



AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**ESTUDO DA EXALAÇÃO DE RADÔNIO EM PLACAS E TIJOLOS DE
FOSFOGESSO DE DIFERENTES PROCEDÊNCIAS**

LUCAS JOSÉ PEREIRA DA COSTA

**Dissertação apresentada como parte
dos requisitos para obtenção do grau
de Mestre em Ciências na Área de
Tecnologia Nuclear - Aplicações**

Orientador:

Dra. Marcia Pires de Campos

SÃO PAULO

2011

Dedico este trabalho aos meus
pais Dirceu e Zuelma que
sempre me apoiaram.

AGRADECIMENTOS

- Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares pela oportunidade de realizar este trabalho, em especial ao Laboratório de Radiometria Ambiental, sob a gerência da Dra. Barbara Paci Mazzili;
- À Dra. Marcia Pires de Campos pela oportunidade dada a mim para realizar este trabalho. Pela orientação. Por muito me ensinar. E pela paciência nos meus momentos difíceis;
- Aos meus pais pelo constante apoio. Sem vocês nada seria;
- A Valefert, pelo apoio econômico com a concessão da bolsa de mestrado para a realização desse trabalho;
- A minha namorada Lívia pela paciência e ajuda sempre;
- Ao Marcelo Bessa Nisti pela ajuda no preparo das amostras e na espectrometria gama;
- A todos os amigos que fiz no Laboratório de Radiometria Ambiental (LRA). Foi uma época marcante na minha vida;
- À empresa Inovamat, Inovação em Materiais Ltda., pelo fornecimento gentil de amostras das placas pré-fabricadas e pelos tijolos de fosfogesso.
- A todos que de alguma maneira colaboraram para a execução deste trabalho.

ESTUDO DA EXALAÇÃO DE RADÔNIO EM PLACAS E TIJOLOS DE FOSFOGESSO DE DIFERENTES PROCEDÊNCIAS

Lucas José Pereira da Costa

RESUMO

O fosfogesso é um resíduo da indústria de fertilizantes fosfatados que concentra radionuclídeos naturais. Neste trabalho foi estudada a taxa de exalação de ^{222}Rn em placas e tijolos de fosfogesso, visando sua utilização na construção de residências. Para tanto, foram determinadas a taxa de exalação de ^{222}Rn por meio da técnica da câmara de acumulação com detectores sólidos de traços nucleares (SSNTD) inseridos em uma câmara de difusão e a dose efetiva para um indivíduo habitando uma residência construída com esses materiais. A título de comparação foi também determinada a taxa de exalação teórica, por meio do modelo proposto pela UNSCEAR, a partir da concentração de ^{226}Ra nas placas e tijolos de fosfogesso. A contribuição do revestimento na superfície dos materiais para a diminuição da taxa de exalação de radônio foi também avaliada. Foram estudados placas e tijolos fabricados com fosfogesso das empresas Bunge Fertilizantes, Ultrafertil e Fosfertil e tijolos fabricados com gesso comum. Os valores médios obtidos foram $0,19 \pm 0,06 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, $1,3 \pm 0,3 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ e $0,41 \pm 0,07 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ para as placas fabricadas com fosfogesso proveniente das empresas Bunge, Ultrafertil e Fosfertil, respectivamente. Já para os tijolos de fosfogesso, os valores foram $0,11 \pm 0,01 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, $1,2 \pm 0,6 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, $0,47 \pm 0,15 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, para o fosfogesso da Bunge, Ultrafertil e Fosfertil. O tijolo fabricado com gesso comum apresentou valor médio de $0,18 \pm 0,08 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$. As doses efetivas anuais para um indivíduo habitando uma residência construída como os tijolos ou placas de fosfogesso de qualquer uma das procedências ficaram abaixo do limite de dose efetiva para indivíduos do público de $1 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ estabelecido pela Comissão Internacional de Proteção Radiológica.

STUDY OF RADON EXHALATION FROM PHOSPHOGYPSUM PLATES AND BLOCKS FROM DIFFERENT ORIGINS

Lucas José Pereira da Costa

ABSTRACT

Phosphogypsum is a waste of the fertilizer industry that concentrates radionuclides. In this work, the ^{222}Rn exhalation rate from phosphogypsum plates and blocks from different origins used at dwellings construction was studied. The ^{222}Rn exhalation rate was determined through the accumulation chamber technique with solid state nuclear track detectors (SSNTD). The effective dose for an individual living in a residence built with phosphogypsum based materials was evaluated. It also was calculated the ^{222}Rn exhalation rate through the UNSCEAR model, from the ^{226}Ra concentration in the materials, in order to compare the experimental results. It was evaluated the contribution of building component (paint) to the reduction of ^{222}Rn exhalation rate. The plates and blocks were manufactured with phosphogypsum from Bunge Fertilizantes, Ultrafertil and Fosfertil. Blocks manufactured with ordinary gypsum was also evaluated. The average results obtained were $0.19 \pm 0.06 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, $1.3 \pm 0.3 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ and $0.41 \pm 0.07 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ for plates manufactured with phosphogypsum from Bunge Fertilizer, Ultrafertil and Fosfertil, respectively. For the phosphogypsum blocks the values were $0.11 \pm 0.01 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, $1.2 \pm 0.6 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, $0.47 \pm 0.15 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, for Bunge, Ultrafertil and Fosfertil. The blocks manufactured with ordinary gypsum presented average value of $0.18 \pm 0.08 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$. All phosphogypsum plates and blocks evaluated in this study presented effective dose for radon inhalation lower than the recommended value of 1 mSv y^{-1} , the annual effective dose limit for public exposure by International Commission on Radiological Protection.

SUMÁRIO

PÁGINA

1. INTRODUÇÃO	7
1.1 Considerações Gerais	7
1.2 Objetivos do trabalho	17
2. METODOLOGIA	19
2.1 Considerações sobre o radônio e seus mecanismos de transporte.....	19
2.2 Determinação da taxa de exalação de radônio pela técnica da câmara de acumulação	23
2.3 Determinação da taxa de exalação de radônio nas placas e tijolos de fosfogesso por meio do modelo proposto pela UNSCEAR	26
2.4 Espectrometria gama.....	27
2.4.1 Fator de auto-atenuação	28
2.4.2 Densidade Real e Porosidade total	29
2.5 Avaliação dosimétrica.....	30
3. PARTE EXPERIMENTAL	34
3.1 Origem e fabricação das amostras.....	34
3.2 Determinação da taxa de exalação de radônio nas placas e tijolos de fosfogesso pela técnica da câmara de acumulação	35
3.3 Determinação dos níveis de radiação gama	36
3.3.1 Determinação das concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{210}Pb e ^{40}K nos tijolos de fosfogesso.....	36
3.4 Descrição da residência modelo construída com placas de fosfogesso.....	38
4. RESULTADOS E DISCUSSÃO	39
4.1 Taxa de exalação de ^{222}Rn nas placas e tijolos de fosfogesso pela técnica da câmara de acumulação.....	39
4.2 Concentração de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{210}Pb e ^{40}K nas placas e tijolos de fosfogesso	43
4.3 Taxa de exalação de ^{222}Rn nas placas e tijolos de fosfogesso por meio do modelo proposto pela UNSCEAR	44
4.4 Avaliação da contribuição do revestimento para a taxa de exalação de ^{222}Rn	52
4.4.1 Preparo das amostras com revestimento	52
4.5 Estimativa de dose efetiva.....	53
5. CONCLUSÕES	56
REFERÊNCIA BIBLIOGRÁFICAS	59

1. INTRODUÇÃO

1.1 Considerações Gerais

As fontes naturais de radiação são reconhecidamente a principal causa de exposição da população. Elas podem ser classificadas em fontes externas, tais como os raios cósmicos e elementos radioativos presentes no solo e nos materiais de construção e em fontes internas que resultam da inalação e ingestão de elementos radioativos naturais presentes no ar e na dieta alimentar. Uma característica bastante peculiar da irradiação advinda de fontes naturais é que ela atinge toda a população mundial a uma taxa relativamente constante durante um longo período de tempo (UNSCEAR, 2000).

Os radionuclídeos naturais dividem-se em primordiais, de meia-vida muito longa, e cosmogênicos, produzidos pela interação da radiação cósmica com átomos-alvo na atmosfera, como por exemplo, o ^{14}C , ^3H e ^{22}Na (UNSCEAR, 2000). Os radionuclídeos primordiais existem na crosta terrestre desde a sua formação, podendo ser integrantes de uma série de decaimentos radioativos, tais como, ^{238}U (meia-vida de $4,8 \times 10^9$ anos), ^{235}U (meia-vida $7,04 \times 10^8$ anos) e ^{232}Th (meia-vida de $1,40 \times 10^{10}$ anos) e que decaem para isótopos estáveis de chumbo, ou podem ser como o ^{40}K , que não compõe uma série radioativa e que decai diretamente para um núcleo estável.

Dentre as séries radioativas naturais, as do ^{238}U (FIG 1.1) e do ^{232}Th (FIG 1.2) são as que despertam maior interesse em termos de proteção radiológica, uma vez que o primeiro isótopo representa 100% do tório natural e o segundo está presente com 99,27% de porcentagem isotópica no urânio natural. O ^{235}U constitui somente 0,7% do urânio natural e a sua contribuição à exposição da população é considerada desprezível (Paes, 2001). Os radionuclídeos naturais urânio e tório são encontrados na crosta terrestre. Estes, por sua vez, decaem para radônio (^{222}Rn) e torônio (^{220}Rn), dessa forma é natural que haja um grande interesse em avaliar-se a dose causada pela exposição a esses radionuclídeos. (Paulo, 1991; UNSCEAR, 2000; Campos e Pecequilo., 2003; de Jong et al., 2006; Al-Azmi et al., 2008; Campos et al., 2010). Devido à meia-vida relativamente curta (55,2

segundos) do torônio em relação à do radônio (3,8 dias), o impacto radiológico associado a este último radionuclídeo é geralmente mais relevante que o associado ao outro isótopo, exceto nos casos em que grandes quantidades de ^{232}Th estão presentes em um material ou ambiente. Neste trabalho será estudada apenas a exalação de ^{222}Rn pelas placas e tijolos de fosfogesso.

