

# Radioactividad natural de granitos empleados como áridos en la preparación de morteros y hormigones

*Natural radioactivity of granites used as aggregates in the preparations of mortars and concretes*

Mar Alonso <sup>a</sup>, José Antonio Suárez-Navarro<sup>b</sup>, Miguel Angel Sanjuán<sup>c</sup>,

Catalina Gascó<sup>d</sup>, Cristina Argiz<sup>e</sup>, Francisca Puertas<sup>f\*</sup>

- a. Dr. CC. Químicas. Instituto de Ciencias de la Construcción Eduardo Torroja (IETcc-CSIC) [mmalonso@ietcc.csic.es](mailto:mmalonso@ietcc.csic.es);
- b. Dr. CC. Químicas, CIEMAT [ja.suarea@ciemat.es](mailto:ja.suarea@ciemat.es)
- c. Dr. CC Químicas, Instituto Español del Cemento y sus Aplicaciones [masanjuan@ieca.es](mailto:masanjuan@ieca.es)
- d. Dr. CC Químicas, CIEMAT [catalina.gasco@ciemat.es](mailto:catalina.gasco@ciemat.es)
- e. Dr. CC Químicas, ETSI. Caminos, Canales y Puertos (UPM) [cg.argiz@upm.es](mailto:cg.argiz@upm.es);
- f. Prof. Dr. CC. Químicas. Instituto de Ciencias de la Construcción Eduardo Torroja (IETcc-CSIC) [puertasf@ietcc.csic.es](mailto:puertasf@ietcc.csic.es);  
[Corresponding author](#)

## RESUMEN

Se han caracterizado tres granitos gallegos de tres canteras diferentes desde el punto de vista químico y radiológico, estableciendo las relaciones existentes entre la granulometría y composición química de los mismos con los valores de radioactividad natural obtenidos. Los tres granitos presentan valores de actividad superiores a los fijados en la Directiva europea 2013/59/EURATOM.

Los resultados han mostrado claras diferencias en la radioactividad de los tres granitos y su influencia final en los morteros elaborados con ellos. En las condiciones ensayadas dichos morteros cumplen con los requisitos de la Directiva europea.

## ABSTRACT

Three Galician granites of three different quarries have been characterized from the chemical and radiological point of view, establishing the existing relationships between the granulometry and chemical composition of these granites with the natural radioactivity values obtained. The three granites have activity values higher than those set in the European Directive 2013/59/EURATOM.

The results have shown clear differences in the radioactivity of the three granites and their final influence on the mortars made with them. Under the conditions tested, these mortars meet the requirements of the European Directive.

**PALABRAS CLAVE:** Granitos, morteros, áridos, radioactividad natural, granulometría

**KEYWORDS:** Granites, mortars, aggregates, natural radioactivity, granulometry

*Alonso, Suárez-Navarro, Sanjuán,*

## 1. Introducción

Grandes zonas del noroeste español (Galicia) están asentadas sobre rocas graníticas (ver Figura 1). El granito es una roca ígnea que está constituida, fundamentalmente, de cuarzo, feldespato y mica. Sin embargo, estos materiales graníticos pueden tener muy diversas historias geológicas, dando lugar a materiales con una alta variabilidad química y mineralógica [1]. Además, debido a su composición química contiene radionucleidos derivados de las series radioactivas del  $^{238}\text{U}$  y  $^{232}\text{Th}$ , que junto con el  $^{40}\text{K}$  son la principal fuente de radiación interna y externa en los materiales de construcción.

Desde antiguo esos granitos se han utilizado como material de construcción, tanto para exteriores como interiores. También estas rocas son empleadas como áridos en la preparación de morteros y hormigones.

Los materiales de construcción pueden contener niveles variables de radionucleidos, especialmente de  $^{226}\text{Ra}$  (de la serie de  $^{238}\text{U}$ ),  $^{232}\text{Th}$  and  $^{40}\text{K}$ . Estos elementos son utilizados para determinar los índices de concentración de actividad (*Activity Concentration Index*-“ACI”); que se calcula a partir de la Fórmula 1:

