{44} - k_{45} - k_{47}$	k ₅₄	k ₆₄	0	A ₄	+ 0
$\frac{dA_5}{dt}$	0	0	0	k45	$-k_{56}-k_{55}-k_{54}$	0	0	A ₅	0
$\frac{dA_6}{dt}$	0	0	0	0	k56	$-k_{66}-k_{64}$	0	A ₆	0
$\begin{bmatrix} \frac{1}{dt} \end{bmatrix}$	0	0	0	k ₄₇	0	0	- k ₇₇	A ₇	0

Figure 4: Matrix form of the balance equations from the conceptual model (complete).

#### 2.2. EXAMPLE OF MODEL SIMULATION

The first model considered for the radionuclides propagation through the food chain is relatively simple and classic. It considers as initial state a contaminated pasture that is consumed by a cow that produces a certain quantity of milk. In this simpler model the processes involved in radionuclides transfer to pasture are deposition, resuspension and root uptake. Deposition is the only contamination source and there is no pasture irrigation considering that rainfall water is enough for pasture growing.

A simulation was done for a constant radionuclide input of  $1 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$  in a hypothetical case study. The necessary parameters were adopted from different sources: some parameters were adopted from measurements referring to a particular contaminated site (Falcão *et al*, 2005) and others were adopted from published data on radionuclide behaviour in animals, such as distribution or retention in different organs and tissues and subsequent excretion routes (IAEA, 2004). The unknown parameters were estimated from available data.

The rate at which the radionuclides on pasture surface are weathered off onto the soil has been estimated using a weathering half-life. A default value of 14 days has been adopted which is consistent with literature values and the value for the kinetic constant representing this transfer process ( $k_{21}$ ) is 0,495 d⁻¹ (Teale *et al*, 2003).

The radionuclide migration down the column soil and out of reach of the roots can be modeled using a loss from the soil compartment based on a soil migration half-life. The default value adopted from literature is 2,5 x  $10^4$  days (Hoffman *et al*, 1984) and the value for the kinetic constant, k₁₁, which represents the radium decay losses and the losses due to its migration in soil, is 2,82 x  $10^{-5}$  d⁻¹.

Available data on root uptake is in the form of a transfer factor defined as the ratio of activity concentration in the edible part of the plant (Bq·kg⁻¹, fresh mass) to that in the soil (Bq·kg⁻¹, dry mass), once equilibrium has been reached. This transfer pathway was included in the conceptual model although it is not relevant when the contamination is due to deposition. To model this process, a pair of transfer rates between the soil and the roots compartments was used. The transfer factor implies equilibrium conditions which should be reached quickly to legitimate its use (Teale *et al*, 2003). To achieve this, the equilibrium rate was set to one day and the resulting value for k₃₁ is 0,693 d⁻¹. The soil to plant transfer factor for radium in pasture, k₁₃, suggested in literature is 0,08 (IAEA, 1994).

The initial conditions were defined for the two first compartments (soil and pasture). For the other compartments the initial activity was considered to be inexistent. Pasture and soil compartments have an area of  $1\ 000\ m^2$  each and the

grass biomass is 1 kg·m⁻². The same value was considered for the grass roots biomass. Pasture consumption is 50 kg·d⁻¹ and the daily milk production is 12 kg.

For the exploration of the model several radionuclides were defined as relevant but, for the present, only radium was considered in the calculations, due to the availability of data. The endpoints are radium concentrations in soil, pasture, cow (whole body) and milk, in the simpler model. The results of the model calculations for radium activity can be seen in the figures below:



Figure 5: Time variation of ²²⁶Ra activity in each compartment, Bq.



Figure 6: Time variation of ²²⁶Ra activity in each compartment (amplified), Bq.

To transcribe the results to doses values it is necessary to estimate the concentration in each compartment. This can be done by computing the ratio

between the resulting activity and the volume of the respective compartment. The results of the model calculations for concentration in each compartment with units of  $Bq\cdot kg^{-1}$  are represented in the figures below.



Figure 7: Time variation of ²²⁶Ra concentration, Bq/kg.



