

# DISTRIBUIÇÃO DE ELEMENTOS RADIOATIVOS NO GRANITO SERRA DO CARAMBEÍ, PARANÁ, BRASIL

CRISTINA VALLE PINTO-COELHO\* e KÁTIA NORMA SIEDLECKI\*

**ABSTRACT** RADIOACTIVE ELEMENTS DISTRIBUTION IN THE SERRA DO CARAMBEÍ GRANITE, PARANÁ, BRAZIL. In the Serra do Carambeí Granite, the uranium present in the rock in anomalous concentration is hosted, preferentially, in accessory mineralogical phases-zircon, xenotime, magnetite and ilmenite, and, in lesser proportion, in the essential minerals of the rock-potassium feldspar – and also iron oxydes/hydroxydes and altered biotite. Optical petrography, autoradiomicrography, scanning electronic microscopy, and the utilization of correlation matrices and the respective dendograms revealed a distribution of radioactive elements basically controlled by autometassomatic, tardi/pos-magmatic or supergene processes. Intrusive felsic dikes in the Serra do Carambeí Granite have radioelement concentration level approximately four times higher than the enclosing granite, where uranium as well as thorium is preferentially found in metamictized accessory minerals – zircon and allanite. The concentration in total  $U_3O_8$  of the Serra do Carambeí Granite varies from 5 to 26 ppm, with an average of 9.9 ppm. Soluble uranium representing 68% of the total is ascribed to interstitial and secondary phases. Fixed uranium, corresponding to 32% of total uranium, is, in this granite, fixed in resistate accessory minerals. The average soluble U/total U ratio is 0.69; whereas surface rocks have this value around 0.57 and those of the sub-surface, 0.71. In the felsic dikes the concentration in total  $U_3O_8$  varies from 18 up to 56 ppm, with an average of about 34.2 ppm. In these rocks, a correlation of colour with the distribution of radioelements was noticed, in such a way that those with brown colour showed higher proportions of  $U_3O_8$  ( $\bar{x} = 39.5$  ppm) than the greyish one ( $\bar{x} = 21$  ppm). Soluble uranium corresponds to 59.4% of the whole and fixed uranium to 40.6%, relating themselves, respectively, to interstitial and secondary phases and to accessory minerals such as zircon and allanite. Average soluble U/total U ratio lies around 0.60.

**RESUMO** No Granito Serra do Carambeí o urânia, presente na rocha em concentrações anômalas em relação aos granitos enriquecidos em sílica comumente citados na literatura especializada, localiza-se, preferencialmente, em fases mineralógicas acessórias – zircão, xenotima, magnetita e ilmenita e, em menores proporções, associa-se à mineralogia essencial da rocha – feldspato potássico – e ainda a óxidos/hidroxídos de ferro e biotita alterada. Estudos de petrografia óptica, autoradiomicrografia, microscopia eletrônica de varredura e a utilização de matrizes de correlação e respectivos dendogramas revelaram que a distribuição de elementos radioativos é controlada basicamente por processos autometassomáticos, tardi/pós-magmáticos ou supergênicos. Diques felsicos, intrusivos no Granito Serra do Carambeí, exibem concentrações em radioelementos aproximadamente quatro vezes superiores à da sua encaixante, onde tanto o urânia quanto o tório localizam-se, preferencialmente, em minerais acessórios metamictizados – zircão e allanita. A concentração em  $U_3O_8$  total do granito varia de 5 a 26 ppm, cuja média situa-se em torno de 9,9 ppm. O urânia solúvel representa 68% do total e relaciona-se às fases intersticiais e secundárias. O urânia fixo, correspondente a 32% do urânia total, permanece, neste granito, aprisionado em minerais acessórios resistentes. A razão U solúvel/U total média é da ordem de 0,69, onde rochas de superfície têm este valor em torno de 0,57 e as de subsuperfície 0,71. Nos diques felsicos a concentração em  $U_3O_8$  total varia de 18 a 56 ppm, com a média situando-se por volta de 34,2 ppm. Observou-se nestas rochas uma influência da coloração na distribuição de radioelementos, sendo que aquelas com coloração castanha exibiam maiores teores de  $U_3O_8$  –  $\bar{x} = 39,5$  ppm – do que as acinzentadas –  $\bar{x} = 21$  ppm  $U_3O_8$ . O urânia solúvel corresponde a 59,4% do total e o urânia fixo a 40,6%, relacionando-se, respectivamente, a fases intersticiais e secundárias e a minerais acessórios como zircão e allanita. A razão U solúvel/U total média situa-se em torno de 0,60.

**INTRODUÇÃO** Não existe na literatura geológica especializada um consenso quanto às principais características de um granito uranífero. A natureza distinta do material parental, as mudanças no ambiente geotectônico, bem como transformações tardias pós-magmáticas sofridas por determinado corpo granítico, fazem seu químismo ser obliterado, dificultando, consequentemente, seu enquadramento num sistema classificatório único.

Segundo Darnley (1982), um granito para ser classificado como uranífero deve ter um teor de urânia no mínimo duas vezes superior ao *clarke* deste elemento, ou seja, 8 ppm, considerando-se o *clarke* de 4 ppm. A existência de mineralização não constitui único critério seguro para a definição do granito como uranífero; por outro lado, são comuns rochas graníticas com teores médios acima de 8 ppm que não se apresentam mineralizadas. Observa-se, ainda, uma tendência geral deste elemento em aumentar com o grau de diferenciação, em que as variedades litológicas mais ricas em sílica apresentam os conteúdos mais elevados em urânia (Turovskii 1957, Wedepohl 1969).

Considerando-se o teor de 8 ppm como o mínimo exigido para a especialização de um granito, o Serra do Carambeí, com conteúdo médio de 9,9 ppm de  $U_3O_8$ , poderia ser classificado como tal, ressalvando-se, entretanto, o fato de não terem sido detectadas mineralizações uraníferas significativas neste corpo, como se verá.

**PROCEDIMENTOS ANALÍTICOS** A identificação dos sítios preferenciais de localização do urânia no plútão em questão foi feita utilizando-se microscopia eletrônica de varredura (MEV), autoradiomicrografia e matrizes de correlação entre o urânia e os componentes químicos do granito. As amostras estudadas, obtidas tanto em superfície quanto em subsuperfície, foram analisadas por MEV por L. Izoret do Bureau de Recherches Géologiques et Minières (BRGM, França), pela técnica de elétrons retrodifundidos. O teste autoradiomicrográfico foi realizado por K. Fuzikawa das Empresas Nucleares Brasileiras S.A. (Nuclebrás), Escritório Regional de Belo Horizonte, empregando-se o filme de nitrato de celulose CN-85 da Kodak. As amostras

\* Minerais do Paraná S.A. (Mineropar), Setor de Apoio Técnico, Rua Constantino Marochi, 800 Juvevê, CEP 80030, Curitiba, PR

analisadas por este método ficaram expostas ao detector durante um período de 57 dias, sendo o detector plástico, após a exposição, tratado em solução de NaOH, 2,5N, à temperatura de 60°C por um período de 30 minutos. A descrição detalhada desta técnica pode ser encontrada em Brandão (1984), Bowie (1951), Kwinta *et al.* (1980), Houston & Jefferies (1981), Khadduri (1982) e Coppens *et al.* (1979).