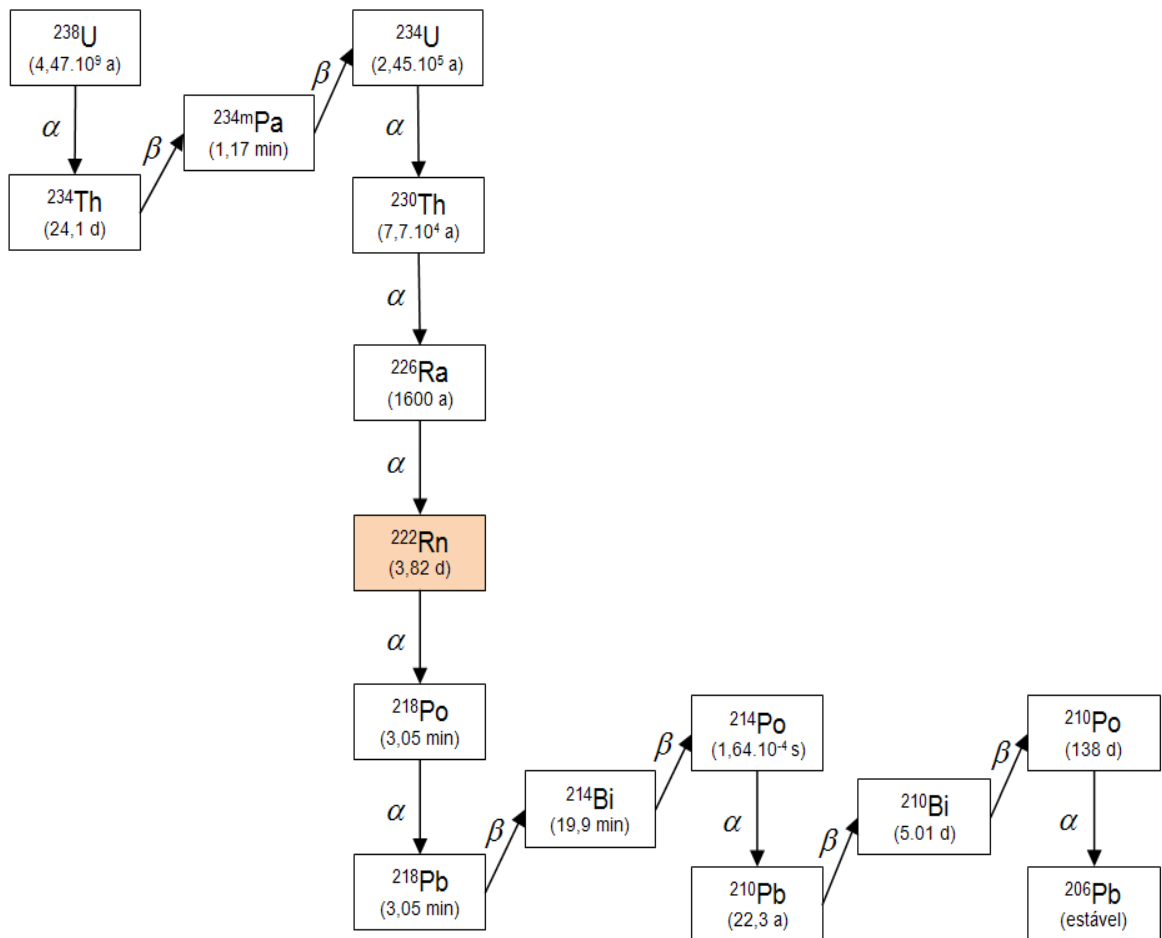


FIGURA 1.1: Série radioativa natural do ^{238}U

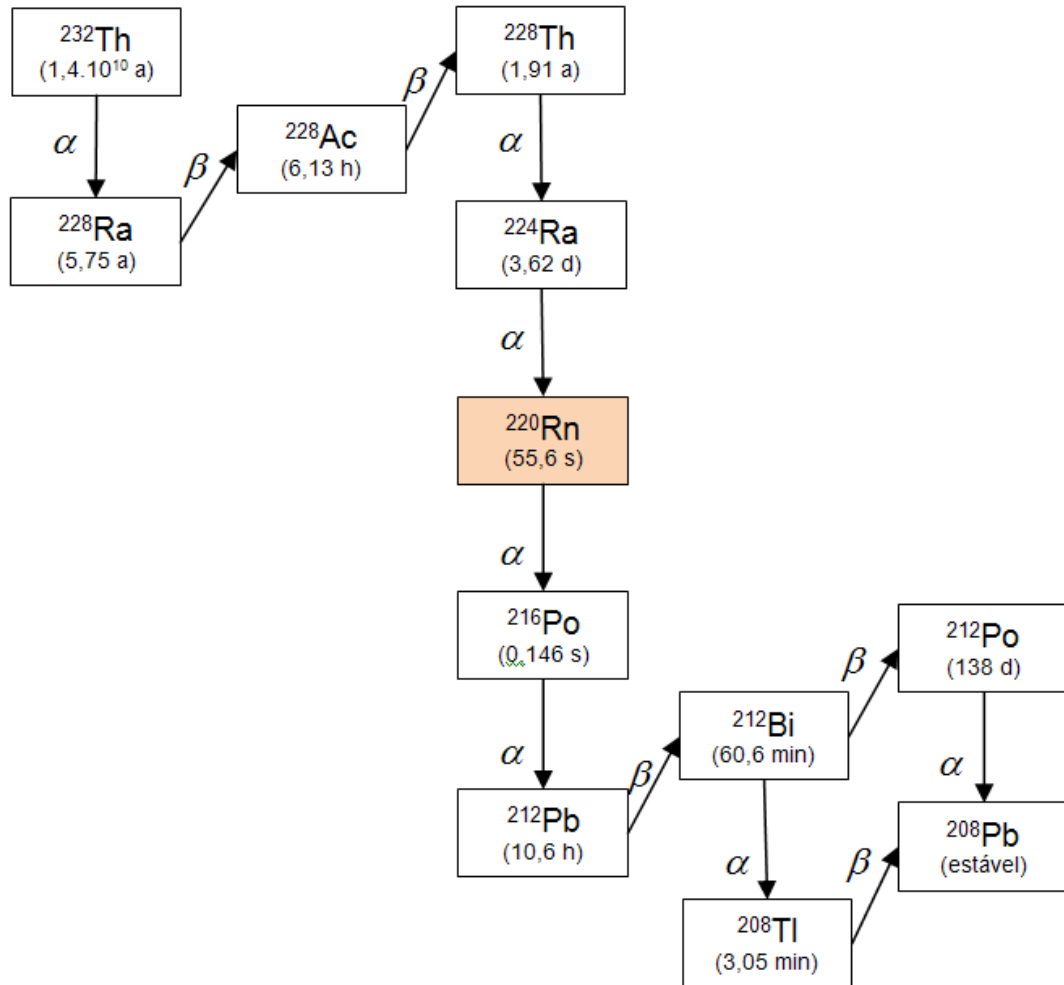


FIGURA 1.2: Série radioativa natural do ^{232}Th

Estima-se que a dose média anual resultante de fontes naturais de radiação seja de **2,4 mSv** (UNSCEAR, 2000), sendo 1,26 mSv por exposição devido à inalação, principalmente de radônio e seus filhos, 0,48 mSv devido à exposição gama externa, **0,29 mSv** pela ingestão de radionuclídeos e 0,39 mSv por exposição à radiação cósmica.

A população mundial como um todo, vem sendo submetida à radiação natural, numa razão relativamente constante e por um longo período de tempo. Estudos sobre essa exposição intensificaram-se a partir de meados da década de 70 e destacam a importância da avaliação das doses de radiação recebidas pelo homem no interior de residências. A exposição do homem à radiação natural no interior de residências ocorre por irradiação externa, devido às radiações gama emitidas pelos radionuclídeos naturais presentes nos materiais de construção e no solo; e por irradiação interna, devido à inalação dos isótopos

de radônio e de seus descendentes de meia-vida curta (Rosa, 1997). A maior parte do radônio presente no ar das residências origina-se do solo abaixo das construções. Contudo, não apenas o solo, mas também os materiais de construção são fontes importantes de radônio, uma vez que esses materiais podem ser fabricados a partir de substâncias retiradas do solo ou com resíduos que concentram radionuclídeos naturais.

A estimativa dos danos à saúde devidos à inalação de ^{222}Rn vem sendo extensivamente estudada, sendo os mineiros de urânio a principal fonte de informações sobre a relação entre inalação de radônio e casos de câncer de pulmão. Vários pesquisadores têm procurado evidências de que nos ambientes de convívio humano, principalmente nas residências, os efeitos desta exposição sejam tão prejudiciais à saúde das pessoas quanto no interior das minas (Neman, 2004).

A concentração de radônio em um ambiente depende principalmente da exalação do gás pelo solo e pelos materiais de construção, além taxa de ventilação no local. A taxa de exalação é definida como a atividade de radônio liberada da superfície de um material por unidade de tempo e depende do conteúdo de rádio do material, do fator de emanação, do coeficiente de difusão do gás no material, da porosidade e densidade do material (Sharma e Virk, 2001). O conhecimento da taxa de exalação de radônio dos materiais é um parâmetro muito importante na avaliação dos riscos à saúde em um ambiente, especialmente em locais fechados. Vários autores têm estudado a exalação de radônio em diversos tipos de materiais de construção e solos em diferentes regiões do mundo (Amrani e Cherouati, 1999, Sharma e Virk, 2001, Ujic et al., 2008), alguns desses autores sugerem que os materiais de construção devem ser classificados com base na sua taxa de exalação de radônio e estas correlacionadas com o índice de concentração de atividade (I), do inglês *activity concentration index*, que compara as concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K no material (Tuccimei et al., 2006) e é adotado como padrão de segurança na avaliação da exposição da população em residências (EC, 1999).

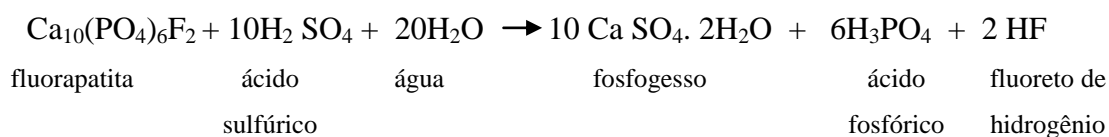
Os materiais que contêm radionuclídeos naturais podem ser classificados como NORM, do inglês, *Naturally Occurring Radioactive Materials*, ou TENORM, do inglês, *Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Material*. Os materiais denominados NORM incluem os elementos radioativos encontrados na natureza e embora a sua concentração na maioria das substâncias naturais sejam relativamente baixa, altas concentrações podem ocorrer devido às anomalias radiológicas. Quando o processamento

industrial de um material leva à concentração de radionuclídeos naturais e ao aumento do nível de radioatividade nesse material, ele é denominado TENORM.

Com o desenvolvimento e avanço tecnológicos, algumas práticas ou atividades humanas têm concentrado os radionuclídeos naturais, provocando um incremento de dose em certos grupos da população. Essa situação tem despertado a atenção da comunidade científica e estudos detalhados têm sido realizados sobre a influência dessas atividades na exposição da população (Villaverde, 2008).

Dentre os produtos originários de matérias primas naturais, sobre os quais houve intervenção humana, destaca-se o fosfogesso, subproduto da indústria de fertilizantes fosfatados obtido das matérias primas apatita e fosforita na produção de ácido fosfórico por via úmida. Também conhecido como gesso industrial ou gesso químico, o fosfogesso é um resíduo formado principalmente por sulfato de cálcio hidratado ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) que contém níveis elevados de impurezas e alguns radionuclídeos das séries naturais do urânio e do tório, dependendo principalmente da origem da rocha fosfática usada como matéria prima (Mazzili et al, 2000; Santos, 2002).

O processo de produção do ácido fosfórico consiste no ataque da rocha fosfática beneficiada com ácido sulfúrico concentrado e água, gerando ácido fosfórico (H_3PO_4) na fase líquida e sulfato de cálcio hidratado ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$), denominado fosfogesso, na fase sólida (Saueia, 2006), conforme demonstrado na reação:



Em todo o mundo a maior parte das indústrias utiliza o processo por via úmida na produção do ácido fosfórico (Rutherford, 1994), especialmente nos casos em que são aceitos níveis de impurezas menos restritivos que os exigidos pelas indústrias farmacêuticas e de alimentos. Outro fator que contribui para a escolha do processo por via úmida é o consumo de energia envolvido, que chega a ser cinco vezes menor que o por via seca (Santos, 2002).

Por economia e facilidade de adaptação do processo industrial aos diferentes teores de P_2O_5 presentes na rocha fosfática, as indústrias nacionais acabam gerando o fosfogesso (sulfato de cálcio) na forma dihidratada. Esse processo de produção é largamente utilizado em todo o mundo e atualmente o mais empregado no Brasil, pois apresenta um custo relativamente baixo, porém gera o fosfogesso com maior teor de impurezas.

Os radionuclídeos das séries do ^{238}U e ^{232}Th normalmente encontram-se em equilíbrio na rocha fosfática, durante a reação do ácido sulfúrico com a rocha esse equilíbrio é quebrado e os radionuclídeos naturais presentes na rocha são separados de acordo com sua solubilidade e demais características químicas. O urânio e o tório são incorporados ao ácido fosfórico, enquanto os isótopos de ^{226}Ra , ^{210}Pb e ^{210}Po permanecem no fosfogesso (Silva et al, 2001; Saueia et al, 2005). Dentre os radionuclídeos presentes no fosfogesso, destaca-se o ^{226}Ra , como um dos mais importantes em termos de proteção radiológica, tanto pela exposição externa causada pela radiação gama, quanto pela exposição interna do sistema respiratório, provocada pela inalação de seu descendente direto, o ^{222}Rn .

Em 2008, aproximadamente 84% da produção mundial de rocha fosfática estava concentrada em sete países, destacando-se a China, os Estados Unidos, o Marrocos, a Rússia, a Tunísia, o Brasil e a Jordânia. Os cinco primeiros países foram responsáveis por 76,5% do total de 167 milhões de toneladas de rocha fosfática produzidas no mundo. Em 2010, a produção mundial foi de 176 milhões de toneladas e a China foi responsável por 37% dessa produção, os Estados Unidos e o Marrocos e Saara Ocidental foram os 2º e 3º colocados com 14,8% de participação cada. O Brasil ocupou a sexta posição na produção de concentrado de rocha fosfática, com 3,5 % do total mundial (DNPM, 2011).

No Brasil, os estados de Minas Gerais, Goiás, São Paulo e Bahia têm se destacado na extração de rocha fosfática. Em 2010, as empresas Vale Fertilizantes, com 72 % da produção nacional, seguida pela Anglo American/Copebrás, com 21%, e pela Galvani, com 7% foram as principais responsáveis pela produção do concentrado de rocha fosfática com teor médio de 35% de P_2O_5 , produto utilizado na fabricação do ácido fosfórico. Segundo a Associação Nacional para Difusão de Adubos (ANDA), o ácido fosfórico teve uma alta na produção nacional de 17,3% em relação a 2009 e as entregas de fertilizantes em 2010 foram 9,4% maiores que em 2009 (DNPM, 2011).

