AVALIAÇÃO DAS VULNERABILIDADES RADIOLÓGICAS NA BACIA DO RIO MONDEGO E PROTEÇÃO DOS ECOSSISTEMAS DULÇAQUÍCOLAS

EVALUATION OF RADIOLOGICAL VULNERABILITIES IN THE BASIN OF RIVER MONDEGO AND PROTECTION OF FRESHWATER ECOSYSTEMS

Fernando P. Carvalho
Laboratório de Proteção e Segurança Radiológica /// Instituto Superior Técnico (IST/CTN), Universidade de Lisboa /// E-mail: carvalho@itn.pt

João M. Oliveira
Laboratório de Proteção e Segurança Radiológica /// Instituto Superior Técnico (IST/CTN), Universidade de Lisboa

Margarida Malta
Laboratório de Proteção e Segurança Radiológica /// Instituto Superior Técnico (IST/CTN), Universidade de Lisboa

RESUMO: Os resultados da monitorização da radioatividade na bacia do Rio Mondego, efetuada em 2012, são apresentados com detalhe. Estes resultados comprovam a existência de escombros com elevadas concentrações de radionuclidos em vários sítios de antigas minas de urânio localizados junto de afluentes do Rio Mondego. Alguns destes sítios mineiros foram já objeto de intervenções de remediação ambiental com a finalidade de reduzir a dispersão da radioatividade. No entanto, as análises da água do Mondego mostraram, em época de caudal elevado, que os valores de concentrações de radionuclidos dissolvidos foram relativamente baixos, embora as concentrações determinadas na matéria em suspensão e nos sedimentos do leito do Mondego e de vários afluentes tenham revelado a persistência da contaminação radioativa. Como muitos dos sítios das antigas minas de urânio não foram intervencionados, e neles subsistem escombreiras com materiais radioativos, assinalam-se as principais vulnerabilidades da bacia do Rio Mondego no tocante à contaminação radioativa. Para assegurar a proteção eficaz da bacia hidrográfica do Mondego há ainda necessidade de introduzir o recurso a zonas húmidas para tratamento suplementar das águas de minas já tratadas quimicamente, e antes da sua descarga para as linhas de água.

Palavras-chave: Bacia do Mondego; Qualidade da água; Minas de urânio; Radioatividade; Rio Dão

ABSTRACT: The results of radioactivity monitoring in the Mondego River basin, performed in 2012, are presented in detail. These results confirm the presence of uranium waste with high concentrations of radionuclides in various former uranium mine sites located near River Mondego tributaries. Some of these mine sites have been the subject of environmental remediation measures in order to reduce the dispersion of radioactivity. However, analyzes of Mondego water in high flow season showed that values of dissolved radionuclide concentrations were relatively low, although concentrations in the suspended matter and in riverbed sediments of Mondego and tributaries have shown the persistence of radioactive contamination. As many of the sites of former uranium mines were not remediated yet and radioactive waste materials remain there, the main vulnerabilities of the basin Rio Mondego with regard to radioactive contamination were assessed. To ensure effective protection of Mondego watershed the use of wetlands for further treatment of chemically treated mine water is justified.

Keywords: Mondego Basin; Water quality; Uranium mining; Radioactivity; River Dão

1. INTRODUÇÃO

A bacia hidrográfica do Rio Mondego proporciona um caudal hidrológico de 108 m^3/s na foz, tem instalada uma capacidade de produção de energia hidroelétrica de 110 MW e com as albufeiras das Barragens da Aguieira e de Fagilde abastece com água de consumo a população da região centro, o que por si só chegaria para mostrar a importância desta bacia. Além disso, é uma importante região agrícola, oferecendo boas condições para produção florestal e vinícola, e suporta diversas indústrias, incluindo o turismo e estações termais.

A intensa atividade mineira do século XX na região centro-norte do país deixou um legado de sítios com escombros de minas de urânio, estanho, volfrâmio que são fontes potenciais de contaminação ambiental. Na bacia do Mondego situam-se cerca de duas dezenas de antigas minas de urânio, sendo as mais conhecidas as da Urgeiriça, Cunha Baixa, Quinta do Bispo, Castelejo, Boco, Vale da Abrutiga e Mondego Sul. Vários destas antigas explorações mineiras situam-se junto de linhas de água e de ribeiras afluentes do Rio Mondego, e algumas situam-se mesmo a muito curta distância do Mondego e da albufeira da Aguieira.

A atividade de extração e processamento de minérios radioativos cessou em 2001 sem que as áreas das concessões mineiras de urânio e instalações de processamento do minério tivessem sido limpas e encerradas de acordo com as boas práticas e recomendações internacionais (IAEA, 2006). Os estudos ambientais efetuados mostraram que as escorrências superficiais com lixiviados das escombreiras de resíduos de urânio e as descargas de águas de minas para as linhas de água transportam radionuclidos na fase solúvel e na fase particulada e que estes radionuclidos alcançam o Rio Mondego (Carvalho *et al.*, 2007a, 2007b, 2009a; Falcão *et al.*, 2005, 2007). Para reduzir o impacto ambiental e o risco para a saúde pública dos resíduos radioativos, alguns sítios mineiros foram já objeto de obras de remediação ambiental e ali foram instaladas, ou modernizadas, estações de tratamento das águas contaminadas (EDM, 2011).

Em 2012, tal como em vários anos anteriores, procedeu-se á monitorização da radioatividade na bacia do Rio Mondego, incluindo-se nessa monitorização alguns dos seus afluentes. Neste trabalho apresentam-se os resultados e assinalam-se as principais vulnerabilidades na bacia do Mondego no tocante à contaminação radioativa.

2. MATERIAIS E MÉTODOS

2.1. Área do estudo

Na bacia do Rio Mondego existem várias antigas minas de urânio e sítios de processamento do minério resultantes da intensa atividade de exploração de minérios radioativos que decorreu de 1908 até 2001. Após a cessação da Empresa Nacional do Urânio (ENU-SA), iniciou-se um período de avaliação da contaminação radioativa ambiental e inventariação dos escombros e sítios contaminados (Figura 1). Os escombros mineiros, geralmente empilhados à superfície e ao lado da mina, foram estimados em 13 milhões de toneladas. Os escombros do processamento e tratamento químico do minério radioativo para extração do urânio («milling tailings»), foram estimados em 3 milhões de toneladas, a maioria dos quais depositados na zona da Urgeiriça, mas existentes também noutros locais junto das antigas minas da Senhora das Fontes, Forte Velho e Bica (Carvalho 2003a, 2003b, 2010a, 2011; Baptista, 2005; Nero *et al.*, 2005).