A determinação analítica dos elementos radioativos foi feita por: a. M.P. Ferreira, do Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear (CDTN Nuclebrás), pelo método de nêutrons retardados, para  $U_3O_8$  total; b. C.C. Murta (CDTN), da Nuclebrás, pela fluorescência de raios X para  $ThO_2$ ; e c. J.S. Lima (Nuclebrás, Escritório Regional de Curitiba), por fluorimetria para  $U_3O_8$  solúvel. As sondagens foram realizadas pela Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN), durante os anos de 1972 e 1973, mediante convênio firmado com a Companhia de Pesquisa de Recursos Minerais (CPRM), com objetivo de se prospectarem áreas radioanômalas na borda SW do Granito Serra do Carambeí.

**SITUAÇÃO GEOLÓGICA REGIONAL** Na área circunvizinha ao Granito Serra do Carambeí afloram unidades litológicas representadas pelo Complexo Granítico Cunhaporanga, de idade proterozoica média a superior, a seqüência vulcânica ácida copaleozóica do Grupo Castro e os arenitos devonianos da Formação Furnas (Fig. 1). Todo este conjunto se encontra indiscriminadamente cortado por diques de rochas básicas relacionadas ao vulcanismo toleítico ocorrido em tempos jurássico-cretáceos. Na borda SW do granito em discussão, ocorrem diques félscicos pouco espessos de rochas com composição riolítica, ou seja, rochas ácidas altamente evoluídas, textural e mineralogicamente semelhantes a riólitos, diferenciadas do magma originário do granito hospedeiro. Trata-se de rochas formadas a partir do líquido leucocrático final do processo de cristalização magmática e equivalem ao que autores franceses (v.g. Charoy 1979) denominam *evans*. Exibem concentrações anômalas em radioelementos, além de outros elementos-traços como Nb, Y, Zr, Sn e F (Pinto-Coelho 1986).

Apenas o Granito Serra do Carambeí e os diques félscicos nele intrusivos mostram concentrações anômalas em elementos radioativos, tendo as demais unidades litológicas teores de urânia e tório equivalentes ao *clarke* desses elementos para cada grupo de rocha, seja granítica, seja vulcânica ou sedimentar. Relações de campo, mineralogia, petrografia e petroquímica das unidades associadas e circunvizinhas ao Granito Serra do Carambeí são discutidas em Pinto-Coelho (*op. cit.*).

#### CARACTERÍSTICAS PETROGRÁFICAS, PETROQUÍMICAS E DISTRIBUIÇÃO DOS TIPOS DE ROCHAS.

**Granito Serra do Carambeí** Representa um plátano litológico e estruturalmente homogêneo, inscrito no Complexo Granítico Cunhaporanga, de idade do Proterozoico Superior, com formato grosseiramente retangular alongado e disposto segundo direção NE-SW em área aproximada de 33 km<sup>2</sup> (Fig. 1). A única variedade litológica presente é um granito equigranular médio a grosso (2-6 mm), isótropo, coloração rósea, com pequenas variações locais devidas, sobretudo, à superimposição de efeitos cisalhantes. Esta fácies magmática primária, representada pelo granito hololeucocrático, caracteriza-se pela presença de feldspato potássico (microclínio fortemente ordenado, com triclinicidade média de 0,94) intensamente micropertitizado, quartzo e porcentagem de biotita inferior a 5%, o que permite classificá-lo como alaskito. Acessoriamente, ocorrem zircão, xenotima, apatita, piritita, magnetita martitizada, hematita, fluorita e titanita; minerais secundários são epidoto, clorita, moscovita e carbonato.

As características petrográficas do granito em discussão

permitem enquadrá-lo no tipo *hypersolvus* de Tuttle & Bowen (1958), marcado pela existência de uma única fase feldspática, estando ausente o plagioclásio individualizado. Sua composição modal coloca-o no campo 2 dos álcali-feldspato granitos de Streckeisen (1976): pertita-granito. No diagrama multicatiônico  $R_1-R_2$  de De La Roche *et al.* (1980), todas as amostras analisadas se dispõem no campo de álcali-granitos (Pinto-Coelho 1986). Foram analisados dois grupos de amostras referentes a este granito: o primeiro, de amostras de superfície, aparentemente frescas, coletadas em afloramentos e em pedreiras; e o segundo, de amostras de subsuperfície, coletadas em testemunhos de sondagens cujas profundidades variaram de 18,90 a 83,25 m. O estudo comparativo destes dois grupos de rochas revelou a existência de importantes variações compostionais, sobretudo nos elementos maiores, atribuídas à atuação de fenômenos intempéricos (Pinto-Coelho *op. cit.*). O urânia, à semelhança dos óxidos principais, também mostra comportamentos distintos em amostras de superfície e subsuperfície, sendo, entretanto, tal variação menos acentuada que nos demais componentes químicos do granito. Rochas de superfície têm concentrações em  $U_3O_8$  total que variam de 5 a 12 ppm e, nas de subsuperfície, a variação se faz entre 4 e 26 ppm (Tab. 1); a média para os dois grupos de rochas é de 9,9 ppm. O  $U_3O_8$  solúvel representa 68% do urânia total contido na rocha,  $U_3O_8$  sendo o restante (32%) representado pelo  $U_3O_8$  fixo. A razão U solúvel/U total média para os dois grupos de rochas é da ordem de 0,69. As amostras de superfície têm este valor em torno de 0,57 e as de subsuperfície, 0,71, indicando, assim, lixiviação parcial do urânia solúvel por processos intempéricos. O tório, em todas as amostras analisadas, situou-se abaixo do limite inferior de detecção do método analítico utilizado.

A adoção de critérios puramente ponderais para a definição da metalogenia de uma rocha pode levar ao estabelecimento de parâmetros teóricos que não se coadunam com a realidade geológica prática. Ao se considerar, por exemplo, apenas o teor de urânia como suficiente para discriminar sua especialização, o Granito Serra do Carambeí equivaler-se-ia metalogeneticamente aos leucogranitos do Maciço de São Silvestre, França, cuja concentração de  $U_3O_8$  oscila entre 8,7 e 21,1 ppm (Moreau 1977).

Não obstante os teores anômalos, não se detectou, até o momento, qualquer tipo de mineralização uranifera, estando o elemento concentrado em fases mineralógicas acessórias - zircão, xenotima e magnetita - e em fases intersticiais ou intergranulares, adsorvidos a óxidos/hidróxidos de ferro.

Além de disseminações anômalas de urânia, para originar mineralizações são necessários também processos concentradores do metal, sejam eles de natureza tardia a pós-magmática ou intempérica, a fim de que a rocha seja considerada metalogeneticamente especializada, o que não foi observado nesta rocha (Pinto-Coelho *op. cit.*).