A produção brasileira do fosfogesso gerado como resíduo da produção de ácido fosfórico chega a 5,5 milhões de toneladas por ano e as principais indústrias geradoras estão localizadas em Cubatão e Cajati, no estado de São Paulo e em Uberaba, estado de Minas Gerais (Mazzilli et al., 2000).

A maior parte do fosfogesso produzido mundialmente é armazenada em pilhas ao ar livre e estudos mostram que apenas 14% são reprocessados (Rutherford et al, 1994; Lysandrou et al, 2007).

A crescente produção de fosfogesso por parte das indústrias de fertilizantes no Brasil e o acúmulo constante e sem um destino apropriado vem se tornando um problema cada vez maior. Isso tem despertado o interesse da comunidade científica na busca de soluções eficientes e economicamente viáveis para o aproveitamento desse material, evidenciando a necessidade de estudos sobre a viabilização do reaproveitamento do fosfogesso. Essa prática tem, numa primeira avaliação, a vantagem de minimizar os problemas ambientais e econômicos decorrentes da disposição desse resíduo no meio ambiente.

Um dos obstáculos à utilização do fosfogesso é o desconhecimento do impacto radiológico associado ao seu uso, uma vez que a legislação aplicada a sua utilização é bastante restritiva.

No Brasil, o fosfogesso é considerado um passivo ambiental pela falta de normas específicas que regulamentem o seu uso. Sua utilização se concentra nas indústrias de cimento e papel e na agricultura (Damasceno e Lima, 1994; Saueia, 1998).

Recentemente foi publicada a resolução da CNEN N° 113 (2011) que dispõe sobre o nível de isenção para o uso do fosfogesso na agricultura ou na indústria cimenteira. Essa resolução estabelece que o nível de isenção de controle regulatório para o uso do fosfogesso na agricultura ou na indústria cimenteira é de 1000 Bq kg⁻¹ para os radionuclídeos ²²⁶Ra ou ²²⁸Ra.

Devido às semelhanças entre as propriedades físicas e químicas entre gesso e o fosfogesso, este pode vir a substituí-lo na fabricação de placas para forros, painéis, divisórias, tijolos pré-moldados, pisos e revestimentos. Em diversos países como o Japão,

devido à escassez da matéria-prima gipsita, o fosfogesso substitui amplamente o gesso nas construções (Canut, 2006).

O setor da construção civil é reconhecidamente um dos responsáveis indiretos pelo impacto ambiental, principalmente por conta da grande quantidade de recursos naturais explorados e que são transformados e beneficiados como material de construção, como é o caso das reservas naturais de gesso. Sendo assim, são evidentes as vantagens de substituir este material pelo fosfogesso na indústria da construção civil, tanto como material estrutural, por exemplo, placas pré-fabricadas e tijolos a base de fosfogesso, quanto como material de acabamento ou de revestimento interno na construção de casas populares em grande escala. Essa prática poderia baratear sensivelmente o custo da construção, devido à grande disponibilidade do fosfogesso, o que beneficiaria grande parte da população.

O uso de fosfogesso em base e sub-base de pavimentos urbanos e rodoviários já é realidade nos Estados Unidos, onde há trechos de rodovias construídos com fosfogesso. Um exemplo do sucesso alcançado pelo uso do fosfogesso está localizado na cidade de La Porte, no estado do Texas. Testes e monitoramentos realizados ao longo de cinco anos após a construção de um trecho da malha viária, com uma proporção de 90% de fosfogesso e 10% de cimento mostraram que o pavimento sob tráfego intenso ainda apresenta boa capacidade de suporte (Chang e Mantell, 1990).

O impacto ambiental do fosfogesso está diretamente associado ao modo de descarte e este pode se dar de duas formas, em pilhas em áreas próximas às indústrias produtoras ou por meio de bombeamento para lagos (Villaverde, 2008).

A disposição em áreas próximas às indústrias é a forma mais comum de descarte do fosfogesso e é frequentemente adotada em quase todo o mundo. Nesta situação existem dois modos, “a úmido” ou “a seco”.

A disposição final realizada “a úmido” é a mais comum, onde o fosfogesso é descartado juntamente com a água residual da unidade industrial, na forma de polpa, por meio de bombeamento para lagoas de sedimentação, onde ele é decantado (FIG. 1.3) e depois de seco é acumulado em pilhas ao ar livre (FIG. 1.4 A e FIG 1.4 B) em áreas especialmente destinadas a essa finalidade (Villaverde, 2008). As principais vias de contaminação ambiental resultantes deste armazenamento são a contaminação atmosférica por fluoretos e outros elementos tóxicos, a poluição de águas subterrâneas por acidez,

elementos traços e radionuclídeos, a exalação de radônio, a inalação de poeira radioativa e a exposição direta à radiação gama.

Nas figuras 1.3 e 1.4 (A) e (B) são apresentadas as forma de estocagem de fosfogesso utilizadas pela empresas de fertilizantes brasileiras.



FIGURA 1.3 – Modo de disposição “a úmido” do fosfogesso em Uberaba - MG.



(A)



(B)

FIGURA 1.4 – Pilhas de fosfogesso em Uberaba – MG (A) e em Cubatão – SP (B).

Além dos problemas ambientais decorrentes do armazenamento, existe o risco de contaminação interna e de exposição externa à radiação gama para os trabalhadores da área de produção de ácido fosfórico, pois esses funcionários estão em contato constante com a rocha fosfática e com o fosfogesso. Como a rocha encontra-se sob a forma de um pó finamente dividido, há o risco de inalação de poeira contendo radionuclídeos em todos os locais da área de produção onde o pó encontra-se espalhado. Além disso, os trabalhadores

estão expostos à radiação gama proveniente dos radionuclídeos presentes tanto na rocha fosfática, como no fosfogesso, principalmente nos locais onde estes materiais ficam estocados.

Assim, torna-se muito importante encontrar formas economicamente viáveis de aproveitamento desse resíduo, visando à diminuição dos riscos para os trabalhadores, bem como os benefícios sociais e econômicos advindos do uso deste material, especialmente na preservação do meio ambiente.

Ultimamente vem crescendo na construção civil o uso de rejeitos industriais de processamento de minérios, dentre eles o gesso químico, ou fosfogesso. Essa prática pode aumentar a exposição para certos grupos da população, pois este material concentra os radionuclídeos naturais em níveis significativos sob o ponto de vista de radioproteção.

Nos últimos anos, alguns grupos de pesquisa no Brasil vêm estudando a possibilidade do aproveitamento do fosfogesso na construção civil (Rabi e Silva, 2006; Villaverde, 2008; Canut et al. 2008; Costa et al., 2010; Máduar et al. 2011; Nisti e Campos, 2011). O presente trabalho vem contribuir com esses estudos e faz parte de uma pesquisa ampla, em andamento no Laboratório de Radiometria Ambiental da Gerência de Metrologia das Radiações do IPEN sobre as implicações radiológicas da utilização de fosfogesso na construção civil e na agricultura.

No primeiro estudo conduzido pelo grupo de pesquisa do Laboratório de Radiometria foi avaliada a viabilidade, em termos de proteção radiológica do uso de placas pré-fabricadas a base de fosfogesso na construção de residências (Villaverde, 2008; Máduar et. al. 2011). Uma habitação modelo foi construída, com teto e paredes compostos de placas pré-fabricadas à base de fosfogesso de diferentes procedências (Ultrafertil, Fosfertil e Bunge Fertilizantes), por pesquisadores do Instituto de Física da Universidade de São Paulo - Campus São Carlos e engenheiros da empresa Inovamat, Inovação em Materiais Ltda. Foram avaliadas as doses decorrentes da exposição externa à radiação gama e da inalação de radônio para moradores que viessem a ocupar o local. Os resultados mostraram que é possível a utilização segura do material, mas indicaram a necessidade de estudos mais aprofundados sobre os níveis de radônio no interior da residência, principalmente para o fosfogesso procedente da Ultrafertil.

Atualmente, além das placas têm sido fabricados tijolos de fosfogesso. Neste trabalho foi estudada a exalação de radônio pelas placas pré-fabricadas e tijolos a base de fosfogesso utilizados na construção de residências. Foi também avaliada a contribuição do revestimento nas paredes (diferentes tipos de pintura) para a taxa de exalação das placas e tijolos. Para tal fim, foram determinadas as taxas de exalação de placas e tijolos de fosfogesso de diferentes procedências, com e sem revestimento. A partir dos resultados obtidos foi determinada a dose efetiva para um indivíduo habitando uma residência construída com placas e tijolos de fosfogesso.

Estes resultados complementam os obtidos inicialmente contribuindo com informações importantes para uma análise detalhada sobre a aplicação de fosfogesso na construção civil.

1.2 Objetivos do trabalho

O objetivo principal do presente trabalho é determinar a taxa de exalação de radônio pelo fosfogesso quando utilizado como material de construção na forma de placas pré-fabricadas e tijolos. As placas e os tijolos foram fabricados com fosfogesso procedente das indústrias Bunge Fertilizantes, localizada em Cajati, estado de São Paulo e Valefert, com unidades, denominadas Ultrafertil e Fosfertil, localizadas em Cubatão, estado de São Paulo, e em Uberaba, estado de Minas Gerais, respectivamente. A partir desses resultados foi avaliada a dose de radiação recebida por um indivíduo habitando uma residência hipotética construída com essas placas e tijolos de fosfogesso de diferentes procedências.

Como objetivos específicos do trabalho têm-se:

- A determinação da taxa de exalação de radônio das placas e tijolos de fosfogesso, por meio da técnica da câmara de acumulação, utilizando-se detectores de traços nucleares do estado sólido;
- O cálculo da taxa de exalação de radônio por meio do modelo matemático proposto pela *United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation* – UNSCEAR, a partir da concentração de ^{226}Ra presente nas placas e tijolos de fosfogesso;
- A avaliação da contribuição do revestimento na taxa de exalação de radônio das placas e tijolos de fosfogesso;

- A estimativa da dose efetiva por exposição ao radônio no interior de uma residência, a partir do conceito de quarto padrão;
- A contribuição para um banco de dados sobre o uso de fosfogesso como um material de construção;
- O fornecimento de dados técnico-científicos aos órgãos reguladores, contribuindo para a possível normatização técnica sobre o uso de fosfogesso como material de construção.

2. METODOLOGIA

2.1 Considerações sobre o radônio e seus mecanismos de transporte

O radônio é um gás nobre naturalmente radiativo e está presente em todos os ambientes, especialmente naqueles em que a taxa de troca de ar é menor. Deste modo, é uma fonte de exposição significativa tanto em residências, como em locais de trabalho (ICRP-65).

O ^{222}Rn é formado como um produto da série radioativa do ^{238}U a partir do decaimento alfa do ^{226}Ra e possui a capacidade de se difundir através do solo e dos materiais de construção, podendo exalar para o interior dos ambientes. Além do solo e dos materiais de construção (Campos e Pecequilo, 2003; de Jong et al., 2006), as águas minerais e/ou termais são fontes importantes de ^{222}Rn (Jacomino et al., 1996), pois o gás que exala das águas é inalado pelos indivíduos juntamente com aquele que se difunde do solo e das paredes da construção.

O radônio apresenta vários isótopos radioativos emissores de radiação alfa, beta e gama, os dois mais significativos são ^{222}Rn , o produto de decaimento do ^{226}Ra , decorrente da série de radionuclídeos naturais do ^{238}U e o ^{220}Rn , o produto de decaimento imediato do ^{224}Ra , decorrente da série do tório.

A inalação de radônio é conhecida como um importante risco ao sistema respiratório, principalmente pela incorporação dos seus descendentes de meia-vida curta (^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi e ^{214}Po), que sozinhos ou agregados a outras partículas podem se depositar nos pulmões (Porstendorfer, 1993). Na TAB. 2.1 são apresentados as propriedades radioativas do ^{222}Rn e dos seus produtos de decaimento.

TABELA 2.1 – Propriedades radioativas do ^{222}Rn e de seus produtos de decaimento

Radionuclídeo	Radiação	Meia-vida	Energia alfa (MeV)
^{222}Rn	α	3,82 dias	5,49
^{218}Po	α	3,05 min.	6,00
^{214}Pb	β, γ	26,8 min.	
^{214}Bi	β	19,9 min.	
^{214}Po	α	164 μs	7,69
^{210}Pb	β	22,3 anos	
^{210}Bi	β	5,01 dias	
^{210}Po	α	138,4 dias	5,30

Geralmente, o ^{222}Rn é o foco de atenção em termos da exposição dos indivíduos ao radônio, pois dentre todos os isótopos, ele é o que apresenta maior meia vida física (3,8 dias) e possui a capacidade de se difundir através do solo e de materiais de construção, exalando para o interior das residências, enquanto os outros isótopos (^{220}Rn e ^{219}Rn) apresentam meia-vida relativamente curta de 55,6 s e 3,96 s, respectivamente e têm grande dificuldade em se difundir pelos materiais. Exceto em locais onde os níveis de ^{232}Th são significativos, a monitoração de ^{220}Rn é geralmente desprezada.