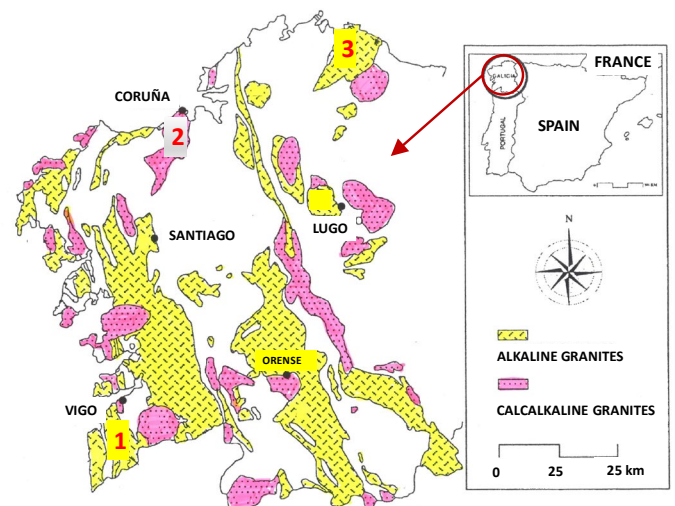
$$ACI = \frac{C_{226Ra}}{300} + \frac{C_{232Th}}{200} + \frac{C_{40K}}{3000}$$

C es la concentración de actividad expresada en  $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$  de los correspondientes radionucleidos. En los materiales de construcción los valores de concentración (C) pueden variar entre 1 y 4000  $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$  [2-7].

La Directiva 2013/59/EURATOM es la legislación más reciente en Europa sobre los estándares de protección contra radiaciones ionizantes. Esta Directiva establece, en su Artículo 75, que el nivel de referencia que se aplicará a la exposición externa en recintos cerrados a radiación gamma procedente de los

materiales de construcción adicionalmente a la exposición externa al aire libre, será de 1 mSv por año. Este valor se determina a través de las concentraciones de actividad de los radionucleidos, tal y como se expresó en la Fórmula 1.

Es por todo ello, que el objetivo general de este trabajo es determinar las concentraciones específicas de  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ , y  $^{40}\text{K}$  de tres granitos gallegos de diferente origen y su incidencia cuando dichos materiales son utilizados como áridos en la preparación de morteros. Se realizará un estudio comparativo con un árido silíceo normalizado según EN-196-1:2016.



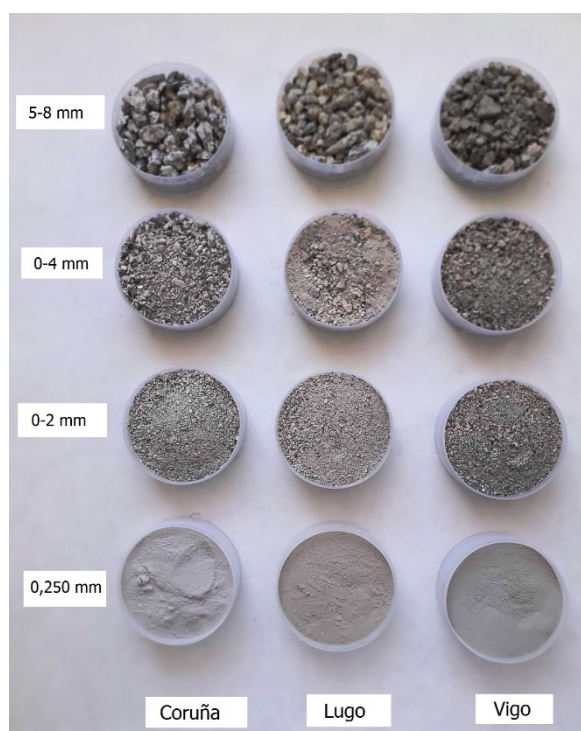
**Figura 1. Localización de las tres canteras de granito (Coruña, Vigo y Lugo) en el mapa de Galicia**

## 2. Parte Experimental

En este estudio se ha utilizado un cemento Portland (CEM I 52,5R sin adición mineral), una arena silíceo normalizada de acuerdo a EN-196-1:2016 y tres granitos gallegos de diferente localización geográfica: Coruña, Vigo y Lugo. Sobre estas muestras de granito se realizó una

molienda y un tamizado, recogiendo diferentes fracciones granulométricas, como las mostradas en la Figura 2. Sobre dichas fracciones, la muestra de cemento Portland y el árido silíceo se determinó:

- La composición química mediante FRX (Phillips PW-1004 XRF)
- Las concentraciones de actividad de los radionúclidos  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  y  $^{40}\text{K}$ , mediante espectrometría gamma utilizando un detector de germanio de alta pureza (HPGe).