Figure 8: Time variation of ²²⁶Ra concentration (amplified), Bq/kg.

Considering the radionuclide transfer within the cow for modelling the distribution, retention and elimination in each compartment, the endpoints are GIT, plasma, bone and milk. For the exploration of this model the same conditions from the previous exploration were considered. Root uptake was negligee for model simplicity and considering the fact this transfer pathway is not relevant when the pasture contamination is primary due to deposition.

Radium transfer rates for excretion ( $\lambda_6$ ), git-blood (included in  $k_{34}$ ), urinary excretion ( $\lambda_7$ ), milk excretion (included in  $k_{47}$ ), blood-bone surface (included in  $k_{45}$ ), bone surface-blood (include in  $k_{54}$ ), bone surface-bone (included in  $k_{56}$ ) and bone-blood (included in  $k_{64}$ ) were selected from specialized literature (IAEA, 2004; Leggett *et al*, 1987; 2003).

The results of the model calculations for radium activity and concentration are represented in the next figures:



Figure 9: Time variation of ²²⁶Ra activity in each compartment within the cow, Bq.



Figure 10: Time variation of ²²⁶Ra activity in each compartment within the cow (amplified), Bq.



Figure 11: Time variation of ²²⁶Ra concentration within the cow, Bq/kg.



Figure 12: Time variation of ²²⁶Ra concentration within the cow (amplified), Bq/kg.

Radium concentration of pasture grass decreases with time after deposition. The concentration in soil also decreases with time although, initially it has a slight increasing probably due to the activity removed from pasture by the environmental processes and transferred to soil. The radium concentration in soil is quite lower than concentration in pasture which can be explained by the fact that grass leaves intercept almost the deposition and beside that, soil surface is covered with the pasture limiting the deposition onto the soil. Roots concentration is very low which confirms that this pathway is negligible in case pasture contamination is due to deposition.

Radium concentration in cow (whole organism) reaches its maximum quickly and then it decreases with time. Radionuclides present in cow's diet are

probably absorbed from the gastrointestinal tract to blood. Radium is eliminated from the body, mainly from the feces with smaller amounts being excreted in the urine (Leggett *et al*, 2003). Some organs and tissues, notably bones, have the capacity to concentrate radium from blood and although some of the radium is excreted through the feces and urine over a long time, a portion will remain in the bones throughout the organism's lifetime. ICRP considers that radium removal from bone volume to blood occurs very slowly during organism life having a biological half-time of about 1200 days (Leggett *et al*, 1987). Less notably but also important, radium can be concentrated in mammary glands and be present in the milk of lactating animals. For this reason, the radium transfer from cow diet to milk has received particular attention.

#### 3. Conclusions and discussion

A compartment model has been developed to predict the activity concentration in *pasture-cow-milk* exposure route. A more complete model is also described for radium distribution, retention and elimination within the cow by including the sub-compartments affected by these processes: GIT, plasma and bones.

The important routes of contamination have been identified as bases for determining the modeling approach and pasture intake was considered to be a major source of radium excreted in milk (Kirchmann *et al*, 1972).

There are some research topics that should be addressed in order to obtain a more realistic quantification of radium transport in food chain than is currently possible, in the absence of site-specific data.

The parameters independent of the radionuclide, measures environmental and ecological characteristics which vary from site to site and also with the spatial scale considered. These parameters related to vegetation, soil and fauna characteristics, can be directly obtained from site investigations or estimated with simple models.

The parameters dependent of the radionuclide are related with processes responsible for differences in radionuclides distribution in the compartments, their retention and elimination from the system. Most of these parameters present a substantial data gaps. Some of these gaps could be filled with data obtained from on-going site investigation. However, we should be aware that these experimental data will always and only represent a limited set of environmental conditions. For example, plant uptake of radium has been proven to occur on a number of radium contaminated sites although the extent to which it occurs is variable. For a plant to take up radium, a soluble or exchangeable form of this radionuclide must be present (Baker *et al*, 2005). Without these conditions any direct contamination of the pasture surface will dominate the

activity concentration in the pasture. Processes such as root uptake and direct soil contamination will only be important when there is no direct deposition onto pasture surface (Teale *et al*; Watson *et al*, 1983).