O ^{222}Rn é um gás inerte e pode se movimentar livremente através dos poros dos materiais, contudo somente uma fração do gás produzido alcança a superfície dos materiais e exala para o ar. Níveis elevados de radônio ocorrem, geralmente, em ambientes fechados ou com baixa ventilação tais como: porões de residências, túneis, minas subterrâneas, cavernas naturais, salas de tratamento médico com águas minerais e termais, entre outros. Portanto, nestes locais, pode existir risco de altas taxas de exposição e um controle periódico dos níveis de concentração de radônio é recomendado.

O solo e os materiais de construção (tijolos, areia, concreto, cerâmicas, granito, gesso, entre outros) costumam ser a principal fonte de radônio nas residências. A rota de entrada do radônio proveniente do solo ocorre através de fissuras existentes nos pisos e paredes das residências e essa contribuição pode ser muito importante, principalmente, se a construção estiver em uma área de ocorrência de urânio (Neman, 2004).

Por ser um elemento da família dos gases nobres, o radônio dificilmente interage com outros elementos sob condições normais de temperatura e pressão, e por sua natureza gasosa, sua mobilidade é muito maior do que o urânio e o rádio que estão fixos no material sólido das rochas e solo. A velocidade de movimento do radônio através do solo é controlada pela quantidade de água presente nos poros (contidos no solo), a porcentagem de espaços vazios do solo (porosidade) e a habilidade do solo de transmitir água e ar (permeabilidade do solo) (UNSCEAR, 2000).

É importante fazer uma distinção entre a *emanação* do ^{222}Rn , que é um processo que controla o movimento dos átomos de radônio do interior das partículas sólidas para o espaço poroso que o contém e a *exalação* do ^{222}Rn , que é o processo de transferência dos átomos de radônio do espaço poroso para a atmosfera (FIG 2.1).

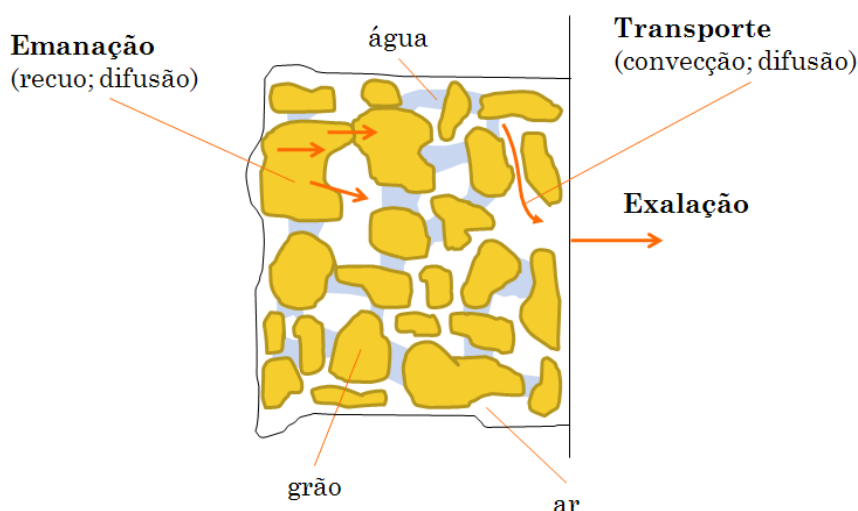


FIGURA 2.1: Mecanismo de transporte de ^{222}Rn (Souza, 2009)

O ^{226}Ra presente nos materiais, ao decair para o gás ^{222}Rn , fornece a este uma energia cinética de 86 keV provocando a movimentação desse gás através dos meios existentes nos materiais: grãos, ar e água (Souza, 2009).

A origem do radônio em um grão e a direção do reco, por exemplo, determina se o átomo recém formado pode escapar para os poros (*emanação*: pontos A, B, E, e F na FIG. 2.2) ou ficar no grão (não há *emanação*: pontos C, D e G na FIG. 2.2). O alcance do reco

do átomo de radônio depende da densidade e da composição do material. Somente átomos de rádio dentro da faixa de recuo da superfície do grão podem produzir átomos de radônio que têm alguma possibilidade de ser emanados (Sakoda et al., 2011).

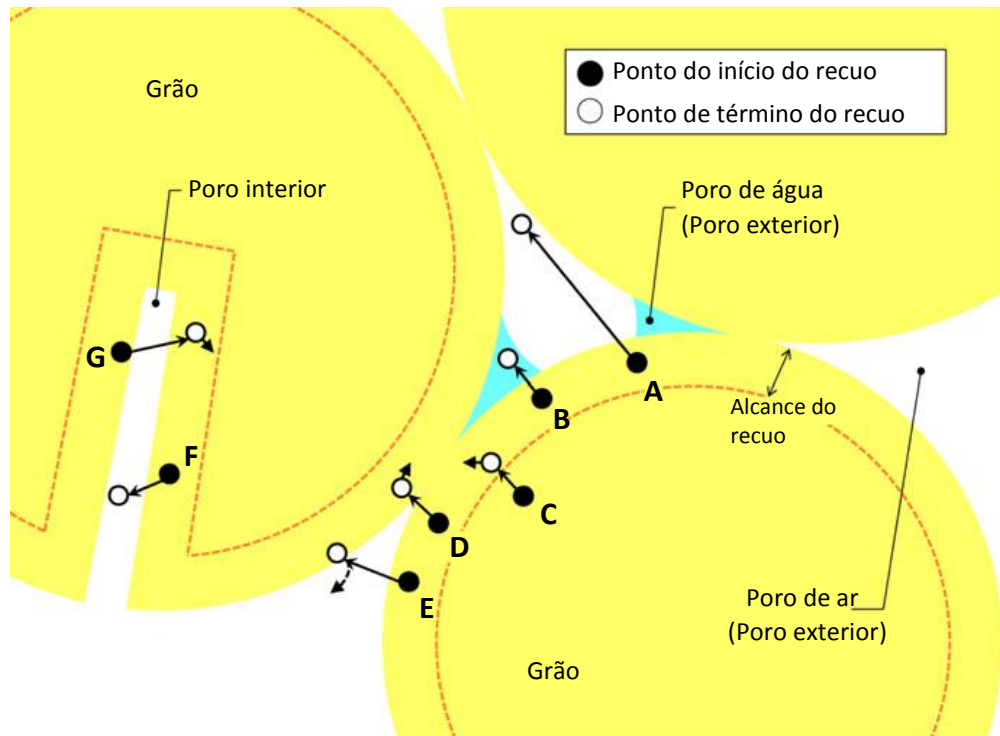


FIGURA 2.2 – Esquema do processo de emanção de radônio (Sakoda et al., 2011)

Quando o rádio decai no interior de uma substância mineral, os átomos do radônio devem primeiro emanar dos grãos para os poros cheios de ar. A fração de radônio formada que entra pelos poros é comumente conhecido como fração de emanção, poder de emanção ou coeficiente de emanção (Sabol e Weng, 1995).

Diversos fatores são conhecidos por afetar a emanção de radônio a partir de materiais, tais como: a distribuição do rádio nos grãos, a granulometria e a forma, o teor de umidade, a temperatura, a pressão atmosférica, os tamanhos dos poros externos e internos, os danos causados pela radiação e a densidade sólida (estrutura cristalina e elementos). Esses fatores, basicamente, controlam o recuo e o comprimento de difusão de ^{222}Rn nos grãos e seu recuo parando nos poros (Sakoda et al., 2011).

Pode-se observar pela FIG 2.3 que o recuo do átomo de radônio no ar é maior que na água. O centro do círculo representa a localização dos átomos de rádio que decaíram para o radônio.

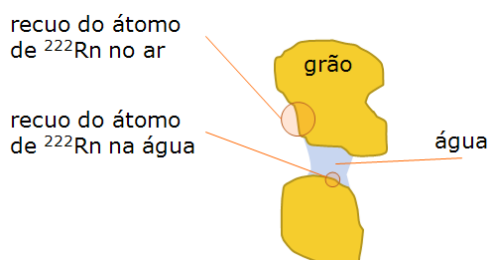


FIGURA 2.3: Recuo do átomo de radônio no ar e na água (Souza, 2009)

Na exalação, o transporte de ^{222}Rn presente nos poros do material até o meio ambiente ocorre principalmente devido ao processo de difusão (Souza, 2009). Um dos parâmetros mais importantes que determina a intensidade de exalação de ^{222}Rn é a quantidade de ^{226}Ra existente no material. Os outros parâmetros são o tamanho dos grãos, a umidade e a porosidade (Jasaitis et al, 2007; Souza, 2009).

2.2 Determinação da taxa de exalação de radônio pela técnica da câmara de acumulação

Existem vários métodos para medir a taxa de exalação de radônio em materiais de construção, utilizando célula de cintilação, câmaras de ionização e detectores de traços nucleares do estado sólido, entre outros. Neste trabalho foi utilizada a técnica da câmara de acumulação com o uso de detectores de traços nucleares de estado sólido inseridos em uma câmara de difusão (Amrani e Cherouati, 1999, Sharma e Virk, 2001, Ujic et al., 2008, Faheem e Mtiullah, 2008). A função da câmara de difusão é permitir que apenas o gás (^{222}Rn) atinja o detector de traços (Bartlett, 1988).

Foram determinadas as taxas de exalação de radônio das placas e tijolos de fosfogesso de todas as procedências, bem como do tijolo de gesso, para tanto os materiais foram inseridos na câmara de acumulação por um período de aproximadamente 30 dias.

Esta câmara consiste em um recipiente hermeticamente fechado que armazena o radônio exalado pelo material analisado e impede a difusão do gás acumulado para o meio externo, bem como a entrada do radônio externo para o interior da câmara. A partir do conhecimento da concentração de radônio determinada pelo detector de traços, do tempo de exposição, do volume do recipiente e da área superficial do material que exala o radônio determinou-se a taxa de exalação do ^{222}Rn por meio da equação 2.1 (Faaheem e Matiullah, 2008, Shafi-ur-Rehman et al., 2006):

$$Ex = \frac{C_{\text{Rn}} \cdot V \cdot \lambda}{A (1 - e^{-\lambda \cdot t})} \quad (2.1)$$

onde:

Ex – taxa de exalação de radônio ($\text{Bq m}^{-2} \text{h}$);

C_{Rn} – concentração de ^{222}Rn na câmara de acumulação (Bq m^{-3});

V – volume da câmara de acumulação (m^3);

A – área superficial da amostra (m^2);

λ – constante de decaimento do ^{222}Rn (h^{-1}).

Para a determinação da concentração de ^{222}Rn , os detectores de traços, após o período de exposição, foram revelados com uma solução de KOH (30% em massa) a 80°C durante 5,5 horas. Ao término do processo de revelação os detectores foram observados em um microscópio óptico ZEISS modelo Axiolab para luz transmitida com aumento de 5x, 10x e 50x ligado a uma câmara de vídeo marca Zeiss ICc-1 e acoplados a um microcomputador. A densidade de traços (traços cm^{-2}) na superfície do detector e o diâmetro dos traços são determinados por meio do “software” AXIOVISION da ZEISS (Axiovision, 2009). O equipamento possui uma mesa automatizada (FIG. 2.4) que movimenta o detector durante a leitura, fazendo uma varredura na superfície do mesmo para a determinação da densidade de traços.

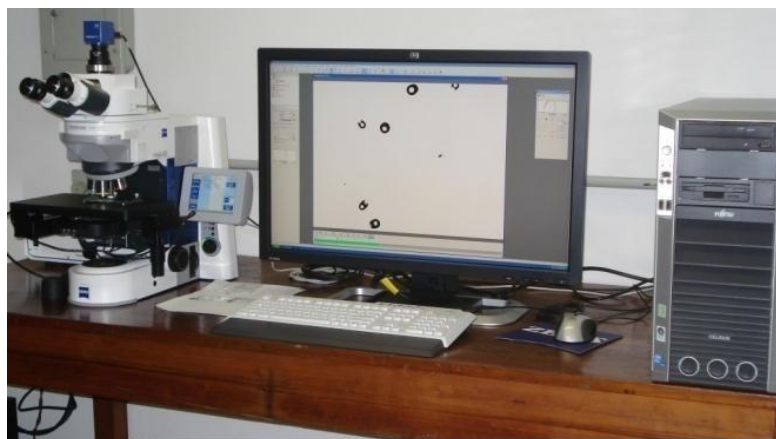


FIGURA 2.4: Sistema para medida da densidade de traços nos detectores sólidos de traços nucleares

A partir da densidade de traços na superfície do detector, do tempo de exposição do fator de calibração do detector de traços foi calculada a concentração de radônio no acumulador por meio da seguinte equação 2.2 (Mayya, 1998):

$$C_{Rn} = \frac{D}{k \cdot t_{ef}} \quad (2.2)$$

onde:

C_{Rn} – concentração de ^{222}Rn no ar (Bq m^{-3});

D – densidade de traços líquida, ou seja, descontada a densidade relativa à radiação de fundo no detector (traços cm^{-2});

k – fator de calibração (traços cm^{-2} por $\text{Bq m}^{-3} \text{ h}^{-1}$);

t_{ef} – tempo efetivo de exposição (h).