**Figura 2. Muestras de granitos. Diferentes fracciones granulométricas**

Con la fracción granulométrica de los áridos graníticos inferior de 4 mm (fracción granulométrica 0-4 mm) se prepararon morteros de cemento (utilizando un CEM I 52.5R) de acuerdo con la norma europea EN 196-1: 2016. Los moldes empleados fueron cilíndricos (75 mm de diámetro y 30 mm de altura) como los mostrados en la Figura 2 para poder realizar los ensayos por espectrometría gamma. Se fijaron los siguientes parámetros en la preparación de los morteros: relación árido/cemento de 3/1 y

una relación agua/cemento de 0,5. Se prepararon también morteros de cemento con árido silíceo normalizado de acuerdo con EN 196-1: 2016. pero en este caso el tamaño máximo de grano del árido fue de 2mm.

### 3. Resultados y Discusión

#### 3.1. Composición química de los granitos

En la Tabla 1 se muestra la composición química de las diferentes fracciones granulométricas de los tres áridos gallegos estudiados, así como del cemento empleado en la preparación de los morteros y del árido silíceo normalizado.

Como se puede apreciar en la Tabla 1, hay diferencias composiciones entre los tres tipos de granito (Coruña (C), Lugo (L) y Vigo (V)); presentando, en términos generales, mayores contenidos de  $\text{SiO}_2$  los granitos de Vigo. Los mayores contenidos de  $\text{CaO}$  se dan en los granitos de Lugo; cuyo contenido aumenta a medida que disminuye el tamaño de sus partículas. También son estos granitos los que muestran los mayores contenidos en  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  a todas las fracciones granulométricas estudiadas. Los contenidos de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  disminuyen al disminuir el tamaño de grano en los tres granitos, siendo, en términos generales, algo mayores en los granitos de Coruña. Los contenidos de  $\text{Na}_2\text{O}$  y  $\text{K}_2\text{O}$  en los tres granitos son muy similares y sus variaciones son similares cuando disminuye el tamaño de sus partículas.

#### 3.2. Concentración de actividad gamma de los granitos

En la Tabla 2 se muestran los resultados de la concentración de actividad de  $^{40}\text{K}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  ( $^{226}\text{Ra}$ ) and  $^{212}\text{Pb}$  ( $^{232}\text{Th}$ ) determinada mediante espectrometría gamma de los granitos estudiados y de sus fracciones granulométricas, así como del árido normalizado y del cemento CEM I 52,5 R

**Tabla 1. Composición química (% peso) determinada a través de FRX de los tres granitos gallegos, del árido normalizado y del CEM I 52,5R**

Elementos	GRANITOS												Árido silíceo normalizado	CEM I 52,5R
	0,25 mm			0-2 mm			0-4 mm			5-8 mm			0-2 mm	0,045 mm
	C	L	V	C	L	V	C	L	V	C	L	V		
SiO <sub>2</sub>	72,20	71,65	75,57	73,51	69,72	74,60	69,94	63,70	70,19	70,14	68,92	70,95	96,80	19,36
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	17,11	13,89	13,89	14,12	12,53	12,77	15,62	14,15	16,56	14,95	15,45	14,96	1,50	4,42
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (total)	2,45	3,63	3,25	1,65	3,08	2,50	1,68	3,48	2,48	1,42	2,49	2,42	0,40	2,62
MnO	0,06	0,08	0,05	0,04	0,06	0,05	0,04	0,07	0,06	0,03	0,04	0,05	--	--
MgO	0,62	1,1	0,51	0,50	0,99	0,39	0,63	1,41	0,29	0,36	0,46	0,41	--	1,86
CaO	0,75	1,97	0,89	0,86	2,84	1,30	0,75	6,24	1,40	1,10	1,05	1,42	0,10	62,32
Na <sub>2</sub> O	2,35	2,33	2,54	2,86	2,71	3,15	2,56	2,66	3,18	3,29	3,08	3,62	--	0,09
K <sub>2</sub> O	2,67	2,35	2,34	4,89	4,70	4,31	7,19	5,52	4,78	7,33	6,65	5,46	0,60	0,94
TiO <sub>2</sub>	0,28	0,33	0,32	0,27	0,35	0,32	0,28	0,41	0,35	0,19	0,27	0,31	--	0,23
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0,10	0,09	0,09	0,15	0,08	0,07	0,15	0,14	0,08	0,28	0,07	0,08	--	0,16
SO <sub>3</sub>	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	3,23
LOI	1,23	2,70	0,46	1,10	2,90	0,50	1,10	2,20	0,60	0,89	1,50	0,60	0,60	2,75