**Diques félscicos associados** Na borda SW do Granito Serra do Carambeí e, mais raramente, no contato NE, ocorrem diques de rochas *riolíticas*, que ostentam espessuras médias em torno de alguns poucos centímetros e máxima de 25 cm, com direções, por vezes, ortogonais entre si. Essas rochas se apresentam fortemente intemperizadas no campo, e este fato, aliado à pequena espessura dos diques, inviabilizou a comparação entre amostras de superfície e subsuperfície, à semelhança do que foi feito para a sua encaixante. São rochas holocrystalinas, com estrutura isótropa, coloração castanha e acinzentada, mais raramente verde, textura porfirítica, representada por fenocristais de quartzo bipiramidal que chegam a atingir 0,5 cm de comprimento, imersos em matriz afanítica de composição quartzo-feldspática. Ao microscópio, mostram fenocristais de quartzo, secundariamente feldspato potássico (microclínio) em matriz cripto a microcristalina,

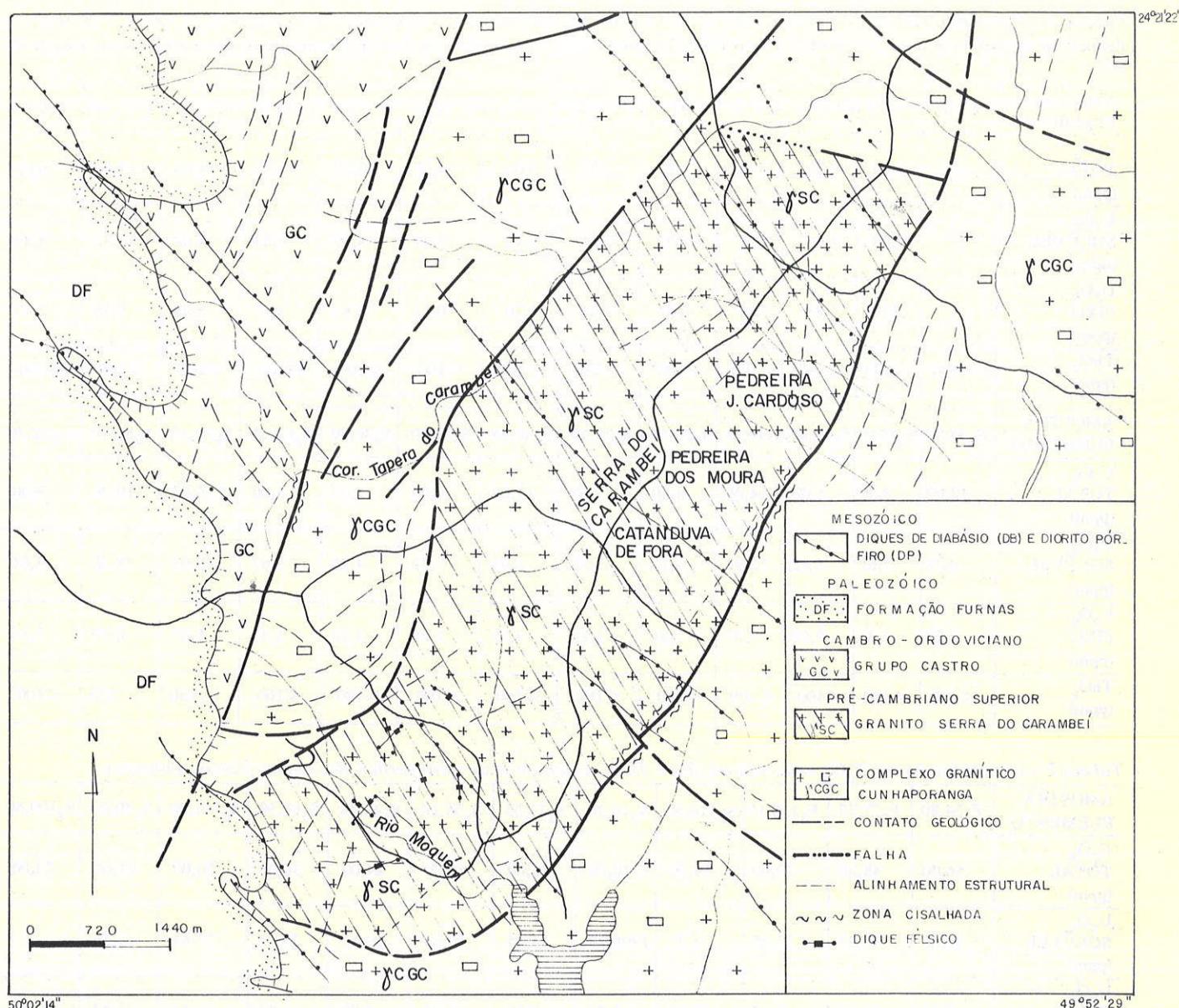


Figura 1 – Mapa geológico simplificado da área do Granito Serra do Carambel, Paraná

constituída por grãos desses minerais, além de plagioclásio (albita). Biotita, turmalina, fluorita, hematita, magnetita, pirita, galena e ilmenita são acessórios freqüentes.

A co-geneticidade entre os diques felsicos e o granito hospedeiro é confirmada pelo padrão de distribuição de elementos terras-raras. O espectro obtido para essas rochas é essencialmente o mesmo, marcado por forte anomalia negativa de Eu, diminuição em terras-raras leves e enriquecimento relativo em terras-raras pesadas (Pinto-Coelho & Marini 1986).

Os diques apresentam químismo similar ao do granito, no que se refere a elementos maiores; quanto aos elementos-traços, (Pb, Zn, Ba, Li, Zr, Rb, Nb, Y, Sn, U e Th), verifica-se nítido enriquecimento comparativamente à encaixante (Pinto-Coelho 1986). A concentração de  $U_3O_8$  e  $ThO_2$  para rochas de subsuperfície é mostrada na Tabela 2.

Um aspecto interessante dos diques anômalos, que só pode ser caracterizado pelo estudo em amostras de testemunhos de sondagem, é a variação na coloração, intimamente relacionada à distribuição dos elementos radioativos. Rochas com coloração castanha e tonalidades ligeiramente violáceas

mostram, em geral, teores mais elevados de  $U_3O_8$  –  $\bar{x} = 39,5$  ppm, contrastantes com aquelas de coloração cinza a cinza-acastanhado, cujo conteúdo médio de  $U_3O_8$  é da ordem de 21 ppm; a média para todas as amostras é de 34,2 ppm  $U_3O_8$ . Tório exibe variação menos pronunciada, no qual as rochas cinza apresentam média de 217,50 ppm  $ThO_2$  e as castanhas, 237,70 ppm; a média geral é de 216,70 ppm  $ThO_2$ . Macroscopicamente, tais variações não se fazem acompanhar por nenhuma mudança na paragênese mineral da rocha, sendo que o que se observa é a maior intensidade da impregnação ferruginosa nas rochas castanhas, onde os teores de FeO são três vezes superiores aos daquelas com coloração cinza. Isso é consistente, portanto, com a inter-relação entre urânio e ferro (Pinto-Coelho *op. cit.*).