O fator de calibração que relaciona a densidade de traços na superfície do detector e concentração de radônio foi obtido expondo-se um detector de traços nucleares do estado sólido idêntico ao utilizado nas placas e tijolos de fosfogesso (CR-39) a uma fonte de calibração de radônio por meio do aparelho RN-150 da *Pylon Electronics Incorporation*. Este aparelho contém uma fonte sólida calibrada de ^{226}Ra de 3kBq de atividade e opera com uma bomba de vácuo, liberando uma quantidade conhecida de ^{222}Rn para o recipiente

que contém o detector a ser calibrado (Caccuri, 2007). O fator de calibração obtido foi de $2,14 \pm 0,17$ traços·cm⁻² por kBq·m⁻³·h⁻¹.

O detector de traços posicionado na câmara de acumulação é exposto a concentrações variáveis de radônio ao longo do tempo, começando de zero até a concentração de equilíbrio (²²⁶Ra-²²²Rn), assim é necessário determinar o tempo efetivo de exposição utilizado no cálculo da concentração de radônio no interior do acumulador. O tempo efetivo de exposição foi determinado por meio da equação 2.3 (Faaheem e Matiullah, 2008, Shafi-ur-Rehman et al., 2006, Zubair et al. 2011):

$$t_{ef} = t - \frac{1}{\lambda} (1 - e^{-\lambda \cdot t}) \quad (2.3)$$

onde:

t – tempo real de exposição (h);

λ – constante de decaimento do ²²²Rn (h⁻¹).

2.3 Determinação da taxa de exalação de radônio nas placas e tijolos de fosfocesso por meio do modelo proposto pela UNSCEAR

A título de comparação também foi determinada a taxa de exalação teórica a partir do modelo adotado pela UNSCEAR (2000) para materiais de construção. Nesse modelo a taxa de exalação é calculada a partir da concentração de ²²⁶Ra presente no material, entre outros fatores, conforme apresentado na equação 2.4.

$$J_D = C_{Ra} \cdot \lambda_{Rn} \cdot f \cdot \rho_r \cdot L \cdot \tanh\left(\frac{d}{L}\right) \quad (2.4)$$

onde:

J_D – taxa de exalação de ²²²Rn (Bq m⁻² h⁻¹);

C_{Ra} – concentração do ²²⁶Ra na amostra (Bq kg⁻¹);

λ_{Rn} – constante de decaimento do ²²²Rn (h⁻¹);

f – coeficiente de emanação (adimensional);

ρ_r – densidade real da amostra (kg m^{-3});

d – meia espessura do material de construção (m);

L – comprimento de difusão no material (m).

O comprimento de difusão L foi calculado utilizando-se a equação $(D_e/\lambda_{Rn})^{1/2}$, onde D_e é o coeficiente efetivo de difusão ($\text{m}^2 \text{h}^{-1}$).

A fração de emanção esta relacionada com o tamanho dos grãos, já o coeficiente efetivo de difusão relaciona-se com a umidade presente na amostra. Neste trabalho utilizou-se o coeficiente de emanção determinado para pilhas de fosfogesso (Rabi e Mohamad, 2006) e o coeficiente efetivo de difusão em placas de gesso (Folkerts et. al. 1984). A concentração de ^{226}Ra foi obtida por espectrometria gama.

2.4 Espectrometria gama

A espectrometria gama é uma técnica não destrutiva, baseada na interação da radiação emitida pela amostra com um detector, o que possibilita a discriminação dos radionuclídeos emissores gama presentes nessa amostra. Por meio dessa técnica é possível fazer uma determinação qualitativa e quantitativa dos radioisótopos presentes na amostra. Uma grande vantagem da espectrometria gama é a possibilidade de se medir as amostras de forma direta, sem a necessidade de tratamento químico prévio (Villaverde, 2008).

Nas determinações por espectrometria gama, a auto-atenuação da radiação pela amostra nem sempre é um problema tão crítico, pois todos os raios gama são muito mais penetrantes do que as partículas alfa e beta, contudo, para os radionuclídeos que emitem radiações gama de baixa energia é necessário efetuar a correção para auto-atenuação na determinação da concentração do elemento radioativo em questão (Villaverde, 2008).

A técnica de espectrometria gama possibilita identificar os radionuclídeos contidos na amostra. Para tanto, necessita-se da calibração energia *versus* canal para determinar as energias dos fotopicos que aparecem no espectro. Por meio de *softwares* específicos é possível determinar as intensidades e energias dos picos, além de realizar as calibrações em energia (Paes, 2001; Gilson, 1998).

O detector utilizado deve ser sensível às energias dentro da faixa em que se deseja determinar. Para obterem-se áreas com a precisão desejada em um tempo razoável de contagem, devem ser escolhidas as transições gama de maior intensidade para os radionuclídeos que se deseja determinar.

Um sistema típico de espectrometria gama é formado por um detector de germânio hiperpuro, uma fonte de alta tensão, um pré-amplificador, um amplificador, um conversor analógico digital, um analisador multicanal e um registrador.

A partir do conhecimento da área do pico de transição de interesse, da radiação de fundo para a transição gama considerada, da massa da amostra, da eficiência do detector e do tempo de contagem, as concentrações dos radionuclídeos de interesse são obtidas por meio da equação 2.5.

$$C = \frac{\text{Área} - BG}{m \cdot t \cdot I_{\gamma} \cdot \varepsilon} \quad (2.5)$$

onde:

C – concentração do radionuclídeo de interesse (Bq kg^{-1});

Área – área do pico da transição gama considerada (cps);

BG – radiação de fundo para a transição gama considerada (cps);

m – massa da amostra (kg);

t – tempo de contagem (s);

ε – eficiência do detector (cps dps^{-1});

I_{γ} – intensidade absoluta da transição gama considerada.

2.4.1 Fator de auto-atenuação

A espectrometria gama é uma técnica que pode apresentar resultados subestimados quando são analisados radionuclídeos que emitem radiação gama de baixa energia, como por exemplo, o ^{210}Pb ($E = 46,5 \text{ keV}$) e quando não é feita a correção para auto-atenuação. Neste caso os fótons de baixa energia e pequeno poder de penetração são fortemente atenuados pela amostra antes de atingirem o detector, acarretando na determinação de uma concentração menor do que a real (Villaverde, 2008).

Em 1983, Cutshall propôs o uso de um modelo da correção da auto-atenuação que consiste na determinação da quantidade de radiação atenuada pela amostra. A partir de uma adaptação desse modelo, colocou-se uma fonte de ^{210}Pb centralizada sobre a tampa do recipiente contendo a amostra e mediu-se a fonte por um determinado tempo (15000 s), posteriormente executou-se o mesmo procedimento para um recipiente da mesma geometria que a amostra, mas contendo água (Cutshall et al. 1983) .

O fator de auto-atenuação foi então calculado por meio da equação 2.6 adaptado do modelo de Cutshall e colaboradores (Cutshall et al. 1983):

$$f = \frac{\ln\left(\frac{A_{amostra}}{A_{agua}}\right)}{\left(\frac{A_{amostra}}{A_{agua}} - 1\right)} \quad (2.6)$$

onde:

$A_{amostra}$ – área do pico de transição de 46,5 keV relativa à amostra

$A_{água}$ – área do pico da transição de 46,5 keV relativa à amostra de água.

Na equação apresentada, $A_{amostra}$ e $A_{água}$ representam as intensidades atenuadas através da amostra e da água, respectivamente. A intensidade atenuada é definida como a diferença entre a medida da amostra com e sem a fonte de ^{210}Pb centralizada sobre a tampa do recipiente. O mesmo se aplica à intensidade atenuada em relação à água (Villaverde, 2008).

2.4.2 Densidade Real e Porosidade total

Sabe-se que a exalação de radônio por um material é dependente, entre outros fatores, da porosidade desse material (Sahoo et al., 2011; López et. al., 2011; Girault et. al., 2011), assim, visando à interpretação dos resultados obtidos foram determinadas a densidade real e a porosidade total das amostras de placas e tijolos de fosfogesso.

Para a determinação da densidade real e porosidade total das placas e tijolos de fosfogesso foi adotada a metodologia do balão volumétrico para solo descrita por Gubiani

et al. (2006) e EMBRAPA (1997). Optou-se por essa metodologia, pois não havia na literatura uma específica para o fosfogesso.

A densidade real (ρ_r) ou massa específica real (S), também conhecida como densidade de partículas, é a relação entre a massa de determinada amostra e o volume ocupado pelas partículas do material. Considera-se o volume ocupado efetivamente pelas partículas, desconsiderando-se o espaço poroso.

A medida da densidade real das placas e tijolos de fosfogesso foi feita por meio das seguintes etapas: preparação das amostras, incluindo moagem e secagem em estufa a 105° C por 24 horas, medição da massa do balão volumétrico, transferência de 5g peneiradas na granulométrica de 2 mm, medição da massa do balão mais o fosfogesso, adição de álcool etílico (99,7% GC) com a passagem do álcool por uma bureta até a metade do volume do balão contendo a amostra, agitação manual até eliminação do ar existente entre as partículas da amostra, preenchimento com álcool do volume do balão até o traço de aferição e leitura do volume de álcool gasto.

Existem diferentes métodos para a determinação da porosidade total, alguns dos quais, inclusive, fornecendo a distribuição do tamanho dos poros. Um dos métodos mais simples é o que se baseia na relação entre a densidade real (ρ_r) e a densidade aparente (ρ_a), nesse caso a porosidade total em porcentagem pode ser obtida a partir da equação 2.7 (Andrade et al., 2008; Modro et al. 2009; Gouveia et al. 2004):

$$P = 100 \cdot \frac{(\rho_r - \rho_a)}{\rho_r} \quad (2.7)$$

A porosidade total é um indicador da capacidade de absorção máxima do agregado, que na prática, pode nunca vir ocorrer (Gouveia et al. 2004).

2.5 Avaliação dosimétrica

O risco radiológico associado ao radônio deve-se, sobretudo, aos seus descendentes sólidos, tais como: polônio, bismuto e chumbo, que são também emissores alfa. Quando o

radônio é inalado, esses elementos são depositados no aparelho respiratório irradiando assim os tecidos dos pulmões. Devido ao fato das meias-vidas destes isótopos serem pequenas (não excedem alguns minutos) produz-se uma irradiação contínua nos pulmões em curto intervalo de tempo. Os danos provocados nos tecidos pulmonares pelas radiações ionizantes emitidas por estes radionuclídeos podem induzir o desenvolvimento de tumores.

Para a determinação da dose efetiva em determinado órgão é necessário conhecer os mecanismos de incorporação do radionuclídeo, seu metabolismo e comportamento no corpo humano, para tanto, a estimativa da dose baseia-se no homem-referência, cujas características fisiológicas e anatômicas foram definidas pela Comissão Internacional de Proteção Radiológica (ICRP-23, 1975).

No caso de um radionuclídeo gasoso como o radônio, a inalação é a principal via de incorporação. Os compostos radiativos sólidos inalados na forma de aerossóis podem seguir uma série de caminhos dentro do corpo, dependendo das suas propriedades físico-químicas. Uma parte do que é inalado é depositado no trato respiratório em seguida é transportado para outros órgãos e tecidos e o restante é exalado (ICRP-66, 1994).

A dose de radiação recebida pelos tecidos do trato respiratório devido à inalação do radônio, e de seus filhos não pode ser diretamente medida, a sua determinação deve ser feita por meio de modelos dosimétricos que avaliam a quantidade de material inalado e a deposição, retenção e eliminação deste material do trato respiratório (Caccuri, 2007).

A metodologia adotada para o cálculo da dose devido à inalação de radônio pode seguir a abordagem da dosimetria física (a partir da medida da dose absorvida nas células do epitélio bronquial) ou da avaliação epidemiológica (a partir da avaliação do dano sofrido pelos mineiros de ferro, carvão e urânio). A diferença no resultado da dose obtida adotando-se a abordagem dosimétrica ou a epidemiológica é de um fator de 2,5, o que é considerado satisfatório em termos de cálculo de dose, devido à complexidade das variáveis envolvidas (NORNC, 2000). Neste trabalho optou-se pela abordagem da avaliação epidemiológica a partir dos procedimentos descritos por Shwikani e Raja (2009).