C= Granito de Coruña; L= Granito de Lugo; V= Granito de Vigo

**Tabla 2. Valores de concentración de actividad de los radionucléidos <sup>40</sup>K, <sup>214</sup>Pb y <sup>212</sup>Pb a través de espectroscopía gamma de los tres granitos gallegos, del árido normalizado y del CEM I 52,5R**

Áridos y Cemento	Tamaño de grano (mm)	Concentración de Actividad (Bq kg <sup>-1</sup> )		
		<sup>40</sup> K	<sup>214</sup> Pb ( <sup>226</sup> Ra)	<sup>212</sup> Pb ( <sup>232</sup> Th)
A Coruña	0,25	1015 ± 43	200 ± 30	70,5 ± 5.7
	0-2	1030 ± 44	207 ± 31	72 ± 12
	0-4	1081 ± 92	180 ± 27	65 ± 11
	5-8	1206 ± 104	148 ± 22	63 ± 11
Vigo	0,25	945 ± 81	135 ± 20	99 ± 16
	0-2	875 ± 75	128 ± 19	90 ± 15
	0-4	841 ± 72	115 ± 17	86 ± 14
	5-8	1244 ± 106	99 ± 15	88 ± 14
Lugo	0,25	1032 ± 88	114 ± 17	161 ± 26
	0-2	933 ± 80	96 ± 15	148 ± 24
	0-4	1050 ± 90	90 ± 14	139 ± 23
	5-8	1347 ± 115	111 ± 17	152 ± 33
Árido silíceo normalizado	0 - 2	147 ± 13	4,2 ± 0.71	7,2 ± 1.2
CEM I 52,5R		205 ± 18	32,0 ± 4.9	15,0 ± 2.4

Los resultados obtenidos han mostrado que las concentraciones de actividad de las tres muestras de granito difieren estadísticamente de las del árido normalizado y el cemento Portland, siendo muy superiores a los de estos dos materiales.

Con respecto al tamaño de partícula de los áridos graníticos, se puede afirmar que la concentración de actividad gamma  $^{40}\text{K}$  es estadísticamente equivalente en el caso de las muestras de 0,25 mm, 0-2 mm y 0-4 mm. Sin embargo, se evidenció una mayor heterogeneidad en la concentración de actividad gamma de  $^{40}\text{K}$  en los áridos de 5-8 mm. La concentración de actividad gamma de  $^{214}\text{Pb}$  siguió una ligera tendencia decreciente cuando aumentaba el tamaño de grano del árido. Este comportamiento era esperado porque el  $^{222}\text{Rn}$  es un gas noble producido en la cadena de desintegración del  $^{238}\text{U}$ - a partir de su descendiente el  $^{226}\text{Ra}$ , que se difunde y desprende mejor en partículas más pequeñas que en las más grandes [8]. Se observó un efecto similar para  $^{212}\text{Pb}$ , pero en menor intensidad, debido principalmente al período de semidesintegración más corto del  $^{220}\text{Rn}$  (Torón), que es un gas noble producido en la cadena de desintegración del  $^{232}\text{Th}$ .

Las diferentes fracciones del árido de Lugo muestran valores más altos de  $^{212}\text{Pb}$  (serie del  $^{232}\text{Th}$ ) que los otros tres granitos; por otra parte, las fracciones de árido de Coruña son las que muestran los valores de concentración de actividad más elevados de  $^{214}\text{Pb}$  (proveniente del  $^{226}\text{Ra}$ ). En principio, y según los resultados de este estudio las fracciones del árido de Vigo son las que tienen concentraciones de actividad de  $^{214}\text{Pb}$  y  $^{212}\text{Pb}$  menores que los otros dos granitos.

En el estudio realizado hasta la fecha no queda suficientemente clara la influencia del tamaño de grano de los áridos graníticos sobre la presencia y concentración de los diferentes radionúclidos. Se precisan más estudios en este sentido.

El árido silíceo (con un rango de partículas entre 0-2 mm), y con una composición mineralógica del 99%, en cuarzo, tiene valores significativamente más bajos de  $^{40}\text{K}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  y  $^{212}\text{Pb}$ , como se puede observar en la Tabla 2.

Los valores de  $^{40}\text{K}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  y  $^{212}\text{Pb}$  obtenidos para el cemento CEM I 52,5R son coherentes con los obtenidos en estudios precedentes [2-3].