Alterações na coloração da rocha em função da intensidade da mineralização foram notadas por Gandhi (1978) em riolitos do Canadá, por Narayan Das & Bhatnagar (1980) em granitos da Índia e por Jacob (1974) em alaskitos uraníferos de Rössing (Namíbia). Nos diques felsicos, o urânio solúvel corresponde a 59,4% do urânio total e o fixo a 40,6%, relacionando-se, respectivamente, a fases intersticiais e

**Tabela 1 – Concentração em  $U_3O_8$  total, solúvel, fixo e  $ThO_2$  de amostras do Granito Serra do Carambeí. A sigla CV se refere a rochas de superfície, e F e S se referem a amostras de subsuperfície. A metodologia analítica empregada se encontra mencionada no texto**

AMOSTRA ELEMENTO	CV03	CVO7	CVO7A	CV11	CV17	CV17A	CV25	F <sub>1</sub> 33,90	F <sub>2</sub> 37,85	F <sub>2</sub> 50,50	F <sub>2</sub> 63,65	F <sub>2</sub> 64,90	F <sub>2</sub> 68,90
$U_3O_8$ TOTAL (ppm)	8,00	7,00	9,00	5,00	11,00	12,00	9,00	4,00	10,00	7,00	14,00	19,00	6,00
$U_3O_8$ SOLÚVEL (ppm)	—	4,80	7,12	1,50	6,20	8,04	2,70	3,29	4,19	3,83	8,02	13,52	3,83
$U_3O_8$ FIXO (ppm)	—	2,20	1,88	3,50	4,80	3,96	6,30	0,71	5,81	3,17	5,98	5,48	2,17
$ThO_2$ (ppm)	<100	<100	<100	<100	<100	<100	<100	<100	<100	<100	<100	<100	<100
AMOSTRA ELEMENTO	S <sub>3</sub> 34,90	S <sub>3</sub> 53,45	S <sub>3</sub> 66,15	S <sub>7</sub> 18,90	S <sub>8</sub> 23,50	S <sub>8</sub> 33,50	S <sub>8</sub> 48,25	S <sub>8</sub> 70,50	S <sub>8</sub> 76,70	S <sub>8</sub> 83,25	S <sub>9</sub> 79,15	S <sub>9</sub> 82,70	S <sub>10</sub> 22,70
$U_3O_8$ TOTAL (ppm)	12,00	8,00	5,00	14,00	8,00	5,00	11,00	9,00	8,00	5,00	26,00	19,00	7,00
$U_3O_8$ SOLÚVEL (ppm)	9,78	5,67	4,42	12,93	6,19	3,75	6,05	7,32	4,76	3,67	17,93	18,30	3,64
$U_3O_8$ FIXO (ppm)	2,22	2,33	0,58	1,07	1,81	1,25	4,95	1,68	3,24	1,33	8,07	0,70	3,36
$ThO_2$ (ppm)	<100	<100	<100	<100	<100	<100	<100	<100	<100	<100	150	140	<100

**Tabela 2 – Concentração em  $U_3O_8$  total, solúvel, fixo e  $ThO_2$  de amostras de subsuperfície dos diques felsicos anômalos**

AMOSTRA ELEMENTO	F <sub>1</sub> 54,80	F <sub>2</sub> 77,75	F <sub>3</sub> 130,15	S <sub>2</sub> 114,60	S <sub>3</sub> 16,20	S <sub>3</sub> 21,35	S <sub>3</sub> 28,10	S <sub>3</sub> 45,48	S <sub>3</sub> 60,50	S <sub>8</sub> 141,90	S <sub>9</sub> 80,20	S <sub>9</sub> 109,80
$U_3O_8$ TOTAL (ppm)	56,00	48,00	30,00	21,00	2310,00	18,00	49,00	24,00	36,00	50,00	21,00	23,00
$U_3O_8$ SOLÚVEL (ppm)	36,08	34,27	21,55	3,70	2306,28	14,15	29,54	19,11	29,14	27,84	15,56	—
$U_3O_8$ FIXO (ppm)	19,92	13,73	8,45	17,30	3,72	3,85	19,46	4,89	6,86	22,16	5,44	—
$ThO_2$ (ppm)	270,00	240,00	250,00	180,00	230,00	220,00	210,00	240,00	220,00	310,00	110,00	120,00

secundárias, e a minerais acessórios como zircão e allanita.

**DISTRIBUIÇÃO DE RÁDIOELEMENTOS** O urânio, elemento geoquimicamente litófilo, tende a acompanhar o trend de diferenciação magnética, em que as maiores concentrações se relacionam às rochas com conteúdos elevados em  $SiO_2$ . Durante o desenvolvimento evolutivo dos processos magnéticos, tanto o U quanto o Th se acumulam nos diferenciados ácidos e alcalinos enriquecidos em Na e K, e saturados em componentes voláteis, nos quais o urânio apresenta maior mobilidade que o tório e, consequentemente, migra com maior facilidade, permanecendo associado a diferenciados residuais ou escapando juntamente com as frações pós-magnéticas; o tório permanece de preferência retido na fusão (Turovskii 1957, Wedepohl 1969).

Encontrado sob a forma de traços em vários minerais, o urânio é mais concentrado em poucas espécies mineralógicas. O processo de sua incorporação aos principais minerais formadores de rocha, como quartzo e feldspato, permanece obscuro, embora possam ser aventadas as seguintes

possibilidades: a. substituição isomórfica no retículo cristalino; b. concentração ao longo de imperfeições; c. adsorção pelas imperfeições cristalinas e nos bordos dos grãos; e d. inclusões como microcristais de minerais de urânio (Wedepohl *op. cit.*).

Além de se associar a minerais essenciais, o urânio (e o tório) se encontra, em geral, em grãos de acessórios, isolados ou inclusos nos minerais essenciais. Os principais concentradores deste elemento são zircão, titanita, allanita, apatita, epidoto, monazita, rutilo, anatásio, leucoxênio, fluorita, ilmenita e magnetita (Berzina *et. al.* 1974).

No Granito Serra do Carambeí foram identificados nos testes autorradiomicrográficos traços de partículas α em feldspato potássico, restritos a superfícies de clivagens e microfraturas, porém sempre com baixa densidade em virtude das modestas concentrações em  $U_3O_8$ . Nos diques felsicos não se observou a presença de partículas radioativas associadas a minerais essenciais. Nos estudos autoradiomicrográficos realizados em amostras do granito verificou-se a emissão de traços α associados a cristais de xenotima, com bordos

corroídos e microinclusões de minerais opacos (Fotomicrografias 1a e 1b). A xenotima ocorre no granito em porcentagens modais pouco significativas, sendo de preferência encontrada em seção basal. Devido à radioatividade, é comum observar-se um mascaramento da coloração e de certas propriedades ópticas deste mineral. Entretanto, em grãos menos alterados, o índice de refração e a birrefringência conduziram à sua identificação.