Em 2012 foi dada continuação à monitorização das áreas das antigas minas de urânio, incluindo áreas em que foram efetuados trabalhos de remediação ambiental e áreas onde não foram ainda efetuados trabalhos de remediação. Deu-se particular atenção à bacia hidrográfica do Rio Mondego na qual existem vários locais com escombros mineiros e escombros do tratamento químico do minério, designadamente na zona da Urgeiriça que foi objeto de um plano de remediação ambiental e cobertura das escombreiras para prevenir o arrastamento de materiais radioativos para as linhas de água (Figura 1). Também situadas na bacia do Mondego incluem-se a mina de Vale da Abrutiga, que foi já fechada e selada, e a mina da Cunha Baixa que está em fase de obras de remediação. Estas obras deverão assegurar o isolamento dos resíduos radioativos e reduzir a contaminação ambiental (EDM, 2011). Contudo, na mesma bacia hidrográfica existem escombros e importantes sítios mineiros não intervencionados, tais como Quinta do Bispo, Castelejo e Boco, com potencial para causar uma significativa contaminação ambiental.

O texto deste artigo foi submetido para revisão e possível publicação em maio de 2014, tendo sido aceite pela Comissão de Editores Científicos Associados em março de 2015. Este artigo é parte integrante da *Revista Recursos Hídricos*, Vol. 36, Nº 1, 47-58, maio de 2015.
© APRH, ISSN 0870-1741 | DOI 10.5894/rh36n1-5

2.2. Amostragem

A monitorização ambiental efetuada assentou sobretudo na recolha de amostras ambientais nas áreas selecionadas e sua análise no laboratório para determinação das concentrações dos radionuclidos.
Na bacia hidrográfica do Rio Mondego incluindo os afluentes selecionados, i.e., Ribeira de Linhares, Ribeira do Boco, Ribeira do Castelo, Ribeira da Pantanha, procedeu-se à recolha de amostras de água e sedimentos do leito. Nalgumas zonas procedeu-se à amostragem de escombros mineiros e à medição da dose de radiação ambiente com um monitor portátil Thermo Scientific FH-40. Procedeu-se, ainda, à análise da água de consumo das redes públicas, amostradas em várias localidades da região.
Em cada ponto de amostragem foram registadas as coordenadas GPS do local, as características das amostras e, no caso das amostras de água, foram efetuadas no local as determinações dos principais parâmetro físicos-químicos. A amostragem na totalidade dos locais aqui descritos foi efetuada em duas missões de campo, com a duração de uma semana cada, realizadas em maio e novembro de 2012.

2.3. Preparação e análise das amostras

As amostras de água foram filtradas no local, através de filtros de membrana com 0.45 µm de poro, para análise separada das concentrações na fase solúvel e na fase particulada. As amostras de água filtrada foram acidificadas com HNO_3 a pH<2 e transportadas em bidões de polietileno para o laboratório. Os filtros com a matéria em suspensão foram guardados em embalagens devidamente identificadas. As amostras de solos e de escombros mineiros foram secas a 60º C, e peneiradas através de crivos com 63 µm de malha para separar os materiais mais grosseiros e utilizar apenas a fração inferior a 63 µm para as análises de radionuclidos.

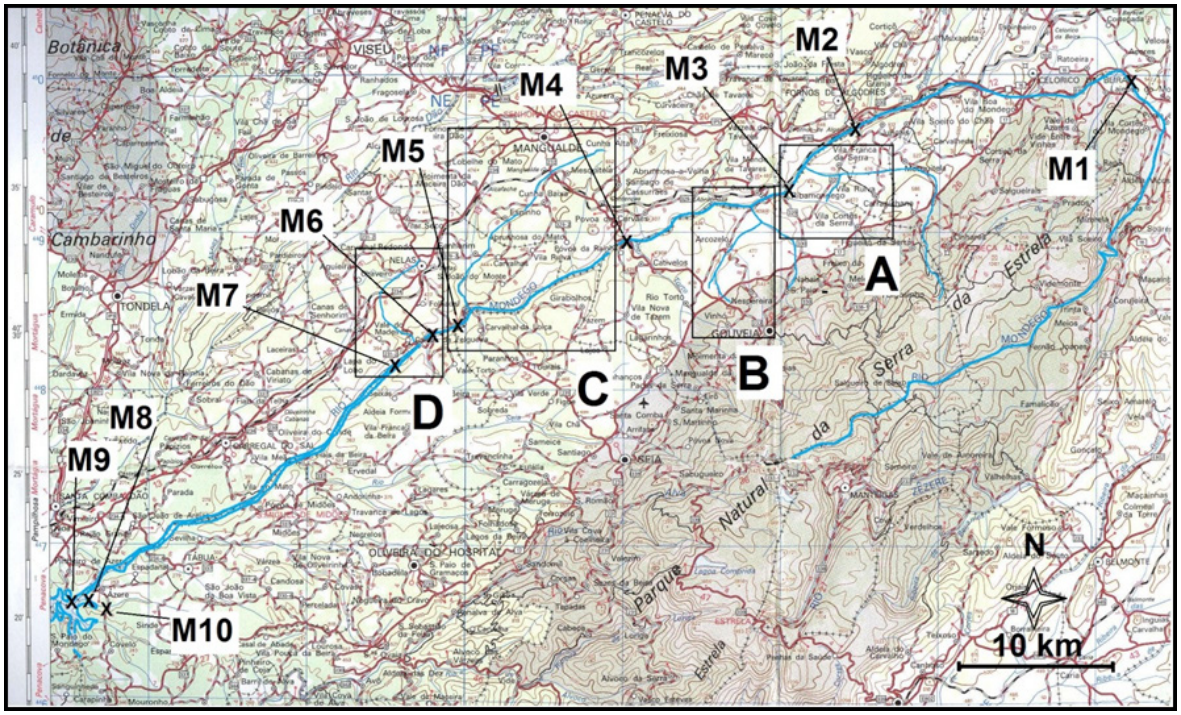

Figura 1 - Mapa da região centro do país e bacia hidrográfica do Rio Mondego desde a nascente até à Barragem da Aguieira. M1 a M10, estações de recolha de amostras ao longo do Mondego. A, B, C, D indicam as sub-bacias dos afluentes do Rio Mondego estudados com mais pormenor e que são Ribeira de Linhares, Ribeira do Boco, Ribeira do Castelo e Ribeira da Pantanha, respetivamente (ampliadas nas figuras seguintes).