The transfer model to animals requires further testing, which could be done by performing measurements of radionuclide concentrations in animals and in their feed. Literature documenting thropic transfer of radium from feed to animal products is not much and although there are numerous publications presenting radium content of milk and meat products from market basket surveys (Watson *et al*, 1983) most of literature does not contain the necessary information of radium concentration in the animal's diet from which the products were obtained.

Concentrations in the specific organs could be estimated from empirical measures ratios between concentrations in organs and in the whole body or with the help of more detailed kinetic models (Avila *et al*, 2006). The quantities that can be monitored during organism life include whole-body radium content, blood concentration, urinary and fecal excretion rate and milk secretion. Until now direct observation *in vivo* of radium retention in bone compartment has not been possible and what has been learned about it has been inferred from *postmortem* observations and with modeling studies (BEIR, 1988).

#### Acknowledgements

This work has been carried out with the financial support of Foundation for Science and Technology (FCT-MCES).

#### References

- Avila, R., Facilia, A. B., Model of Long-Term Transfer of Radionuclides in Forests. Technical report TR-06-08. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. Sweden 2006. Journal of Radiological Protection 25, 127-140, 2005.
- Baker, A. C., Toque C., A review of the potential for radium luminising activities to migrate in the environment. Journal of Radiological Protection 25, 127-140, 2005.
- BEIR, Health Effects of Radon and Other Internally Deposited Alpha-Emitters, National Academy Press, Washington D.C., BEIR IV, Committee on the Biological Effects of Ionizing Radiations, 1988.
- Falcão, J. M., Carvalho, F. P., Leite, M. R., Alarcão, M., Cordeiro, E., Ribeiro, J., MinUrar, Minas de Urânio e seus Resíduos: Efeitos na Saúde da População. Relatório científico I, 2005.
- Hoffman, F.O. Bergstrom, U. et al., Comparison of Predictions from Internationally Recognizes Assessment Models fort the Transfer of Selected Radionuclides Through Terrestrial Food Chains. Nuclear Safety 25, 533:564, 1984.
- IAEA (International Atomic Energy Agency), Handbook of parameters values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environments produced in collaboration with the International Union of Radioecologists, Vienna, Technical Report 364, IAEA 1994.

- IAEA, Biomass 1, Modelling the migration and accumulation of radionuclides in forest ecosystems. Report of the Forest Working Group of the Biosphere Modelling and Assessment (Biomass) Programme, Theme 3, 2002.
- IAEA, Biomass 7, Testing of environmental transfer models using data from the remediation of a radium extraction site. Report of the Remediation Assessment Working Group of Biomass Theme 2, 2004.
- Kirchmann, R., LaFontaine, A., Van den Hoek, J. and Koch, G., Comparison of the rate of transfer to cow milk of ²²⁶Ra from drinking water and ²²⁶Ra incorporated in hay. Comptes Rendus des Seances de la Societe de Biologie et de ses Filiales 166(11): 1557-1562, 1972.
- Leggett, R. W and Eckerman, K. F., Dosimetric Significance of the ICRP's Updated Guidance an Models, 1989-2003, and Implications for U. S. Guidance. Oak Ridge National Laboratory, 2003. ORNL/TM-2003/207.
- Leggett, R. W., Eckerman, K. F. et al, Age-specific Models for Evaluating Dose and Risk from Internal Exposures to Radionuclides. Oak Ridge National Laboratory, 1987. ORNL/TM-10080.
- Teale, J. B., Modelling Approach for the Transfer of Actinides to Fruit Species of Importance in the UK. NPRB-W46, 2003.
- Watson, A. P., Etnier, E. L. and McDowell-Boyer, L. M., Radium-226 in Drinking Water and Terrestrial Food Chains: A Review of Parameters and an Estimate of Potential Exposure and Dose. Oak Ridge National Laboratory, 1983. ORNL/TM-8597.