Nos diques felsicos foram detectados traços α apenas em grãos de zircão parcial ou totalmente metamictizados (Fotomicrografias 1c e 1d). O mineral ocorre como diminutas pontuações com colorações castanhas preservando algumas vezes um núcleo desprovido de impregnações ferruginosas; estas segregações se assemelham aos *hot spots* descritos por Zielinski et al. (1980) em tufo zeolitizado dos Estados Unidos.

O zircão dos diques foi analisado por microscopia eletrônica de varredura (MEV), utilizando-se a técnica de elétrons retrodifundidos. A análise por fluorescência de raios X revelou a presença de Th, com pequena quantidade de Hf e Fe.

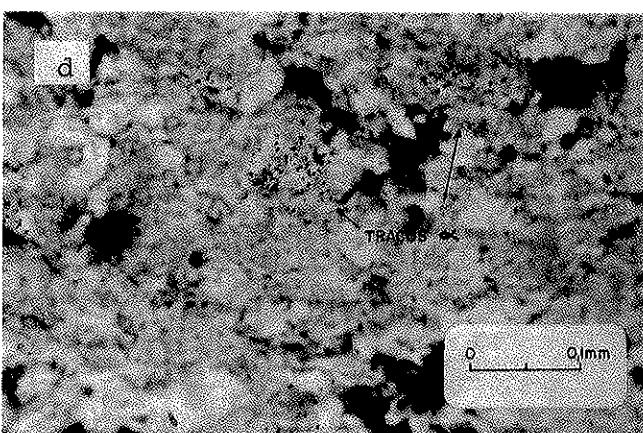
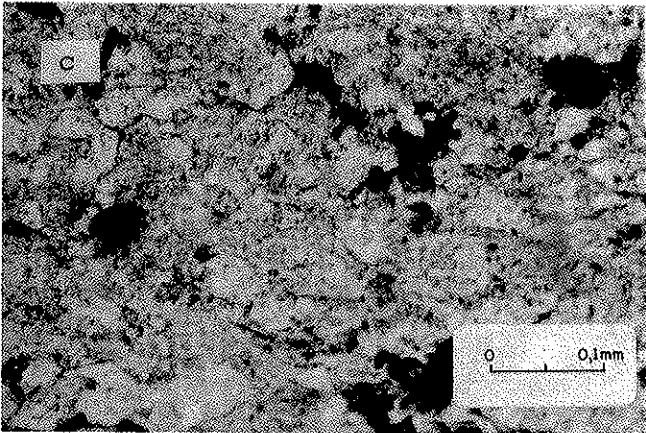
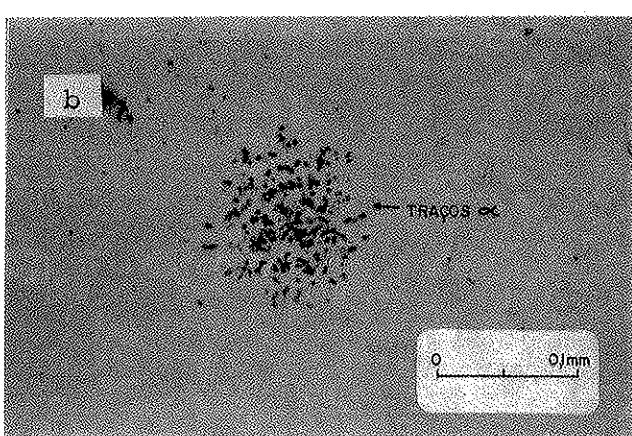
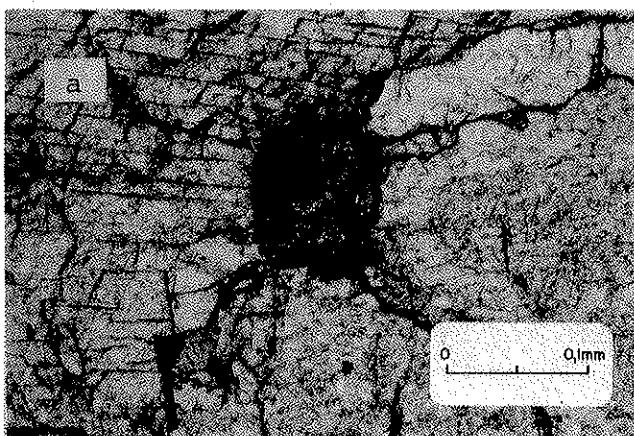
Outro ponto da rocha analisado por esta técnica (Fotomicrografia 2a) mostra, no espectro de fluorescência de raios X, a presença de Th, Fe, Ca, Si, Al e ETR (Ce e Nd), indicando a presença de allanita. A repartição do Th pode ser vista na imagem eletrônica da fotomicrografia 2b, em que as porções com maior acúmulo de pontos com colorações

cinza-claras representam os sítios preferenciais de localização deste elemento, ou seja, o Th tende a se concentrar em maiores quantidades nos bordos do cristal de allanita.

Outra forma de ocorrência de urânio em rochas graníticas, além dos minerais essenciais e dos resistatos primários, é a que se concentra ao longo de superfícies de fraturas, contatos entre os cristais, zonas de alteração, dissolução em inclusões fluidas e fluidos intergranulares, normalmente designada urânio intergranular ou intersticial (Zielinski *op. cit.*, Tieh *et al.* 1980, Speer *et al.* 1981), facilmente removida da rocha hospedeira. Wilson (1977) (*apud* Zielinski *op. cit.*) classifica o urânio intersticial em dois tipos: a. primário: desenvolve-se a partir do limite entre os cristais, em clivagens, defeitos no retículo cristalino, sendo distribuído, provavelmente, por fluidos metamórficos ou hidrotermais; e b. secundário: adsorvido em água subterrânea por produtos de alteração secundária como óxidos hidratados de Fe-Mn-Ti.

No Granito Serra do Carambel, o urânio intersticial, que representa a maior parte do elemento presente na rocha, como já se comentou, ocorre principalmente sob a forma primária, considerando-se a classificação supramencionada, sobretudo ao longo de planos de clivagens de feldspato potássico e no contato entre os minerais essenciais.

Observou-se, ainda, baixa densidade de traços α associados a superfícies de clivagens de biotitas alteradas e, ainda, a minerais opacos (magnetita) inclusos nos mesmos. A presença de clorita, ao que tudo indica, não desempenhou



Fotomicrografia 1 – a. Cristal de xenotima incluso em feldspato potássico originando fraturas radiais, Granito Serra do Carambel. Nicós paralelos. b. Traços de radiação α emitidos pelo cristal da fotomicrografia anterior. Nicós paralelos. c. Opacos pontuais (zircão) metamictizados e impregnados por óxidos de ferro. Dique felsico associado ao Granito Serra do Carambel. A matriz da rocha tem composição quartzo-feldspática. Nicós paralelos. d. Traços de partículas α emitidos pelos minerais da fotomicrografia anterior. Verifica-se ligeiro deslocamento do detector para a esquerda. Nicós paralelos

função importante na distribuição de radioelementos, uma vez que amostras de granito com quantidades acentuadas deste mineral exibem teores médios de  $U_3O_8$  semelhantes, por vezes inferiores, àquelas em que a sua presença se dá de forma pouco significativa.