A dose de radiação para um indivíduo habitando uma residência construída com materiais a base de fosfogesso foi avaliada adotando-se o conceito de quarto padrão, a partir do conhecimento da taxa de exalação do material (Shwikani e Raja, 2009).

Primeiramente calcula-se a taxa de entrada de radônio no ambiente por meio da equação 2.8.

$$G = E_x \cdot A \quad (2.8)$$

onde:

G - a taxa de entrada de radônio no ambiente (Bq h^{-1})

E_x - taxa de exalação de radônio ($\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$)

A - área de exalação (m^2).

A seguir estima-se a concentração de radônio em um quarto padrão da residência por meio da equação (2.9).

$$C = \frac{G}{(V(n+\lambda))} \quad (2.9)$$

onde:

C - concentração de radônio no quarto padrão (Bq m^{-3})

V - volume do quarto padrão (m^3)

n - taxa de ventilação de ar (h^{-1})

λ - constante de decaimento do radônio (h^{-1}).

Uma vez obtida a concentração de radônio no quarto padrão a dose pode ser calculada pela equação (2.10).

$$D = C \cdot F_C \quad (2.10)$$

onde:

D - dose efetiva (mSv)

F_C - fator de conversão de dose entre a concentração e a dose anual.

O fator de conversão de dose utilizado considera um fator de equilíbrio entre o radônio e seus descendentes de 0,4 e um fator de ocupação de 7000 horas por ano.

Para o cálculo foi considerado um cômodo padrão, com as paredes e o teto construídos com os materiais a base de fosfogesso.

3. PARTE EXPERIMENTAL

3.1 Origem e fabricação das amostras

Neste trabalho foi estudada a taxa de exalação de ^{222}Rn em placas e tijolos produzidos com fosfogesso. A empresa *Inovamat*, Inovação em Materiais Ltda., com sede em São Carlos, estado de São Paulo forneceu três placas e quinze tijolos, sendo doze tijolos fabricados com fosfogesso procedente das indústrias Bunge Fertilizantes e Valefert (unidades Cubatão e Uberaba) e três tijolos fabricados com gesso comum. Cada uma das placas foi fabricada com uma das procedências de fosfogesso descritas acima. As amostras procedentes da empresa Valefert foram denominadas de Ultrafertil e Fosfertil, de acordo com o nome das unidades de produção em Cubatão e Uberaba, respectivamente. As amostras de tijolo de gesso foram denominadas de Mineral, de acordo com a denominação adotada pela Inovamat.

O método utilizado para fabricação das placas é denominado UCOS – Umedecimento Compactação e Secagem e consiste no umedecimento do pó de gesso por aspersão de água, seguido de homogeneização e compactação desse pó úmido. A aspersão é executada até atingir uma relação água/gesso em torno de 0,20. Ao ser submetido à compactação de 10 MPa de compressão, obtém-se um corpo endurecido que deve ser imediatamente removido da fôrma. Após a compactação, a reação de hidratação inicia e não é necessário que a pressão continue sendo aplicada (Kanno, 2009). Como a água líquida está restrita aos poros, a reação de hidratação só pode ocorrer a partir dos poros e por essa razão produz principalmente cristais de gesso grandes e perfeitos. O corpo de gesso produzido por este processo tem alta densidade (Correia, 2009). Na produção das placas de fosfogesso é utilizada uma fibra a base de celulose, o teor e o tipo da fibra podem alterar a densidade das placas (Kanno, 2009; Correia, 2009).

Os tijolos de fosfogesso também foram produzidos pela Inovamat, pelo processo UCOS, mas sem a presença da fibra de celulose no produto final. Os tijolos simplificam o processo de montagem (tipo LEGO) com coordenação modular e dispensa argamassa de qualquer espécie (Correia, 2009).

3.2 Determinação da taxa de exalação de radônio nas placas e tijolos de fosfogesso pela técnica da câmara de acumulação

A determinação das taxas de exalação de radônio nas placas e tijolos de fosfogesso foi feita pela técnica da câmara de acumulação com o uso de detectores sólidos de traços nucleares, do tipo CR-39, inseridos em uma câmara de difusão. Foram utilizados dois tipos de arranjos experimentais como câmara de acumulação; no primeiro arranjo, utilizado apenas para os tijolos, um recipiente de vidro hermeticamente fechado (dessecador comercial) foi utilizado como acumulador, a amostra e a câmara de difusão contendo o detector de traços foram colocados no interior do acumulador (FIG. 3.1) para a determinação da taxa de exalação.



FIGURA 3.1: Tijolo de fosfogesso e câmara de acumulação (arranjo 1).

No segundo arranjo, um tubo de PVC foi utilizado como câmara de acumulação (FIG. 3.2). O tubo foi posicionado sobre os tijolos e placas de fosfogesso, no seu interior, a uma distância mínima de 25 cm da superfície do material, para impedir que o ^{220}Rn fosse detectado, foi colocada uma câmara de difusão contendo um detector sólido de traços nucleares. O contato entre o tubo e o material de construção foi vedado com cola de silicone, impedindo o vazamento do radônio acumulado e a entrada do gás presente no meio externo.



FIGURA 3.2: Tijolos e placa de fosfogesso e câmara de acumulação (arranjo 2)

O primeiro arranjo experimental foi abandonado devido à impossibilidade de inserir a placa de fosfogesso inteira no acumulador e da dificuldade em posicionar a câmara de difusão distante do tijolo de fosfogesso. Devido à proximidade entre o material de construção e a câmara de difusão, tanto o ^{220}Rn quanto o ^{222}Rn conseguiam alcançar o detector de traços, produzindo traços na superfície do detector. As primeiras determinações da taxa de exalação foram feitas descontando-se os traços relativos ao torônio (^{220}Rn) no cálculo da taxa da exalação.

3.3 Determinação dos níveis de radiação gama

3.3.1 Determinação das concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{210}Pb e ^{40}K nos tijolos de fosfogesso

Para a determinação da concentração emissores gama, as amostras de tijolos de fosfogesso e gesso foram trituradas, moídas, peneiradas e secas em estufa a 110°C , em seguida foram transferidas para frascos de polietileno de 100 ml, pesadas em uma balança eletrônica, marca Gehaka, modelo BK6000, seladas e armazenadas por um período de 30 dias para que fosse atingido o equilíbrio radioativo entre os descendentes da série do ^{238}U , especificamente o ^{226}Ra e seus produtos de decaimento de meia-vida curta.

Após o período de armazenamento, as amostras foram medidas em um detector de germânio hiperpuro (HPGe), da Canberra, modelo 747, de 25 % de eficiência relativa e

resolução efetiva de 1.8 keV relativa de 1,33 MeV do ^{60}Co , com eletrônica associada e acoplada a um microcomputador. Os espectros gamas obtidos foram analisados com o programa *Interwinner* 6.0 da Ortec (Interwinner, 2004).

Para determinar áreas com a precisão desejada num tempo razoável de contagem foram escolhidas as transições gama de maior intensidade das séries do ^{238}U e ^{232}Th . O tempo de contagem das amostras variou conforme o nível de radioatividade apresentado pelas mesmas, para as amostras denominadas Bunge, Ultrafertil, e Fosfertil e Mineral foram escolhidos os tempos de contagem de 100.000, 80.000, 100.000 e 150.000 segundos, respectivamente.

Para a determinação do ^{226}Ra pressupôs-se que este estava em equilíbrio com os descendentes ^{214}Pb e ^{214}Bi . Sua concentração foi determinada pelas transições de 295,2 keV e 351,9 keV do ^{214}Pb e 609,3 keV e 1120,3 keV do ^{214}Bi . A transição de 186,2 keV emitida pelo ^{226}Ra não foi considerada devido à sua baixa intensidade (3,29%) e à interferência da transição gama de 185,7 keV emitida pelo ^{235}U .

Na série do tório, apenas o equilíbrio entre o ^{232}Th e o ^{228}Th é essencial para determinação da concentração de ^{232}Th e esta foi determinada a partir das concentrações de seus descendentes ^{228}Ac , ^{212}Pb e ^{212}Bi .

A determinação da concentração do ^{232}Th foi feita a partir das transições de 238,6 keV e 300,1 keV do ^{212}Pb , 911,1 keV e 968,9 keV do ^{228}Ac e 727,3 keV e 1620,7 keV correspondentes ao ^{212}Bi .

O ^{210}Pb e o ^{40}K foram determinados diretamente por meio das transições de 46,5 keV e 1460 keV, respectivamente.

Para a determinação da concentração de ^{210}Pb foi feita a correção para auto-atenuação, utilizando o método descrito por (Cutshall et al. 1983), devido à atenuação da radiação gama de baixa energia pela própria amostra.

A radiação de fundo foi determinada medindo-se um recipiente de uma mesma geometria que o utilizado para as amostras, mas contendo água deionizada.

A eficiência de contagem foi previamente determinada para a mesma geometria de frasco de polietileno de 100 mL numa faixa de energia de 40 a 3000 keV.

A incerteza associada às concentrações de cada uma das amostras foi calculada com o desvio padrão das concentrações das transições consideradas. As intensidades das transições gama foram obtidas na literatura.

3.4 Descrição da residência modelo construída com placas de fosfogesso

A residência para a qual foi estimada a dose efetiva a partir da taxa de exalação de radônio das placas de fosfogesso está localizada na Rua Alberto Lanzoni, 696 – Parque Santa Felícia Jardim, cidade de São Carlos, estado de São Paulo. A empresa Inovamat, Inovação em Materiais Ltda, foi encarregada da fabricação das placas pré-fabricadas e da construção da residência modelo.

A residência foi construída numa área de 58 m², e conta com cozinha, dois banheiros, dois dormitórios, sendo uma suíte e sala. O teto e as paredes são construídos com placas pré-fabricadas à base de fosfogesso e o piso é de concreto.

As paredes da residência são compostas por dois conjuntos de placas com dimensões de 40x40 cm, espessura de 17 mm, espaçadas por 11 cm, espessuras dos perfis de aço aos quais as placas são fixadas (FIG. 3.3). O teto também apresenta uma estrutura de aço, onde as placas são fixadas. O quarto padrão estudado foi construído com placas de um só tipo de fosfogesso e conta com uma janela e duas portas (Villaverde, 2008).



FIGURA 3.3: Detalhe da estrutura de sustentação das paredes (Correia, 2009).

4. RESULTADOS E DISCUSSÃO

4.1 Taxa de exalação de ^{222}Rn nas placas e tijolos de fosfogesso pela técnica da câmara de acumulação

Para cada procedência de fosfogesso foram realizadas seis determinações da taxa de exalação de ^{222}Rn nas placas de fosfogesso e oito para os tijolos de fosfogesso e gesso no período de março de 2010 a Setembro de 2011. Os resultados das placas de fosfogesso foram obtidos utilizando o arranjo experimental 2, com o uso do tubo de PVC como câmara de acumulação. Já os resultados dos tijolos de fosfogesso foram obtidos utilizando-se os dois arranjos.

Na figura 4.1 são apresentados os resultados da taxa de exalação nas placas de fosfogesso de diferentes procedências.

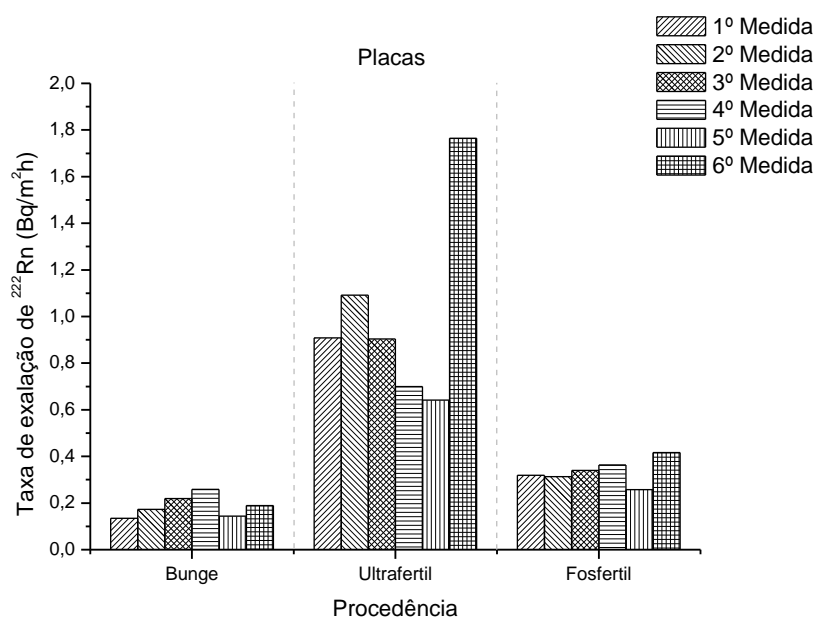


FIGURA 4.1: Taxa de exalação de ^{222}Rn nas placas de fosfogesso de diferentes procedências

Foram realizados seis intra-ensaios para as placas de fosfogesso utilizando o segundo arranjo experimental. Já para os tijolos foram realizados três inter-ensaios utilizando o primeiro arranjo experimental e cinco intra-ensaios utilizando o segundo arranjo experimental.