Aunque en la Directiva 2013/59/EURATOM (Anexo VII) se establece que el índice se aplica al material de construcción y no a sus componentes, se han determinado los índices de concentración de actividad (ACI) de los áridos graníticos (ver Tabla 2) para poder ver su peso en la composición del mortero final. Esos valores de ACI se han calculado a partir de la Fórmula 1 indicada anteriormente:

$$ACI = \frac{C_{226Ra}}{300} + \frac{C_{232Th}}{200} + \frac{C_{40K}}{3000}$$

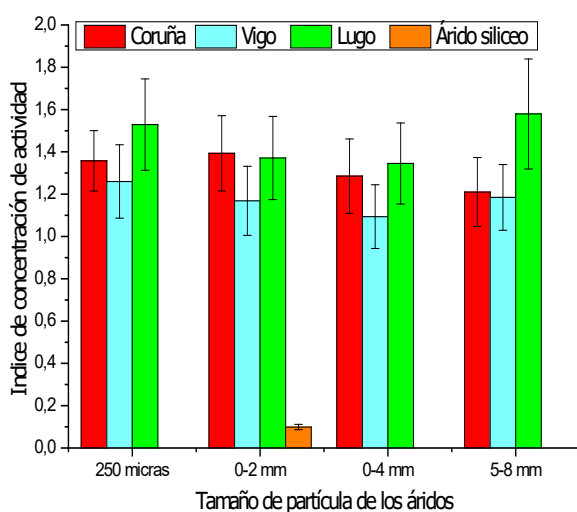
El valor de ACI calculado según esta ecuación para el cemento CEM I 52,5R es de 0,25; muy inferior al valor umbral ( $ACI > 1$ ) establecido por la Directiva 2013/59/EURATOM. Asimismo, el valor ACI de la arena silíceo normalizada es de 0,1; también muy inferior a ese valor umbral (se puede observar su valor en la Figura 2 en color naranja y en el rango 0-2 mm). Esto significa que los morteros que se puedan preparar con estos materiales estarán siempre por debajo de los valores de ACI considerados negativos o peligrosos por la UE.

En la Figura 3 se muestran la variación de los valores de ACI para las diferentes fracciones granulométricas de los tres áridos graníticos gallegos. Como se puede apreciar en esta Figura 3, todos los valores de ACI obtenidos para los tres granitos y en sus distintas fracciones granulométricas son superiores a 1.

La secuencia de mayor a menor del valor del ACI para los tres granitos es:

Lugo>Coruña>Vigo

Las granulometrías de los áridos no parecen tener un efecto muy sustancial en los valores finales de ACI, eso al menos es lo que se deduce en el rango granulométrico estudiado en este trabajo.



**Figura 3. Índices de concentración de actividad de los áridos granitos y árido silíceo normalizado**

**3.3. Concentración de actividad gamma de los morteros**  
Tal y como se indicó en la parte experimental se prepararon morteros de cemento con los áridos graníticos. Se seleccionó el tamaño de árido de los mismos entre 0-4 mm. Se aplicó la misma metodología descrita anteriormente para los áridos y el cemento para determinación de los radionúclidos  $^{40}\text{K}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  ( $^{226}\text{Ra}$ ) y  $^{212}\text{Pb}$  ( $^{232}\text{Th}$ ), y la obtención (según Fórmula 1) de los valores de ACI. Los resultados obtenidos se muestran en la Tabla 3.

**Tabla 3. Valores de ACI para los morteros elaborados con áridos graníticos y árido silíceo normalizado.**

Morteros CEM I 52,5R	Concentración de Actividad (Bq kg <sup>-1</sup> )			ACI
	$^{40}\text{K}$	$^{214}\text{Pb}$ ( $^{226}\text{Ra}$ )	$^{212}\text{Pb}$ ( $^{232}\text{Th}$ )	
(0-4 mm) Coruña	685 ± 59	116 ± 18	41,6 ± 7.1	0,822 ± 0,070
(0-4 mm) Vigo	608 ± 52	75 ± 11	59 ± 10	0,748 ± 0.091
(0-4 mm) Lugo	608 ± 52	60,1 ± 9.1	89 ± 15	0,8565 ± 0.0091
(0-2 mm) árido silíceo	130 ± 11	7,3 ± 1.2	8,9 ± 1.4	0,1120 ± 0.0086

Los resultados obtenidos muestran que los valores de ACI de los tres morteros preparados con áridos graníticos tienen valores inferiores a 1. Esto está mostrando el efecto de dilución que tiene el cemento Portland para reducir los valores elevados de ACI de los áridos graníticos. En las condiciones de preparación de estos morteros se deduce que todos ellos cumplirían los requisitos radiológicos exigidos para la Directiva 2013/59/ EUERATOM.