Além dos minerais opacos associados à biotita, notam-se, neste granito, cristais alterados de ilmenita com manchas de coloração castanho-avermelhada e amarelada, dispostos entre os constituintes da rocha, parcialmente translúcidos (Fotomicrografia 2c) e que fornecem grande densidade de traços α (Fotomicrografia 2d). Este mineral foi identificado pelo exame ao estereomicroscópio e de testes de microquímica qualitativa. Observa-se que sua radioatividade não se distribui de forma homogênea ao longo do cristal, havendo locais onde não se dá a emissão de partículas α. Baixa densidade de emissão foi, por outro lado, diagnosticada em grãos opacos com hábito idiomórfico (pirita?). Não obstante as diversas técnicas empregadas, não foi identificado nenhum mineral primário de urânio. Entretanto, não deve ser totalmente inviabilizada a possibilidade da existência de microinclusões de uraninita ou pechblenda em constituintes mineralógicos do granito e dos diques associados.

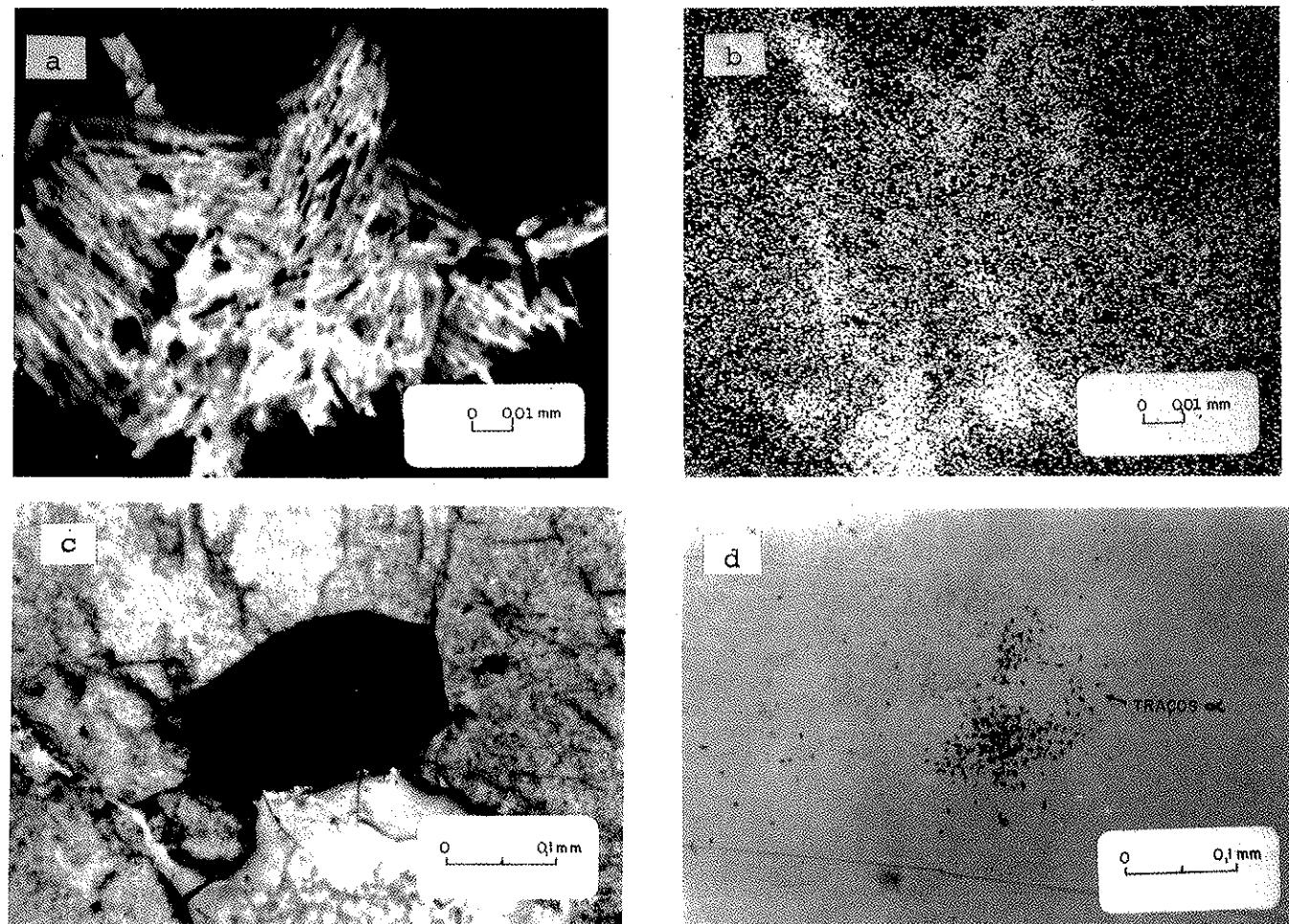
A utilização de diagramas bivariados, considerando-se tão-somente as concentrações de  $U_3O_8$  em relação a elementos maiores ou traços do granito em questão, mostrou-se pouco funcional, sobretudo devido à grande dispersão dos valores analíticos encontrados. Em consequência, na maior parte dos casos, poder-se-iam inferir

trends opostos entre si no mesmo gráfico, comprometendo assim os resultados interpretativos. As maiores dispersões foram observadas justamente no urânio. Segundo Padma Kumari *et al.* (1977) e Ragland *et al.* (1967), o controle secundário da incorporação do urânio, causado por processos oxidantes ativos nos estágios finais da fusão granítica, tem sido empregado para explicar sua dispersão, na qual a distribuição errática se deve às elevadas pressões de oxigênio no magma.

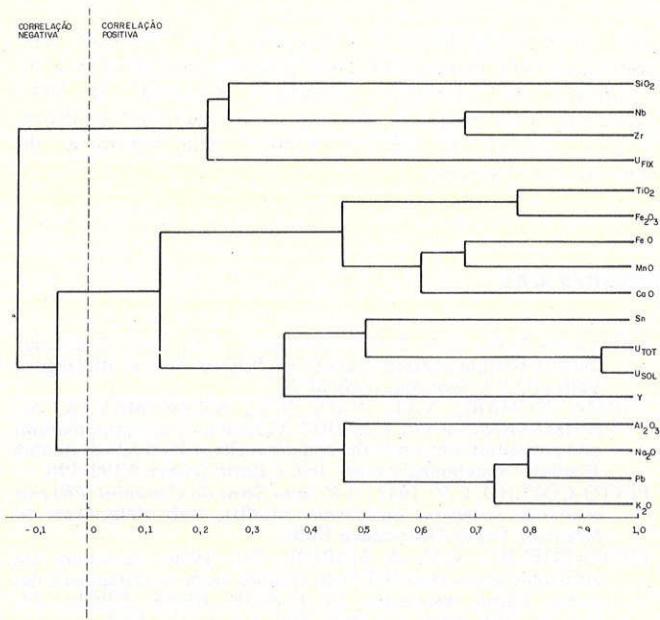
Para minimizar esta deficiência, optou-se pela construção de matrizes de correlação e respectivos dendrogramas, empregando-se os óxidos e alguns elementos-traços do Granito Serra do Carambel; tal procedimento não foi utilizado para os diques felsicos em virtude de o número de amostras analisadas ser inferior ao mínimo de 30, tido como de maior representatividade estatística e também devido ao fato de vários elementos maiores se situarem muito próximo ao limite de detecção inferior do método analítico empregado, o que comprometeria os resultados finais. A descrição detalhada do método de matrizes e dendrogramas encontra-se em Davis (1973).