Os valores médios e respectivos desvios-padrão da taxa de exalação de ^{222}Rn nas placas de fosfogesso são apresentados na tabela 4.1.

TABELA 4.1: Taxa de exalação média de ^{222}Rn e desvio padrão nas placas de fosfogesso

Procedência	Taxa de exalação média de ^{222}Rn ($\text{Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$)
Bunge	$0,19 \pm 0,06$
Ultrafertil	$1,3 \pm 0,3$
Fosfertil	$0,41 \pm 0,07$

Na figura 4.2 são apresentados os resultados da taxa de exalação de ^{222}Rn nos tijolos de fosfogesso das diferentes procedências e no tijolo de gesso.

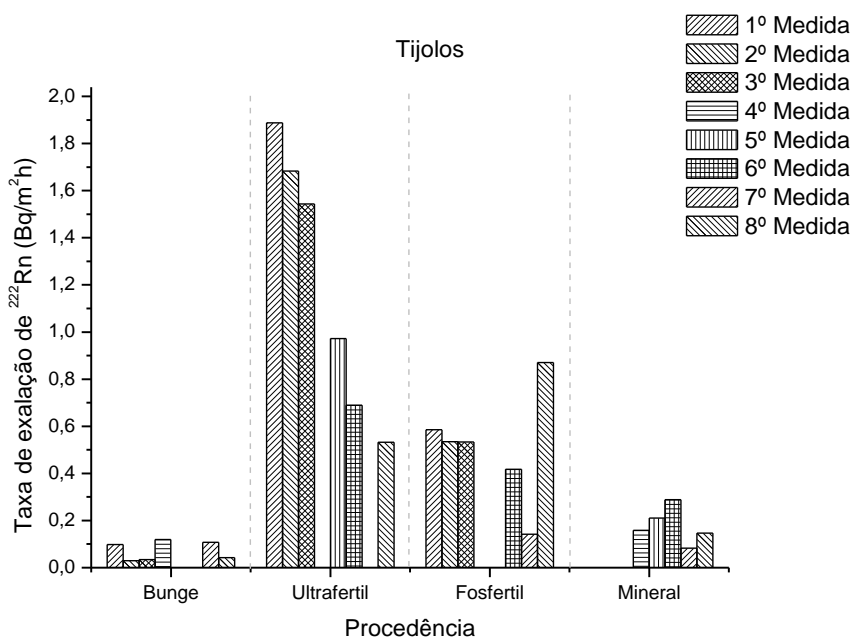


FIGURA 4.2: Taxa de exalação de ^{222}Rn nos tijolos de diferentes procedências

Os valores médios e respectivos desvio-padrão da taxa de exalação de ^{222}Rn nos tijolos de fosfogesso e gesso são apresentados na tabela 4.2.

TABELA 4.2 – Taxa de exalação média de ^{222}Rn e desvio padrão nos tijolos de fosfogesso e de gesso.

Procedência	Taxa de exalação média de ^{222}Rn ($\text{Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$)
Bunge	$0,11 \pm 0,01$
Ultrafertil	$1,2 \pm 0,6$
Fosfertil	$0,47 \pm 0,15$
Mineral	$0,18 \pm 0,08$

A taxa de exalação de radônio variou de $0,19 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ para a placa produzida com o fosfogesso da empresa Bunge Fertilizantes até $1,3 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ para a placa de fosfogesso proveniente da Ultrafertil. O mesmo comportamento pode ser observado para os tijolos de fosfogesso, nesse caso a variação foi de $0,11 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ a $1,2 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$. Como esperado, o tijolo e a placa produzidos com fosfogesso da Bunge Fertilizante foram os que apresentaram as menores taxas de exalação de radônio. No caso da placa, estudos anteriores mostravam que a concentração de ^{226}Ra nesse material é muito baixa e sabe-se que a taxa de exalação radônio varia com a quantidade de rádio presente no material. O tijolo de fosfogesso da Bunge Fertilizantes apresentou uma taxa de exalação de ^{222}Rn menor que o tijolo de gesso mineral, mesmo tendo uma concentração maior de ^{226}Ra , isso se deve provavelmente às diferentes porosidades, pois sabe-se que de um modo geral, quanto menor a porosidade, maior a exalação de radônio. No caso do tijolo da Bunge a porosidade é de 56,8 %, já para o de gesso mineral, o valor é de 40,9%. Além disso, o bloco da Bunge apresentou deformação na estrutura, o que pode indicar presença de água nos poros, o mesmo não ocorreu com o bloco mineral.

Na TABELA 4.3 são apresentados valores de taxa de exalação de ^{222}Rn obtidos na literatura e os resultados obtidos neste trabalho. Como pode ser observado, há uma boa concordância entre os valores obtidos neste trabalho e os encontrados por outros autores. Os resultados da taxa de exalação obtidos neste trabalho para os tijolos e placas de fosfogesso são compatíveis com os resultados obtidos para materiais de construção convencionais (Amrani e Cherouati, 1999; Sharma e Virk, 2001; Faheem e Matiullah,

2008; Kotrappa e Stieff, 2009), indicando a princípio que não haveria risco para um morador que habitasse uma residência construída com esses materiais.

TABELA 4.3 – Comparação dos valores encontrados com a literatura

Material de construção	Taxa de exalação de ^{222}Rn ($\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$)	Referências
Tijolo de gesso	0,08 – 0,29	Este trabalho
Tijolo de fosfogesso	0,03 – 1,89	Este trabalho
Gesso	0,02 – 0,05	AMRANI & CHEROUATI, 1999
Gesso	0,25	BAYKARA et al. 2011
Gesso	0,14	DE JONG et al. 2006
Gesso	0,05	KHAN et al.1992
Placas de gesso	0,2 – 18,4*	FOLKERTS ET AL. 1984
Placas de fosfogesso	2,2 - 4,8	LETTNER & STEINHÄUSLER, 1988
Placas de fosfogesso	0,14 – 1,30	Este trabalho
Granito	0,16 - 1,42	KOTRAPPA & STIEFF, 2009
Cimento	0,27 - 0,66	LETTNER & STEINHÄUSLER, 1988
Cimento	0,18 – 0,91	SHARAF et al. 1999
Tijolo cru	0,16	SHARMA & VIRK, 2001
Tijolo refratário	0,04	SHARMA & VIRK, 2001
Mármore	0,03	SHARMA & VIRK, 2001
Ardósia	0,04	SHARMA & VIRK, 2001
Concreto	4,32	DE JONG et al. 2006
Concreto	0,04	KHAN et al.1992
Areia	0,11	KHAN et al.1992
Tijolo cru	0,17	KHAN et al.1992
Tijolo refratário	0,09	KHAN et al.1992
Solo	2,2 - 2,8	REHMAN et al. 2006
Areia	3,9 - 16,7	REHMAN et al. 2006
Ardósia	0,36 - 1,92	CHEN et al. 2010

* Gesso químico

Como pode ser visto na tabela 4.3, os tijolos cru e refratário (Sharma & Virk, 2001), embora feitos da mesma argila, apresentam diferente exalação, $0,04 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ para o tijolo refratário e $0,16 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ para o tijolo cru, isso indicar que o processo de fabricação dos materiais de construção pode afetar a taxa de exalação de radônio.

4.2 Concentração de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{210}Pb e ^{40}K nas placas e tijolos de fosfogesso

As concentrações de ^{226}Ra e ^{232}Th foram obtidas supondo-se o equilíbrio radioativo entre os pais e seus descendentes. Para o ^{226}Ra considerou-se a concentração média de ^{214}Pb e ^{214}Bi . No caso do ^{232}Th , a concentração foi obtida a partir da média entre os resultados de ^{212}Pb , ^{212}Bi e ^{228}Ac . As TAB. 4.4 e 4.5 apresentam os resultados das concentrações médias e respectivos desvios-padrão dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{210}Pb (corrigido para auto-absorção) e ^{40}K para as placas e tijolos de fosfogesso, respectivamente. Cabe informar que os resultados nas placas de fosfogesso foram obtidos do trabalho de Villaverde (2008), já as concentrações nos tijolos foram obtidas experimentalmente.

TABELA 4.4 - Concentrações médias de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K e ^{210}Pb (Bq kg^{-1}) nas placas de fosfogesso

Procedência	Concentração (Bq kg^{-1})			
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{210}Pb
Bunge	$15,9 \pm 0,5$	$26,1 \pm 2,6$	< 39	$26,4 \pm 7,1$
Ultrafertil	392 ± 10	253 ± 3	< 81	852 ± 138
Fosfertil	294 ± 3	151 ± 6	< 56	295 ± 16

TABELA 4.5 - Concentrações médias de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K e ^{210}Pb (Bq kg^{-1}) nos tijolos de fosfogesso

Procedência	Concentração (Bq kg^{-1})			
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{210}Pb
Bunge	29,2 ± 6,1	37,3 ± 5,3	14,3 ± 6,6	32,3 ± 6,7
Ultrafertil	388 ± 4	273 ± 5	12,0 ± 0,8	426 ± 5
Fosfertil	307 ± 2	175 ± 4	8,3 ± 4,1	340 ± 5
Mineral	2,8 ± 0,3	1,7 ± 0,3	16,6 ± 4,2	3,4 ± 0,3

Pode-se observar que para os dois materiais de construção as concentrações dos radionuclídeos naturais nas amostras de procedentes da Ultrafertil são as mais altas, seguidas pelas amostras da Fosfertil e posteriormente as da Bunge Fertilizantes. No caso dos tijolos de fosfogesso, como esperado, as amostras de gesso comum são as que apresentam os menores níveis de radioatividade.

Segundo Villaverde (2008), o fosfogesso produzido pelas empresas Ultrafertil e Fosfertil é obtido a partir do resíduo do processamento de rochas sedimentares e o fosfogesso proveniente da Bunge deve ser proveniente do processamento de rochas ígneas, predominantes no Brasil, que sabidamente apresentam menores concentrações ^{238}U e conseqüentemente de ^{226}Ra . As concentrações dos radionuclídeos no fosfogesso podem variar dependendo da origem da rocha fosfática e do tipo de processo escolhido para a obtenção do ácido fosfórico.

4.3 Taxa de exalação de ^{222}Rn nas placas e tijolos de fosfogesso por meio do modelo proposto pela UNSCEAR

A taxa de exalação de ^{222}Rn nas placas e tijolos de fosfogesso foi também determinada por meio do modelo proposto no anexo B da UNSCEAR (UNSCEAR, 2000), apresentado na equação (3.4), a partir da concentração de ^{226}Ra nos materiais, entre outros fatores. Na tabela 4.6 são apresentados os resultados das taxas de exalação teóricas para as placas e tijolos de fosfogesso.

TABELA 4.6: Taxa de exalação ^{222}Rn ($\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$) teórica para as placas e tijolos de fosfogesso, utilizando-se o modelo proposto pela UNSCEAR

Procedência	J_D ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$)	
	<i>Tijolos</i>	<i>Placas</i>
Bunge	$0,31 \pm 0,06$	$0,11 \pm 0,01$
Ultrafertil	$4,10 \pm 0,05$	$2,45 \pm 0,01$
Fosfertil	$3,26 \pm 0,02$	$1,65 \pm 0,02$
Mineral	$0,029 \pm 0,003$	— ^a

a – não há placas de gesso disponíveis para análise

Observa-se que os resultados da taxa de exalação obtidos pelo modelo da UNSCEAR são maiores que os resultados obtidos experimentalmente, especialmente no caso dos tijolos de fosfogesso. Cabe ressaltar que alguns dos parâmetros utilizados no cálculo não correspondem aos materiais analisados e que os resultados mostram a importância da determinação experimental da taxa de exalação de ^{222}Rn , principalmente se esse for o parâmetro escolhido na tomada de decisão sobre a avaliação da exposição de indivíduos em uma residência.

Como dito anteriormente, um dos parâmetros determinantes na taxa de exalação de ^{222}Rn é a concentração de ^{226}Ra presente no material. Os outros parâmetros são o tamanho dos grãos, a umidade e a porosidade. Assim, foram verificadas as correlações entre a taxa de exalação de ^{222}Rn e a concentração de ^{226}Ra , bem como entre a exalação e a porosidade.