De cualquier manera, se aconseja que siempre que vayan a utilizar áridos graníticos sea recomendable hacer estudios radiológicos adecuados para dar conformidad a su utilización.

## 4. Conclusiones

Las principales conclusiones que se pueden extraer del presente estudio son:

- a) Se ha determinada la concentración de actividad gamma de áridos graníticos, de diferente procedencia gallega, y silíceo normalizado. Demostrándose que los primeros tienen unos valores de Índice de Concentración de Actividad (ACI) muy superiores al árido silíceo y superiores al valor de 1.

- b) Se ha comprobado que hay diferencias entre los áridos graníticos gallegos en sus valores de ACI, siendo el siguiente orden de mayor a menor:

Lugo>Coruña>Vigo

- c) Se ha demostrado también que existe una relación entre el tamaño de partícula del árido y las concentraciones de actividad de  $^{40}\text{K}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  ( $^{226}\text{Ra}$ ) y  $^{212}\text{Pb}$  ( $^{232}\text{Th}$ ). Sin embargo, más estudios son necesarios para establecer con más precisión esa relación.
- d) Se ha demostrado, sin lugar a dudas, el efecto de dilución que tiene el cemento en los valores de ACI de morteros preparados empleando áridos graníticos gallegos. En las condiciones de preparación de los morteros en este estudio (morteros 3/1, w/c=0,5 y áridos graníticos en un tamaño de partícula 0-4 mm), los valores de ACI obtenidos de todos los morteros estaban por debajo del valor umbral de 1. En estas condiciones los morteros se podrían preparar y poner en obra sin ningún riesgo radiológico.

### **Agradecimientos**

Los autores quieren agradecer al Ministerio de Ciencia, Innovación y Universidad y la Agencia Estatal de Investigación (AEI/FEDER, UE) la financiación del proyecto BIA2016-77252-P, dentro el cual se ha realizado esta investigación. Los autores también agradecen a P. Rivilla y A. Gil por su colaboración en algunos ensayos, y finalmente a Votorantim Cimentos por el suministro de algunos materiales.

### **Referencias**

[1] G. Dias, A. Mendes, P.P. Simoes, J.M. Bertrand., U–Pb zircon and monazite geochronology of postcollisional Hercynian granitoids from the Central Iberian Zone

(northern Portugal). *Lithos*, Volume 45, Issues 1-4, pp 349-369 (1998)

[2] Puertas, F.; Alonso, MM.; Torres-Carrasco, M.; Rivilla, P.; Gascó, C.; Yagüe, L.; Suárez, JA.; Navarro, N. *Radiological characterization of anhydrous/hydrated cements*. *Construc. Build. Mat.*, 101, 1105-1112 (2015)

[3] L. Labrincha, F. Puertas, et al., From NORM by-products to building materials. Chapter 7. 183-252. *Naturally Occurring Radioactive Materials in Construction*. Ed. W. Schroeyers, Elsevier (2017)

[4.] A.E.A. Extent of Environmental Contamination by Naturally Occurring Radioactive Material (NORM) and Technological Options for Mitigation. *Tech. Reports Ser. 419*. Vienna, Austria 419. (2003)

[5] CEN/TC 351. *Construction products: Assessment of release of dangerous substances. Radiation from construction products - Dose assessment and classifications of emitted gamma radiation*. 2013

[6] R. Trevisi, S. Risica, M. D'Álessandro, D. Paradiso, C.; Nuccetelli, Natural radioactivity in building materials in the European Union: a database and an estimate of radiological significance. *J. Environ. Radioactiv* 105 (2012) 11-20

[7] L.S. Quindos, G.J. Newton, Natural radioactivity of some Spanish building materials. *The Science of the Total Environment*, 68 (1988) 181-185

[8] R.R. Benke, K.J. Kearfott, Accounting for  $^{222}\text{Rn}$  loss during oven drying for the immediate laboratory gamma-ray spectroscopy of collected soil samples. *Applied Radiation and Isotopes*, Volume 52, Issue 2, pp 271-287 (2000)