Na figura 2 observa-se o dendrograma resultante da matriz de correlação entre elementos maiores e traços do granito em discussão; os valores dos coeficientes de correlação acham-se na Tabela 3.

Não obstante sua maior eficácia em relação aos diagramas bivariados, tal matriz deve ser encarada aqui com certa prudência, uma vez que as informações retiradas da mesma e



Fotomicrografia 2 – a. Imagem por elétrons retrodifundidos de allanita portadora de Th, Fe, Ca, Si, Al, Ce e Nd. Dique felsico intrusivo no Granito Serra do Carambel. Fotografia cedida por L. Izoret. b. Repartição de tório na fase mineral da fotomicrografia anterior, cedida por L. Izoret. c. Cristal de ilmenita parcialmente translúcida, inclusa em feldspato potássico do Granito Serra do Carambel. Nicós paralelos. d. Traços de partículas α emitidos pelo mineral da fotomicrografia anterior. Nicós paralelos



*Figura 2 – Dendrograma resultante da matriz de correlação entre elementos maiores e traços do Granito Serra do Carambeí*

do dendrograma não assumem caráter definitivo, devendo ser tratadas dentro de um contexto lógico, respaldado por dados petrográficos e petroquímicos.

A partir do exame desses dados, nota-se que o urânio total apresenta fraca correlação positiva (0,0874) com  $\text{SiO}_2$  e  $\text{K}_2\text{O}$  (0,0029); com os demais óxidos, a correlação é negativa. Em relação aos elementos-traços, verifica-se correlação positiva apenas com Sn (0,04322), Y (0,2637) e  $\text{U}_3\text{O}_8$  solúvel, esta última bastante elevada (0,9262). Tal comportamento pode ser atribuído à concentração do elemento radioativo em xenotina. A elevada razão urânio solúvel/urânio total em rochas ígneas – no caso do Granito Serra do Carambeí a média global é de 0,69 – é, segundo Kotopouli *et al.* (1982), indicativa de alteração deutérica ou atividade hidrotermal.

O urânio fixo se correlaciona positivamente com Zr, Nb,  $\text{SiO}_2$  e  $\text{K}_2\text{O}$  (Fig. 2 e Tab. 3), consistente desta maneira com a

sua concentração em minerais acessórios resistatos como xenotina e zircão no líquido leucocrático residual rico em SiO<sub>2</sub> e K<sub>2</sub>O. A correlação positiva, da ordem de 0,2637 e 0,3745 entre urânio total e solúvel, respectivamente, e Y, é compatível com a concentração deste elemento em xenotina.

A existência de traços de partículas α associados a feldspato potássico deste granito é confirmada aqui pela fraca correlação positiva (0,0029) verificada entre urânio total e K<sub>2</sub>O. Embora não se tenha identificado a presença de traços α associados ao zircão, a correlação positiva entre Zr e U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> fixo (0,1090) permite supor a existência deste elemento radioativo incorporado à estrutura do mineral; a associação entre ambos é usual, sendo comumente observada a substituição do U por Zr na estrutura da pechblenda (Forbes et al. 1984).

A correlação entre  $TiO_2$ ,  $Fe_2O_3$ , FeO, MnO e CaO (Fig. 2) refere-se, provavelmente, à titanita, acessório comum no plúton em discussão. Correlação positiva verificada entre urâno solúvel e  $Fe_2O_3$  faz supor que as microfissuras anastomosadas freqüentemente encontradas em feldspato potássico deste granito e preenchidas por material castanho-avermelhado contenham, além de óxidos/hidróxidos de ferro, elementos radioativos (Pinto-Coelho 1986).

## **CONCLUSÃO**

**CONCLUSÃO** O conteúdo total de urânio existente no Granito Serra do Carambeí e nos diques felsíticos associados está representado pela somatória de: a. urânio contido em minerais alterados (biotita); b. urânio em fases mineralógicas acessórias (xenotima, zircão, ilmenita); e c. urânio presente sob a forma de fases intersticiais ou intergranulares, que nos dois tipos litológicos compreende as maiores concentrações do elemento.

A homogeneidade na distribuição dos álcalis (Pinto-Coelho *op. cit.*), excetuando-se, evidentemente, as variações devidas a processos intempéricos, é compatível com a formação dos diques félscicos a partir de processos ígneos primários, aos quais não foram superimpostos fenômenos secundários de metassomatismo com efeito marcante em seu químismo. As concentrações de urânio encontradas nessas rochas se devem simplesmente ao enriquecimento do metal no resíduo final durante o processo de cristalização magnética.

A existência de correlação positiva entre urânio e elementos-traços imóveis como Y, Zr e Nb é consistente com a concentração do metal de preferência em minerais acessórios.

## Agradecimentos

A Gilmar Paiya Lima, gerente de

Tabela 3 – Matriz de correlação entre elementos maiores e traços do Granito Serra do Carambet.

Apoio Técnico e Desenvolvimento Tecnológico da Mineropar, por tornar possível a elaboração deste artigo; à datilógrafa Ana Maria Gapiski e à desenhista Roseneide Ogleari Gonçalves; aos professores da Universidade de Brasília O.J. Marini, eterno orientador, pela leitura do manuscrito e sugestões apresentadas, e H. Jost, pelo auxílio no tratamento