2.4. Determinação dos radionuclidos

Após homogeneização, foram retiradas alíquotas das amostras para análise e às quais se adicionaram traçadores isotópicos dos elementos a analisar (^{232}U, ^{229}Th, ^{224}Ra, ^{209}Po e Pb estável). De seguida, no caso das amostras de água procedeu-se à co-precipitação dos radionuclidos com MnO_2 e recuperação do precipitado. No caso dos filtros com a matéria em suspensão e outras amostras de sólidos, procedeu-se à dissolução total das amostras em HNO_3, HCl e HF, seguida de separação radioquímica e purificação dos radioelementos a determinar. Os radioelementos separados foram electro-depositados em discos metálicos, de aço inox ou prata, e a radioatividade determinada por espectrometria alfa com detectores de superfície de barreira e implantados, utilizando espectrómetros OctetePlus (ORTEC EG&G). As técnicas de separação radioquímica e de espectrometria alfa utilizadas foram testadas e detalhadamente descritas na literatura científica (Carvalho *et al.*, 2005; Oliveira e Carvalho, 2006; Carvalho e Oliveira, 2007b). Os resultados foram expressos em mBq/L ou Bq/kg (1 Bq= uma desintegração nuclear por segundo).

O controlo de qualidade analítica foi regularmente efetuado através de análise de Materiais de Referência com concentrações conhecidas e através da participação em exercícios de inter-comparação laboratorial periodicamente organizados pela Agencia Internacional de Energia Atómica (IAEA) e pelo Institute of Reference Methods and Materials (IRRM) do Joint Research Centre da EU (Pham *et al.*, 2006; Richter *et al.*, 2006; Povinec *et al.*, 2007; Carvalho and Edge, 2013).

3. RESULTADOS E DISCUSSÃO

3.1. Radioatividade em escombros mineiros

As análises efetuadas nos escombros mineiros e resíduos do tratamento do minério indicaram elevada concentração em atividade dos radionuclidos da família do urânio (^{238}U) e sempre muito superior ao tório (^{232}Th). Os radionuclidos descendentes do urânio apresentaram sempre concentrações mais altas nos resíduos de minério processado ("rejeitados") enquanto as lamas de precipitação de radionuclidos nas águas de processo e águas de mina contaminadas apresentaram valores mais elevados de urânio que os seus descendentes radioativos (Tabela 1).

Estes escombros mineiros e lamas do tratamento das águas de minas estão depositados à superfície e expostos à erosão, incluindo lixiviação e arrastamento superficial de materiais para as linhas de água. As escombreiras de resíduos do urânio representam vários milhões de toneladas e, para além dos isótopos de urânio (^{238}U $T_{1/2}$=4.5x10^9 anos), contêm radionuclidos tais como o ^{230}Th ($T_{1/2}$= 75380 anos) e o ^{226}Ra ($T_{1/2}$=1600 anos) que têm períodos de semi-desintegração muito longos e representam, pois, um risco radiológico muito prolongado.

3.2. Radioatividade nos afluentes Ribeira de Linhares, Ribeira do Boco, Ribeira do Castelo, Ribeira da Pantanha

A Ribeira de Linhares situada na margem esquerda do rio Mondego e no concelho de Gouveia, drena uma área onde se localizam as antigas minas de urânio do Castelejo (Figura 2).

Tabela 1 – Concentração dos radionuclidos em escombros mineiros e lamas de tratamento de águas de mina em sítios de minas de urânio na bacia do Rio Mondego.

Designação	^{238}U	^{234}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po
Mina da Quinta do Bispo, Escombros	13873±585	14280±602	71332±4419	134635±9192	39886±1950	39886±1950
Urgeiriça, Barragem Nova, Lamas	17646±769	17187±750	17743±790	8954±1054	10179±316	10179±316
Mina do Castelejo, Lamas, VC4	13403±694	13473±698	5436±163	4294±270	3600±190	3600±190
Mina da Ribeira do Boco, Escombros, RB0	3257±94	3263±94	3082±121	2096±180	2310±97	2310±97
Solo agrícola, Região de Nelas	211±7	201±7	128±6	140±8	227±8	117±6

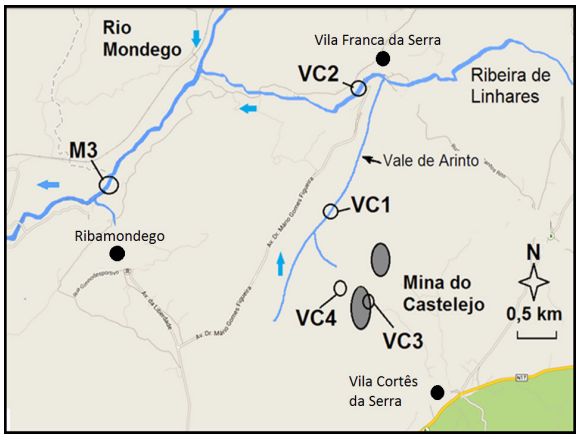

Figura 2 - Ribeira de Linhares, e amostragem na zona de Vila Cortês da Serra e Ribamondego.

Estas minas estão encaixadas na serra e foram exploradas a céu aberto, tendo restado dessa atividade duas grandes crateras e uma escombreira de resíduos de volume considerável que testemunham a importante atividade mineira passada. A cratera do lado Norte transformou-se numa lagoa permanente, enquanto a cratera do lado Sul, também invadida pelas águas, tem sido repetidas vezes esvaziada para se proceder à neutralização de águas ácidas. Durante vários anos, até 2003, uma estação de tratamento das águas ácidas e contaminadas da cratera sul esteve em operação intermitente. As lamas resultantes da neutralização destas águas de mina eram decantadas em tanques escavados no local (bacias de decantação), e transferidas para bacias de evaporação do lado Oeste da cratera. As águas não tratadas ("overflow") e as águas tratadas, juntamente com escorrências superficiais das bacias de lamas, fluem para Oeste descendo pela encosta e por infiltração até alcançarem a linha de água de Vale do Arinto, uma linha de água sazonal que corre de Vila Cortês da Serra para Norte juntando-se à Ribeira de Linhares antes da confluência com o Rio Mondego.

Nas courelas de aluvião existentes ao longo do Vale de Arinto há vários poços de irrigação que recebem a drenagem superficial e infiltração da Mina do Castelejo. As análises de água filtrada e da matéria em suspensão desta linha de água não revelaram uma contaminação radioativa apreciável, i.e., acima de valores que podem ser considerados valores do fundo radioativo da região. Ou seja, o percurso das escorrências da mina do Castelejo encosta abaixo fornece, aparentemente, uma filtração natural à água da mina. Esta, por sua vez, na atualidade já não é tão contaminada como foi no passado pois houve renovação da água das crateras mineiras e foi efetuada a neutralização da água da mina durante vários anos. No entanto as concentrações de radionuclidos nas lamas das bacias de evaporação (VC4), depositadas em superfície, foram muito elevadas, atingindo 13403±694 Bq/kg para o ^{238}U. Já na água da cratera mineira (VC3) a concentração do ^{238}U foi de 49.0±1.3 mBq/L e o valor mais elevado de ^{238}U na água de Vale do Arinto (VC1) foi 37.1±1.0 mBq/L (Tabela 2).

A Ribeira do Boco, afluente da margem esquerda do rio Mondego e situada no concelho de Gouveia, tem a nascente na cratera da antiga mina de urânio designada por Mina do Boco, corre para norte atravessando três outras crateras adicionais da antiga exploração mineira, e irriga as courelas de Arcozelo da Serra, antes de se juntar com a Ribeira de S. Paio e confluírem no Mondego. A bacia desta Ribeira do Boco tem importantes campos de cultivo, actualmente usados para pastagem de rebanhos de ovinos dando suporte ao fabrico de queijo na região (Figura 3).

Junto à cratera mineira principal está situada a escombreira de resíduos mineiros com um volume estimado em cerca de 30 000 m^3. A escombreira está situada no ponto mais alto do terreno e as chuvas originam o arrastamento de materiais contaminados para a cratera mineira e para a Ribeira do Boco.

A Ribeira do Boco foi amostrada em Maio, quando o caudal era muito reduzido, e de novo em Novembro, quando o caudal era abundante devido às chuvas do Outono. O caudal elevado correspondeu a concentrações mais baixas de todos os radionuclidos na fase solúvel e também na matéria em suspensão, possivelmente devido a diluição originada pelo importante caudal da ribeira e pelas partículas do solo arrastadas pelas chuvas recentes. As concentrações dos radionuclidos na água, matéria em suspensão e sedimentos do leito são apresentadas nas Tabelas 2, 3 e 4.

A dose de radiação ambiente sobre a escombreira de resíduos atingiu os 1 130 nGy/h, enquanto nos terrenos circundantes foi de cerca de 340 nGy/h. As concentrações de radionuclidos nos materiais da escombreira (escombros RB0) foram elevadas e, por exemplo, para o ^{226}Ra foram de 2 096±189 Bq/kg, ou seja no presente são apenas 2/3 da atividade do ^{230}Th seu progenitor, indicando assim que 1/3 da atividade de ^{226}Ra (mais solúvel que o tório) foi lixiviada pelas chuvas (Tabela 1). Naturalmente que os materiais da escombreira têm concentrações mais elevadas que os terrenos no leito e nas margens da ribeira a jusante do local (Tabela 4).

A Ribeira do Boco ao atravessar os aluviões do troço médio do seu percurso alimenta vários poços superficiais de rega das courelas. A infiltração da água da ribeira e percolação nos terrenos de aluvião facilitam a dissolução de radionuclidos dos sedimentos ali acumulados durante os anos de operação da mina de urânio do Boco. Assim, a água de poços situados na margem e a pouca distância da ribeira, coando esses

Tabela 2 – Concentração dos radionuclidos (mBq L^{-1}) na fase dissolvida (< 0.45 μm) na água do Rio Mondego e de vários ribeiros afluentes.

Designação	^{238}U	^{234}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po
Água VC1. V. Cortês. V. de Arinto [a]	37.1±1.0	1.7±0.1	5.6±0.4	18.5±1.7	7.2±0.5	9.6±0.5
Água VC2. Rib. Linhares [a]	9.8±0.3	0.44±0.05	2.1±0.2	7.0±0.5	2.3±0.2	3.4±0.2
Água RB1. Rib. do Boco [b]	132±3	127±3	6.4±0.4	18.3±1.2	18.0±1.0	14.5±0.7
Água RB5. Rib. do Boco [b]	24.1±0.6	23.7±0.6	3.2±0.3	15.1±0.9	5.4±0.3	8.9±0.3
Água CB1. Rib. Castelo - Mesquitela [a]	22.8±0.7	0.94±0.10	1.5±0.2	29.6±2.6	11.4±0.7	26.7±1.1
Água CB2. linha água. C. Baixa [a]	2350±118	103.0±61	1.1±0.1	249±17	76.9±3.7	9.4±0.4
Água CB5. Rib. Castelo - P. Luzianes [a]	57.7±1.8	2.8±0.2	3.2±0.2	25.4±2.3	3.2±0.2	4.5±0.3
Água M5. R. Mondego - C. Loiça [a]	13.7±0.4	14.1±0.4	0.93±0.22	15.4±1.0	5.0±0.3	5.2±0.3
Água RP1. Rib. Pantanha - Urgeiriça [a]	19.5±0.7	0.94±0.08	5.5±0.4	13.2±1.0	10.1±0.8	7.0±0.4
Água RP3. Rib. Pantanha - C. Felgueira [a]	782±24	35.2±1.4	3.6±0.3	29.0±1.9	4.8±0.4	9.1±0.3
Água M8. R. Mondego - B. Aguieira [a]	9.1±0.3	0.34±0.04	0.45±0.07	4.6±0.3	1.7±0.1	3.1±0.2
Água M9. R. Mondego - B. Aguieira [a]	10.2±0.4	0.40±0.07	0.31±0.04	4.0±0.5	1.04±0.08	2.2±0.1
Água M10. Mina Mondego Sul [a]	868±42	83.5±4.80	0.19±0.04	443±34	102±5	5.9±0.2
Amostragens efetuadas a: [a] 26.11.2012; [b] 25.05.2012						

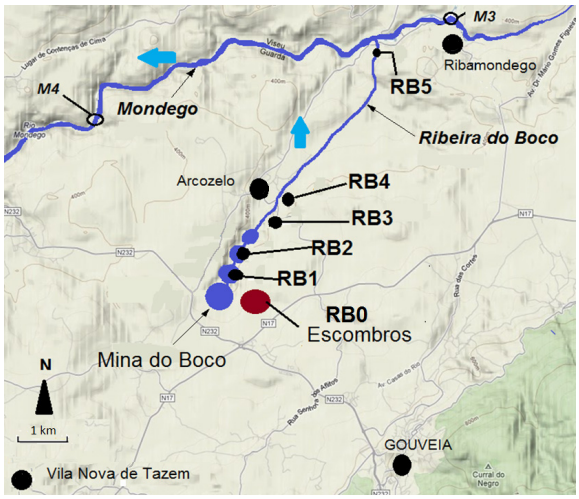

Figura 3 - Ribeira do Boco e amostragem na zona de Arcozelo da Serra.

lixiviados, apresentou concentrações mais elevadas que a água da ribeira. O funcionamento de um areeiro nas crateras da mina do Boco nos anos 90 e início da década de 2000, efectuando lavra e lavagem (crivagem de areão) terá contribuído para as concentrações mais elevadas nos terrenos e na água dos poços de irrigação nestes aluviões da ribeira. O pasto recolhido nesses campos, pasto natural e azevém plantado para alimentação de rebanhos de ovinos, apresentaram concentrações de radionuclidos acima de valores medidos no pasto de uma zona escolhida como referencia, em Vila Nova de Tazem, devido à acentuada transferência de radionuclidos do solo para as plantas, em especial do ^{226}Ra e do ^{210}Pb (Carvalho *et al.*, 2014).