dos dados estatísticos; à Nuclebrás, pela liberação dos testemunhos de sondagem e análises químicas efetuadas; a K. Fuzikawa, da Nuclebrás, Escritório Regional de Belo Horizonte, pela realização dos testes autoradiomicrográficos, e a L. Izoret, do BRGM, França, pela realização da microscopia eletrônica.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- BERZINA, I.G.; YELISEYEVA, O.P.; POPENKO, D.P. 1974. Distribution relationships of uranium in intrusive rocks of Northern Kazakhstan. *Int. Geol. Rev.* 16:1191-1204.
- BOWIE, S.H.U. 1951. Autoradiographic techniques in geological research. *Bull. Geol. Survey Great Britain*, v.3, p.58-79.
- BRANDÃO, P.M.C. 1984. Uso de detectores plásticos em estudos autoradiomicrográficos de minerais radioativos da Província Urânferra de Lagoa Real, BA. In: CONGR. BRAS. GEOL., 33, Rio de Janeiro, 1984. *Anais...* Rio de Janeiro, SBG. v.3, p.1518-1529.
- CHAROY, B. 1979. Définition et importance des phénomènes deutériques et des fluides associés dans les granites: conséquences métallogéniques. *Sciences de la Terre*, Mém 37, 364 p.
- COPPENS, R.; RICHARD, M.; RICHARD, P. 1979. Utilisations comparées des emulsions photographiques nucléaires et des films de nitrate de cellulose dans l'étude des rayons  $\alpha$  en géologie et minéralogie. s.n.t.
- DARNLEY, A.G. 1982. "Hot" granites: some general remarks. In: MAURICE, Y.T. ed. *Uranium in granites*. Geol. Surv. Canada, paper 81-23 p. 1-10.
- DAVIS, J.C. 1973. *Statistics and data analysis in geology*. New York, John Wiley & Sons Inc. p. 456-473.
- DE LA ROCHE, H.; LETERIER, J.; GRANDCLAUDE, P.; MARCHAL, M. 1980. A Classification of volcanic and plutonic rocks using  $R_1R_2$  - diagram and major element analyses -its relationships with current nomenclature. *Chem. Geol.* 29: 183-211.
- FORBES, P.; PACQUET, A.; CHANTRET, F.; OUMAROU, J.; PAGEL, M. 1984. Marqueurs du volcanisme dans le gisement d'uranium d'Akonta (République du Niger). *C.R. Acad. Sc. Paris*, t. 298, série II n° 15, p. 647-650.
- GANDHI, S.S. 1978. Geological setting and genetic aspects of uranium occurrences in the Kaipokok Bay, Big River area, Labrador. *Econ. Geol.* 73:1492-1522.
- HAUSEUX, M.A. 1977. Mode of uranium occurrence in a migmatitic granite terrain, Baie Johan Beetz, Québec. *Can. Min. Metall. Bull.*, p.110-116.
- HOUSTON, S.M. & JEFFERIES, N.L. 1982. CR-39 $\alpha$  - Particle autoradiographs of some radioactive minerals from SW England. INTERNAT. CONF. BRISTOL ON SOLID STATE NUCLEAR TRACK DETECTORS. Bristol, 1982 *Proceed...* Bristol. p.621-625.
- JACOB, R.E. 1974. The radioactive mineralisation in part of the Central Damara Belt, South West Africa, and its possible origin. *At. En. Board S. Afr. Rep.* PIN-234 (BR), 17 p.
- KHADDURI, I.Y. 1982. On the use of cellulose nitrate film for uranium exploration. In: INTERNAL. CONF. BRISTOL ON SOLID STATE NUCLEAR TRACK DETECTORS. 11, Bristol, 1982. *Proceed...* p. 785-797.
- KOTOPOULI, C.N. SMITH, A.Y.; BROWN, A.A.; LUNDBERG, B.R. 1982. Petrographic relations and uranium distribution in the Skaloti Granitoid Complex, Paranection District, Greek Macedonia. *Econ. Geol.* 77:1787-1892, 892.
- KWINTA, J.; DEMANGE, J.; MICHAEL, J.J. 1980. Etude de la répartition de l'uranium dans les roches par la méthode des traces de fission. Application à l'échantillonage en vue du dosage de l'uranium. *J. Radioanal. Chem.* 55:233-252.
- MOREAU, M. 1977. L'uranium et les granitoïdes: essai d'interprétation In: JONES, M.J. ed. *Geology, mining and extractive processing of uranium*. London, I.M.M. p.83-102.
- NARAYAN DAS, G.R. & BHATNAGAR, G.S. 1981. Uraninite-fluorite-bearing sheared granites of Brijrani Gad in Bhilangana Valley (U.P.). *Geol. Soc. India* 22:247.
- PADMA KUMARI, V.M.; RAO, N.V.; SITARAMAYYA, S.; BHIMASANKARAM, L.S. 1977. Variation of uranium, thorium and potassium contents in the granitic rocks of Hyderabad, Andhra Pradesh - a preliminary study. *Ind. J. Earth Science* 4:192-196.
- PINTO-COELHO, C.V. 1982. *O Granito Serra do Carambeí (PR) e as anomalias uraniferas associadas*. Brasília, UnB 309p. (Tese de Mestrado, Depto. Geociências UnB).
- PINTO-COELHO, C.V. & MARINI, O.J. 1986. Assinatura em elementos terras-raras (ETR) do Granito Serra do Carambeí e das rochas ígneas associadas. In: CONGR. BRAS. GEOL., 34, Goiânia, 1986. *Anais...* Goiânia, SBG. v.3, p.1311-1321.
- RAGLAND, P.C.; BILLINGS, G.K.; ADAMS, A.S. 1967. Chemical fractionation and its relationship to the distribution of thorium and uranium in a zoned granite batholith. *Geoch. Cosmoch. Acta* 31:17-33.
- SIMPSON, P.R.; PLANT, J.; COPE, M.J. 1976. Uranium abundance and distribution in some granites from northern Scotland and south west England as indicators of uranium provinces. In: *Geology, mining and extractive processing of uranium*. JONES, M.J. ed. London, IMM, p.126-136.
- SPEER, J.A.; SOLBERG, T.N.; BECKER, S.W. 1981. Petrography of the uranium-bearing minerals of the Liberty Hill Pluton, South Carolina: phase assemblages and migration of uranium in granitoid rocks. *Econ. Geol.* 76:2162-2175.
- STRECKEISEN, A. 1976. To each plutonic rock its proper name. *Earth Sci. Rev.* (12):1-33.
- TAMMEMAGI, H.Y. & SMITH, N.L. 1975. A radiogeologic study of the granites of SW England. *J. Geol. Soc. London* 131:415-427.
- TIEH, T.T.; LEDGER, E.B.; ROWE, M.W. 1980. Release of uranium from granitic rocks during in situ weathering and initial erosion (Central Texas). *Chem. Geol.* (29):227-248.
- TUROVSKII, S.D. 1957. Distribution of radioactive elements in intrusive rocks of northern Kirgizia. *Geochemistry* 2:199-215.
- TUTTLE, O.F. & BOWEN, N.L. 1958. Origin of granite in the light of experimental studies in the system  $NaAlSi_3O_8-KAlSi_3O_8-SiO_2-H_2O$ . *Geol. Soc. Am. Memoir*, 47:1-153.
- WEDEPOHL, K.H. 1969. *Handbook of Geochemistry*. Vol. II, sec. 90 and 92. Berlin, Heidelberg and New York. Springer-Verlag.
- WRIGHT, J.B. 1969. A simple alkalinity ratio and its application to questions of non-orogenic granite genesis. *Geol. Mag.* 106:370-384.
- ZIELINSKI, R.A. 1979. Uranium mobility during interaction of rhyolitic obsidian, perlite and felsite with alkaline carbonate solution:  $T = 120^{\circ}\text{C}$ ,  $P = 210 \text{ kg/cm}^2$ . *Chem. Geol.* 27:47-63.
- ZIELINSKI, R.A.; LINDSEY, D.A.; ROSHOLT, J.N. 1980. The distribution and mobility of uranium in glassy and zeolitized tuff, Keg Mountain area, Utah, USA. *Chem. Geol.* (29):139-162.

MANUSCRITO 524

Recebido em 24 de fevereiro de 1988  
Revisão aceita em 11 de agosto de 1988