Com a colaboração dos Serviços de Veterinária da região centro tivemos acesso a amostras de órgãos de três ovelhas criadas na zona da Ribeira do Boco, e outras três ovelhas da zona de Vila Nova de Tazem. Os resultados das análises destes órgãos internos (fígado, encéfalo, rim, musculo) mostraram que há uma maior concentração de radionuclidos nas ovelhas da Ribeira do Boco. Estas concentrações reflectem a transferência de radionuclidos dos solos para o pasto e do pasto, por ingestão, para os tecidos dos ovinos (Carvalho *et al.*, 2014).

Tabela 3 – Atividade específica (Bq kg^{-1} peso seco) de radionuclidos na matéria em suspensão (> 0.45 µm) na água do Rio Mondego e vários afluentes.

Designação	^{238}U	^{234}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po
Partículas VC1 [a]	25801±740	24910±720	7135±1419	11613±1643	21096±1408	21586±1189
Partículas RB1 [b]	2814±72	2753±70	1061±55	952±61	2384±126	2148±74
Partículas RB5 [b]	2403±55	2349±54	1737±97	1565±70	2519±141	3278±103
Partículas CB1 [a]	984±27	959±26	300±13	939±45	1322±56	1235±58
Partículas CB2 [a]	67225±2081	64486±1997	1981±87	2958±119	10793±477	5254±296
Partículas CB5 [a]	3293±102	3381±105	1248±53	2724±182	1855±101	1964±128
Partículas M5 [a]	2346±63	2328±63	723±38	940±88	2462±113	2634±120
Partículas RP1 [a]	13903±387	14410±399	40563±2089	76113±4183	69286±3261	69380±2560
Partículas RP3 [a]	12945±396	13152±402	1261±76	1188±78	1830±111	2794±112
Partículas M8 [a]	1646±44	1542±42	534±29	692±35	1563±70	1254±62
Partículas M9 [a]	6718±241	6467±233	1450±72	3890±247	4579±240	3772±214
Partículas M10 [a]	241862±6797	226994±6406	7158±342	19210±1432	224514±9300	166232±9953

Amostragens efetuadas a: [a] 26.11.2012; [b] 25.05.2012

Tabela 4 – Concentração dos radionuclidos (Bq kg^{-1} peso seco) em sedimentos, fração <63 µm, do leito do Rio Mondego e vários dos seus afluentes.

Designação	^{238}U	^{234}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po
Sedimento VC1 [a]	1729±56	1733±56	1677±76	1474±108	1465±87	1465±87
Sedimento VC2 [a]	698±23	712±24	676±50	558±62	506±35	506±35
Sedimento RB1 [b]	1058±29	1040±29	804±52	713±62	958±43	958±43
Sedimento CB1 [a]	329±10	326±10	343±14	258±25	256±11	256±11
Sedimento CB2 [a]	5195±226	5127±223	3408±118	2657±161	2696±164	2696±164
Sedimento M5 [a]	414±12	426±12	335±15	389±33	371±23	371±23
Sedimento RP1 [a]	536±19	547±19	4042±158	4903±449	7625±431	7625±431
Sedimento M8 [a]	1211±26	1466±32	2335±102	1742±130	1977±109	1977±109
Sedimento M9 [a]	143±6	152±6	145±7	386±44	124±6	124±6
Sedimento M10 [a]	19639±1086	17237±955	4247±149	1130±64	6808±352	6808±352

Amostragens efetuadas a: [a] 26.11.2012; [b] 25.05.2012

A Ribeira do Castelo (Figura 4) é afluente da margem direita do Rio Mondego e recebe as linhas de água de drenagem das minas da Cunha Baixa e da Quinta do Bispo. Tomou-se como estação de referência a zona das hortas da povoação Mesquitela (CB1) a montante das minas. Aqui as concentrações eram típicas para a região, por exemplo com valores de ^{238}U e ^{226}Ra respetivamente de 22.8±0,7 e 29.6 ±2.6 mBq/L. A linha de água da mina da Cunha Baixa (CB2) apresentou valores elevados de radionuclidos na fase solúvel e na matéria em suspensão, por exemplo, com concentrações na fase solúvel de 2 350±118 mBq/L e 249±17 mBq/L para ^{238}U e ^{226}Ra, respetivamente.
Em CB3, após confluência das linhas de água da Cunha Baixa e da Quinta do Bispo, os valores eram substancialmente mais baixos devido à grande diluição na água da Ribeira do Castelo que na altura da amostragem corria com um caudal muito elevado devido às chuvas das semanas anteriores. As concentrações dos radionuclidos na água filtrada e na matéria em suspensão decresceram gradualmente para jusante. Junto à Povoa de Luzianes (CB5), pouco antes da confluência com o Rio Mondego, essas concentrações eram apenas um pouco mais elevadas que na estação de referencia CB1 (Tabela 1).

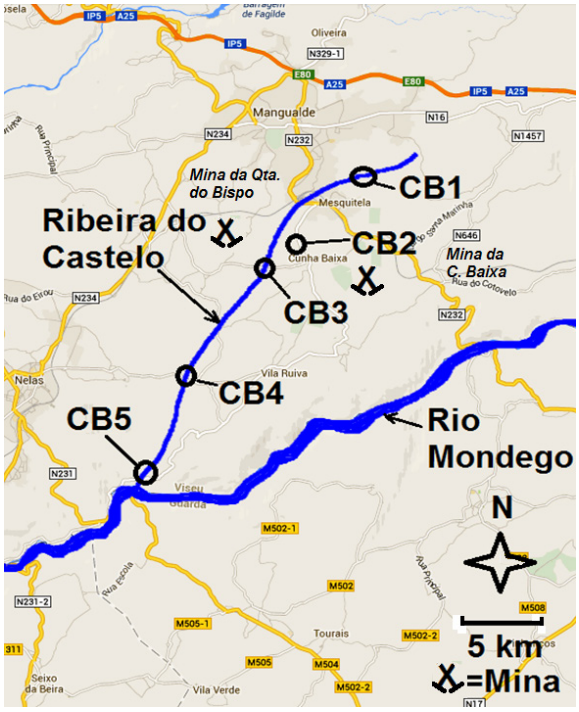

Figura 4 - Ribeira do Castelo e amostragem na zona da Cunha Baixa.

A Ribeira da Pantanha (Figura 5) é também afluente da margem direita do Rio Mondego, tem a nascente perto de Nelas e atravessa a zona da antiga mina de Valinhos e das escombreiras da Urgeiriça, entre a Barragem Velha e a Barragem Nova, confluindo no Rio Mondego em Caldas da Felgueira, a cerca de 7 km de distância da Urgeiriça. Analisaram-se amostras de três locais apenas, pois na altura da amostragem a Ribeira da Pantanha estava fortemente poluída pela descarga de efluentes químicos industriais da fábrica Borgstena, situada perto de Valinhos, conferindo mau cheiro, espuma e cor intensa à água da Ribeira da Pantanha. Apesar disso foram analisadas algumas amostras. Verificou-se, tomando como estação de referência RP1 localizada a montante de Valinhos, que as concentrações de radionuclidos aumentaram extraordinariamente na zona das «Barragens» da Urgeiriça, por exemplo cerca de 20 vezes acima do valor medido na estação de referência para o urânio dissolvido, e foram ainda mais elevadas nas Caldas da Felgueira. O aumento de concentrações na Ribeira da Pantanha foi observado tanto na fase solúvel como na matéria em suspensão. Os sedimentos do leito da Ribeira da Pantanha apresentaram valores muito elevados devido a radionuclidos acumulados durante as décadas de descarga de efluentes das instalações da Urgeiriça (Tabelas 1, 2, 3, 4).

Figura 5 - Ribeira da Pantanha e locais de amostragem na zona de Canas de Senhorim-Urgeiriça.

3.3. Radioatividade no Rio Mondego

No Rio Mondego a amostragem foi efetuada desde a cabeceira do rio, na Lageosa do Mondego, até ao regolfo da Barragem da Aguieira. Na altura da amostragem, com caudal elevado, as concentrações dos radionuclidos na fase solúvel apresentaram variações de pequena amplitude entre as várias estações de amostragem. Por exemplo, o urânio (^{238}U) dissolvido variou entre 9.1 e 10.2 mBq/L e o ^{226}Ra entre 4.0 e 15.4 mBq/L. A descarga das várias ribeiras afluentes não introduziu alterações acentuadas na fase solúvel e na matéria em suspensão do rio, em virtude de se diluírem no maior volume das águas do Rio Mondego. Em anos anteriores, com amostragens efetuadas em período de fraco caudal no Mondego, observaram-se concentrações mais elevadas resultantes das descargas dos afluentes.

Algumas crateras mineiras existentes na bacia do Rio Mondego como, por exemplo, nas minas da Quinta do Bispo e Mondego Sul contêm um volume importante de águas radioativas acumuladas, onde as concentrações de radionuclidos atingem valores muito elevados. Por exemplo, as concentrações de ^{238}U e de ^{226}Ra na água acumulada na cratera da mina Mondego Sul foram 868±42 e 443±34 mBq/L, respetivamente.

Os sedimentos do leito do Mondego, que são mais permanentes que a água do rio, mostram ainda traços das descargas mineiras do passado. Na estação M7, a jusante da descarga da Ribeira da Pantanha, foi percetível o aumento das concentrações devido as descargas de efluentes das instalações da Urgeiriça. Na barragem da Aguieira, perto da mina Mondego Sul (M8) há um incremento que pode ser devido à composição destes terrenos perto do local mineiro da Mina de Mondego Sul. No regolfo da Barragem, sítio da Senhora da Ribeira, onde o leito do rio é de xistos, os valores foram mais baixos, sendo a concentração de ^{238}U de 143±6 Bq/kg (Tabela 4).

A água de redes públicas de distribuição foi recolhida na torneira (ponto de consumo) em Vila Cortês da Serra (Gouveia), Canas de Senhorim (Nelas) e Cunha-Baixa (Mangualde). As concentrações de radionuclidos foram relativamente baixas e, em particular, a radioatividade alfa total situou-se dentro dos limites recomendados pela legislação sobre água de consumo, isto é, inferior a 1.0 Bq/L de radioatividade beta total e 0.5 Bq/L de radioatividade alfa total (Dec.-Lei 130/2012) e conforme as recomendações internacionais (WHO, 2004).

3.4. Vulnerabilidades existentes e proteção dos ecossistemas dulçaquícolas

As medições de dose de radiação ambiente permitiram localizar os materiais radioativos e estimar os volumes destes resíduos. As escombreiras de resíduos das minas de urânio existentes na bacia do Mondego totalizam vários milhões de toneladas. As análises radioquímicas permitiram identificar os radionuclidos presentes e determinar as suas concentrações. Os resultados indicam que os radionuclidos de período longo representarão um risco de contaminação ambiental que persistirá durante muito tempo (séculos e mesmo milhares de anos). As determinações dos radionuclidos mostraram, ainda, que radionuclidos dos materiais de escombreiras abandonadas foram gradualmente dispersos no ambiente próximo. São exemplos disso as escorrências que a Ribeira da Pantanha no passado transportou para o Rio Mondego, causando a contaminação radioativa de sedimentos do leito, na atualidade ainda mensuráveis em vários troços deste rio (Carvalho *et al.*, 2007a). As obras de remediação recentemente efetuadas na Urgeiriça diminuíram a descarga de radionuclidos e permitiram a redução da contaminação da ribeira por processos naturais. Outros locais, tais como a Mina do Boco e a Ribeira do Boco, que não foram objeto de remediação, apresentam contaminação radioativa ambiental que resultou do transporte de radionuclidos pela ribeira, e a sua dispersão nos solos de aluvião das margens e transferência para o pasto e para o gado ovino. Esta situação poderá ser corrigida com o confinamento dos resíduos mineiros acumulados junto da mina.

As minas a céu aberto, cujas crateras se transformaram em lagoas permanentes, apresentam águas de pH perto da neutralidade e pouco contaminadas, ou com pH muito ácido e geralmente muito contaminadas por radioelementos. A Mina da Quinta do Bispo (Concelho de Mangualde), que tem águas fortemente ácidas devido aos lixiviados ácidos ("rejeitados") e formação de ácido sulfúrico a partir do H_2S do xistos, apresenta radionuclidos em concentrações muito elevadas. Já a lagoa da Mina de Espinho (Concelho de Mangualde) apresenta pH quase neutro e concentrações de radionuclidos muito baixas e semelhantes ao fundo radioativo natural. Estas águas das crateras mineiras e das escorrências dos resíduos requerem, com frequência, um tratamento químico para neutralizar a acidez e precipitar os radionuclidos dissolvidos (ou pelo menos a maior parte) mas esse tratamento gera lamas radioativas que é necessário, por sua vez, depositar em segurança.

As águas de mina tratadas para remoção de radionuclidos e para correção do pH, apesar do custo do tratamento, apresentam apenas uma remoção parcial dos radionuclidos (por exemplo de parte do rádio, mas não do urânio), além de que o tratamento químico induz a presença desequilibrada de vários metais e iões maiores, tais como o manganês e o bário. A qualidade destas águas melhoraria se, antes

da descarga para as ribeiras, tivessem um tratamento suplementar de passagem por zonas húmidas ("wetlands") naturais ou construídas para esse efeito. Na verdade, o elevado coeficiente de partição sedimento-água (Kd) da maioria dos radionuclidos da família do urânio tornaria este processo provavelmente mais eficaz na remoção de radionuclidos e menos dispendioso que tratamento químico adicional. Para além disso, conforme se verificou através da análise de radionuclidos na vegetação espontânea que crescia nas bacias de lamas e nas linhas de água, a retenção de radionuclidos por um tapete de vegetação melhoraria a qualidade da água descarregada para as linhas de água (Carvalho *et al.*, 2011a). O recurso a pequenas "wetlands" como etapa final do tratamento dos efluentes de minas e escorrências, protegeria assim, de forma mais eficaz, a qualidade da água da bacia hidrográfica do Mondego.

No presente, dependendo dos locais, a proteção dos ecossistemas dulçaquícolas poderá requerer a combinação de medidas de tipo diferente. Assim, crateras mineiras inundadas e com água sem características adequadas para rega e consumo animal deverão ser mantidas encerradas e com um perímetro de segurança e vedação que barre o acesso. Os sítios mineiros com escorrências de águas de minas ("overflow" e drenagem natural, por exemplo) poderão exigir o tratamento continuado para corrigir a acidez e obter a precipitação dos radionuclidos. As minas subterrâneas e locais com aquíferos contaminados, como é o caso da área da Cunha-Baixa e da Bica, requerem a manutenção do esforço de bombagem da água da mina e tratamento da água contaminada á superfície, seguida ou não de re-injeção da água tratada na mina (Carvalho *et al.*, 2011b). Os poços de rega e/ou consumo existentes nas courelas, em zonas com água contaminada, deverão ser mantidos sob vigilância da qualidade da água e o seu uso controlado ou, se necessário, serem até selados.

Os cursos de água doce, como o Rio Mondego e afluentes, são utilizados pela população para pesca desportiva, e existem ainda artes de pesca nalguns locais. Embora hoje em dia o consumo de espécies dulçaquícolas seja pequeno, a potencial transferência de radioatividade por esta via deve ser mantida sob avaliação e regularmente actualizada.

4. CONCLUSÕES

A bacia hidrográfica do Rio Mondego contém uma vintena de antigos sítios mineiros de urânio com resíduos da extração e, ainda, várias escombreiras de resíduos do tratamento químico do minério na Urgeiriça e noutros locais. Vários afluentes do Mondego, incluindo as ribeiras do Castelo, da Pantanha, do Boco e de Linhares, recebem drenagem destas minas e escombreiras. Como as concentrações de radionuclidos nos escombros são, em geral, elevadas, as escorrências superficiais e sub-superficiais transportaram e transportam contaminantes radioativos que alcançam o Rio Mondego. No entanto, apesar das descargas de afluentes contaminados, a diluição no maior volume de água do Mondego e a retenção dos radionuclidos no sedimento ao longo do percurso dos ribeiros afluentes, permitem que a água do Mondego tenha níveis de radioatividade próximos dos naturais. Assim, a qualidade radiológica da água da albufeira da Barragem da Aguieira não compromete o seu uso para consumo humano.

A água das redes públicas da região, analisadas em várias localidades, como Canas de Senhorim e Cunha Baixa, abastecidas por água da barragem de Fagilde no Rio Dão, e Coimbra, abastecida por água da Barragem da Aguieira no Rio Mondego, comprovou - no momento da amostragem - a conformidade com os valores máximos de radioatividade recomendados para a água destinada ao consumo humano.

No entanto, na bacia do Mondego existem importantes escombreiras não confinadas e contendo radionuclidos com períodos de semi-vida de milhares de anos. Para além disso existem massas de água contaminadas retidas em várias crateras mineiras, como a Quinta do Bispo (Mangualde) e a mina de Mondego Sul (Pinheiro de Azere) - esta última situada mesmo ao lado da albufeira-, com concentrações elevadas de radionuclidos. Estas águas contaminadas não deverão ser libertadas para os cursos de água sem adequado tratamento prévio. Por sua vez, nos locais em que existem estações de tratamento de águas de minas, a água tratada quimicamente poderá ter a qualidade melhorada se for acrescentada uma etapa de tratamento consistindo na passagem por uma zona húmida antes da descarga nas linhas de água.

Nalgumas zonas foi detetada contaminação radioativa de solos, pastos, carne de ovinos e produtos lácteos, devido à existência de antigas minas de urânio e escombreiras com materiais contaminados na proximidade. A dose resultante do consumo de carne e leite fica, mesmo assim, abaixo dos limites de exposição às radiações ionizantes tolerados e o consumo, mesmo que muito intensivo, não constitui um risco radiológico elevado para a população (Carvalho *et al.*, 2014). Contudo, a exposição à radioatividade deve ser diminuída e a proteção radiológica otimizada. Para isso, deve recorrer-se ao confinamento das escombreiras de resíduos e ao tratamento das escorrências e águas de minas contaminadas. Em muitos casos é provável que isto possa ser conseguido com um investimento

relativamente baixo, mas permitindo alcançar grandes ganhos ambientais e de proteção da saúde pública.
A existência de albufeiras e tomadas de água para consumo humano no Mondego, no Dão, no Távora e noutros rios da região recomenda a manutenção de um programa regular de vigilância mais apertado da qualidade radiológica da água, tanto nos corpos hídricos como nas redes de distribuição de água ao consumidor. Recorde-se que a monitorização da radioatividade na água para consumo é uma exigência da Lei da Água (Dec-Lei 130/2012; Diretiva Quadro da Água n.º 2000/60/CE) e compete aos produtores e distribuidores de água assegurá-la.

BIBLIOGRAFIA

Batista, A.S. (2005) - The programme for remediation of contaminated sites: its regulation and follow-up in Portugal. In: International Atomic Energy Agency. *Proceed. of an International Workshop on Environmental Contamination from Uranium Production Facilities and Remediation Measures held in Lisbon 11-13 Feb 2004*.Vienna; p. 223-232.

Carvalho, F. P. (2003a) - O Urânio em Portugal: o fim da exploração mineira e a contaminação ambiental. *Industria & Ambiente*, 30: 7-11.

Carvalho, F. P. (2003b) - Environmental remediation of old uranium mining sites and radioprotection goals. *Radioproteção*, vol II-III, 159-165.

Carvalho, F. P., Edge, R. (2013) - Uranium mining and milling: the need for reference materials in environmental radioactivity monitoring programmes. *International Journal of Environmental Studies*, 70(4): 603-610.

Carvalho, F. P., Oliveira, J. M., Falck, W. E. (2011b) - Geochemistry of radionuclides in groundwaters at the former uranium and radium mining region of Sabugal, Portugal. In: B. Merkel and M. Schipek (eds.), *The New Uranium Mining Boom. Challenge and lessons learned*, pp. 81-90. Springer-Verlag, Berlin.

Carvalho, F. P., Oliveira, J. M., Lopes, I., Batista, A. (2007a) - Radioatividade nos Principais Rios da Beira-Alta. *Recursos Hídricos* 28(1), 43-51.

Carvalho, F.P., Oliveira, J.M., Lopes, I., Batista, A. (2007b) - Radionuclides from past uranium mining in rivers of Portugal. *Journal Environmental Radioactivity*, 98: 298-314.

Carvalho, F.P. (2010a) - Environmental remediation and the legacy of uranium mining waste in Portugal and Europe-Lessons to retain. *Advanced Materials Research*, 107: 157-161.

Carvalho, F.P. (2011) - Past uranium mining in Portugal: legacy, environmental remediation and radioactivity monitoring. *The Uranium Mining Remediation Exchange Group (UMREG). Selected Papers 1995–2007*, pp. 145-155. IAEA, VIENNA, 2011, STI/PUB/1524; ISBN 978–92–0–169310–5.

Carvalho, F.P., Oliveira J. M. (2007c) - Alpha emitters from uranium mining in the environment. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 274: 167-174.

Carvalho, F.P., Oliveira J. M., Faria I. (2009 a) - Alpha Emitting Radionuclides in Drainage from Quinta do Bispo and Cunha Baixa Uranium Mines (Portugal) and Associated Radiotoxicological Risk. *Bulletin Environmental Contamination and Toxicology*, 83: 668-673.

Carvalho, F.P., Oliveira, J. M., Libânio, A., Lopes, I., Ferrador, G., Madruga, M.J. (2005) - Radioactivity in Public Water Supplies in the Uranium Mining Regions in Portugal. *Proceed. of an International Workshop on Environmental Contamination from Uranium Production Facilities and Remediation Measures*, held in Lisbon 11-13 Feb 2004, pp.41-51. International Atomic Energy Agency, Vienna.

Carvalho, F.P., Oliveira J. M., Malta, M. (2011a) - Radionuclides in plants growing on sludge and water from uranium mine water treatment. *Ecological Engineering*, 37:1058-1063.

Carvalho, F.P., Oliveira, J. M., Malta, M., Lemos E. (2014) - Radioanalytical assessment of environmental contamination around non-remediated uranium mining legacy site and radium mobility. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 299:119-125.

EDM (2011) - The Legacy of Abandoned Mines. Empresa de Desenvolvimento Mineiro, Lisboa, 2011. (ISBN: 978-972-95226-2-8).

Falcão, J.M., Carvalho, F.P., Leite, M.M., Alarcão, M., Cordeiro, E., Ribeiro, J. (2005) - MinUrar-Minas de Urânio e seus Resíduos. Efeitos na Saúde da População. Relatório Científico I (Julho de 2005), Publ. INSA, INETI, ITN. (http://www.itn.pt/docum/pt_bib_reltec.htm).

Falcão, J.M., Carvalho, F.P., Leite, M.M., Alarcão, M., Cordeiro, E., Ribeiro, J. (2007) - MinUrar-Minas de Urânio e seus Resíduos. Efeitos na Saúde da População. Relatório Científico II (Fevereiro 2007). Publ. INSA, INETI, ITN. (http://www.itn.pt/docum/pt_bib_reltec.htm).

IAEA (2006) - Release of sites from Regulatory Control on Termination of Practices. IAEA Safety Standards Series No. WS-G-5.1. International Atomic Energy Agency, Vienna.

Nero, J.M., Dias, J.M., Torrinha, A.J., Neves, L.J., Torrinha, J.A. (2005) - Environmental evaluation and remediation methodologies of abandoned radioactive mines in Portugal. In: International Atomic Energy Agency. *Proceed. of an International Workshop on Environmental Contamination from Uranium Production Facilities and Remediation Measures held in Lisbon 11-13 Feb 2004*.Vienna. p.145-158.

Oliveira, J.M., Carvalho, F.P. (2006) - A Sequential Extraction Procedure for Determination of Uranium, Thorium, Radium, Lead and Polonium Radionuclides by Alpha Spectrometry in Environmental Samples. (Proceedings of the 15th Radiochemical Conference). *Czechoslovak Journal of Physics*, 56 (Suppl. D): 545-555.

Pham, M.K., Sanchez-Cabeza, J.A., Povinec, P.P., Arnold, D., Benmansour, M., Bojanowski, R., Carvalho, F.P., Kim, C.K., Esposito, M., Gastaud, J., Gascó, C.L., Ham, G.J., Hegde, A.G., Holm, E., Jaskierowicz, D., Kanisch, G., Llaurado, M., La Rosa, J., Lee, S.-H., Liong Wee Kwong, L., Le Petit, G., Maruo, Y., Nielsen, S.P., Oh, J.-S., Oregioni, B., Palomares, J., Pettersson, H.B.L., Rulik, P., . Ryan, T.P., Sato, K., Schikowski, J., Skwarzec, B., Smedley, P.A., Tarján, S., Vajda, N., Wyse, E. (2006) - Certified reference material for radionuclides in fish flesh sample IAEA-414 (mixed fish from the Irish Sea and North Sea). *Applied Radiation and Isotopes*, 64: 1253-1259.

Povinec, P.P., Pham, M., Barci-Funel, G., Bojanowski, R., Boshkova, T., Burnett, W., Carvalho, F.P., *et al.* (2007) - Reference material for radionuclides in sediment, IAEA-384 (Fangataufa Lagoon sediment). *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 273:383-393.

Richter, S., Alonso, A., Truyens, J., Kuhn, H., Verbruggen, A., Wellun, R. (2006) - REIMEP18: Inter Laboratory Comparison for the Measurement of Uranium Isotopic Ratios in Nitric Acid Solution. European Commission, Joint Research Centre, EUR Report 22529, 28 pp.

WHO (2004) - *Guidelines for drinking water quality*, 3rd edn, Vol. I. Recommendations. World Health Organization, Geneva. ISBN 92 4 1546387.