As figuras 4.3 e 4.4 apresentam a correlação entre as concentrações de ^{226}Ra e as taxas de exalação de radônio obtida experimentalmente pelo método da câmara de acumulação para os tijolos e as placas de fosfogesso, respectivamente.

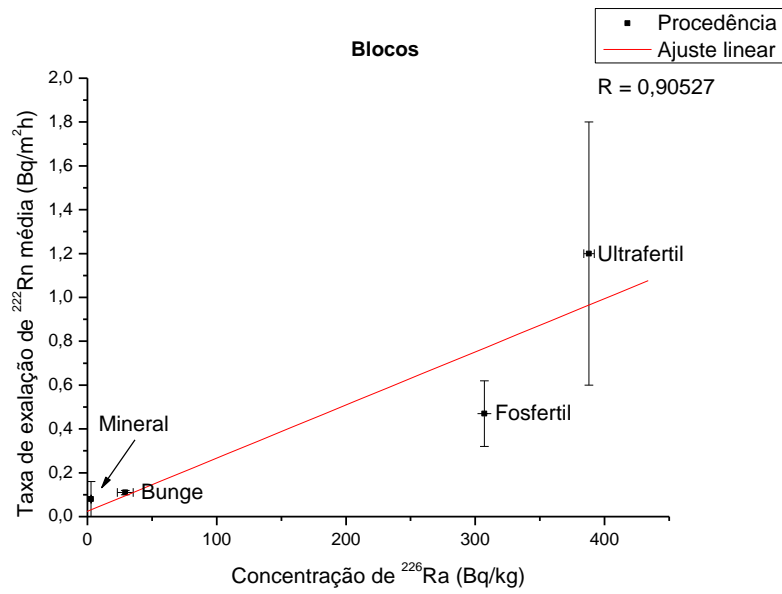


FIGURA 4.3: Correlação entre a taxa de exalação de ^{222}Rn experimental e a concentração de ^{226}Ra para os tijolos de fosfogesso de diferentes procedências

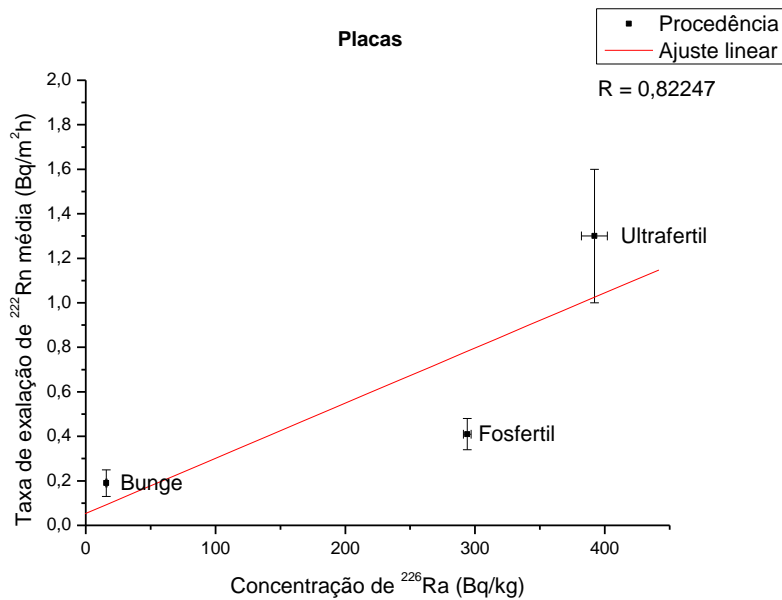


FIGURA 4.4: Correlação entre a taxa de exalação de ^{222}Rn experimental e concentração de ^{226}Ra para as placas de fosfogesso

A porosidade é um importante fator para o estudo da emissão e exalação de radônio, bem como o transporte de calor dentro de materiais de construção (Misdaq et al., 1998). A tabela 4.7 apresenta os resultados das densidades aparente e real e também da porosidade total obtidos por meio da equação 2.7.

TABELA 4.7: Densidade aparente, densidade real e porosidade das placas e tijolos de fosfogesso de diferentes procedências.

Procedência	Densidade aparente (ρ_a)		Densidade real (ρ_r)		Porosidade total	
	(g·cm ⁻³)		(g·cm ⁻³)		(%)	
	Tijolos	Placas	Tijolos	Placas	Tijolos	Placas
Bunge	1,08	1,62	2,50	2,95	56,8	45,1
Ultrafertil	1,21	1,70	2,50	2,78	51,6	38,5
Fosfertil	1,02	1,71	2,51	2,50	59,4	32,0
Mineral	1,43	ND	2,42	ND	40,9	ND

ND – não havia placas de gesso mineral disponíveis para análise

Nas figuras 4.5 e 4.6 são apresentadas as correlações entre as taxas de exalação de ²²²Rn e a porosidade para os tijolos e placas de fosfogesso das três procedências estudadas.

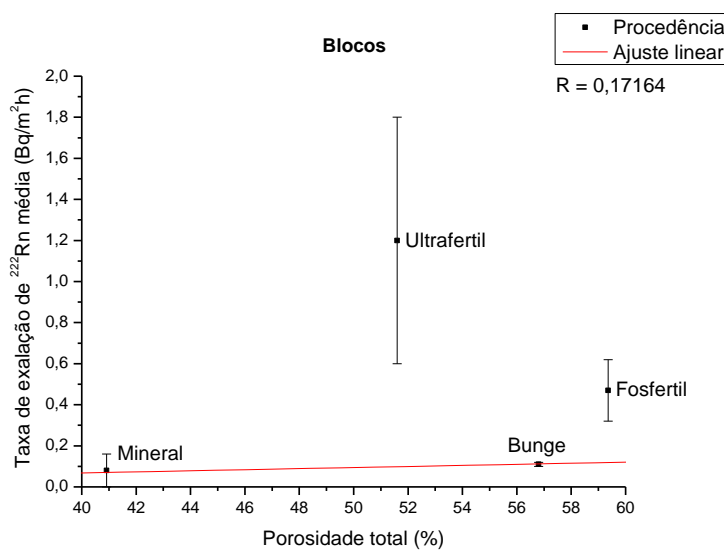


FIGURA 4.5: Correlação entre a porosidade total e a taxa de exalação de ²²²Rn média nos tijolos de fosfogesso

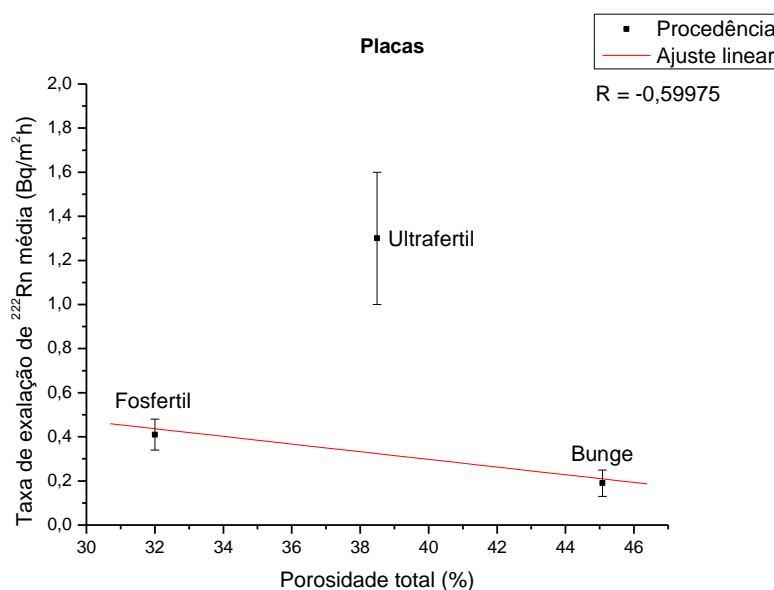


FIGURA 4.6: Correlação entre a porosidade total e a taxa de exalação de ^{222}Rn média nas placas de fosfogesso

Como pode ser verificado nas figuras 4.3 e 4.4 a concentração de ^{226}Ra é um importante parâmetro para determinar a taxa de exalação de ^{222}Rn , pois estão fortemente correlacionadas. A porosidade, por sua vez apresentou uma fraca correlação com a exalação de radônio nos tijolos e muito fraca nas placas, mascarada pelos valores elevados da concentração de rádio nesses materiais. Sendo assim, uma vez que taxa de exalação de radônio se relaciona de forma linear com concentração de ^{226}Ra , foi avaliada a correlação entre a taxa de exalação por unidade de concentração de ^{226}Ra e a porosidade (FIG. 4.7 e 4.8).

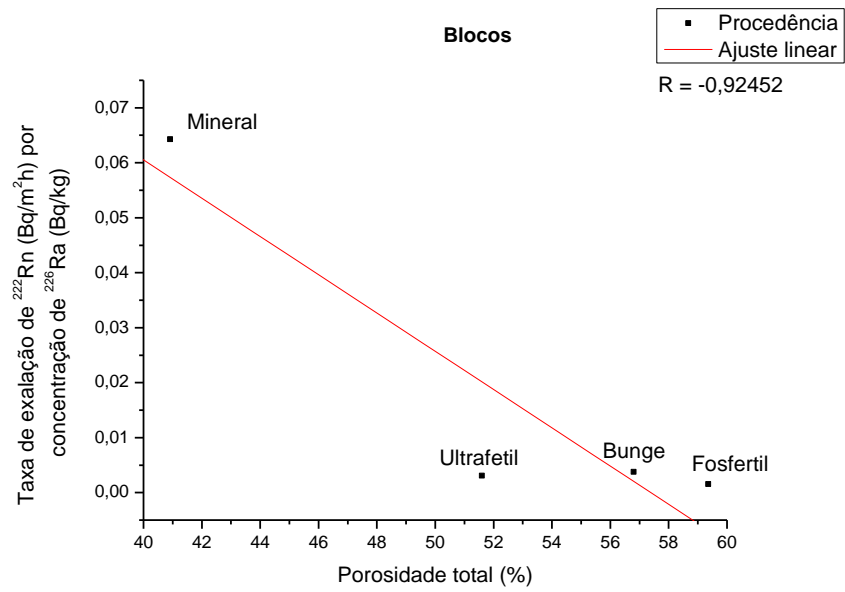


FIGURA 4.7: Correlação entre a taxa de exalação de ^{222}Rn por unidade de concentração de ^{226}Ra e porosidade total nos tijolos de fosfogesso

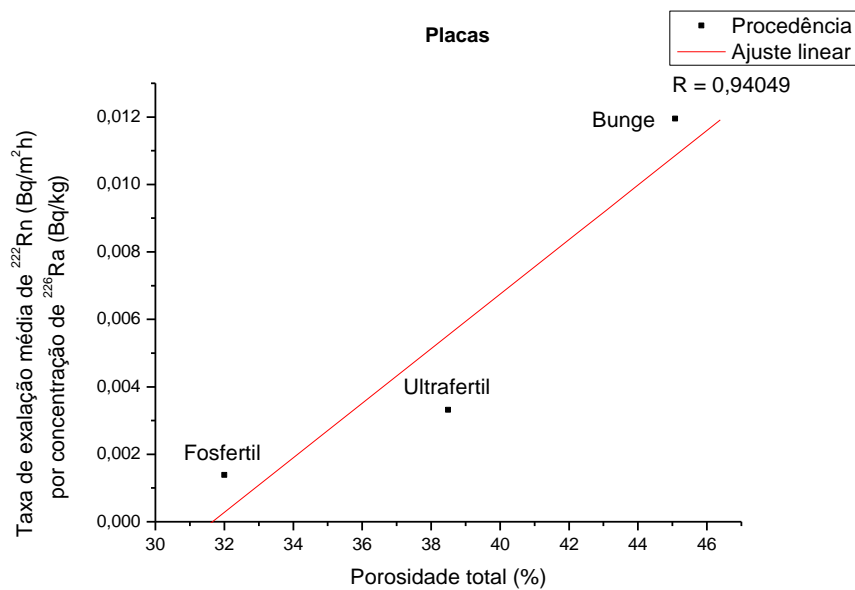


FIGURA 4.8: Correlação entre a taxa de exalação de ^{222}Rn por unidade de concentração de ^{226}Ra e porosidade total nas placas de fosfogesso.

Observa-se nas figuras 4.7 e 4.8 a forte correlação entre a taxa de exalação de ^{222}Rn por unidade de concentração de ^{226}Ra e a porosidade para os tijolos e placas de fosfogesso. Entretanto, as placas e os tijolos tiveram comportamentos diferentes, para os tijolos quanto maior a porosidade menor a exalação, já para as placas ocorreu o oposto. A porosidade total foi determinada a partir da densidade real e densidade aparente, utilizando a equação 2.7. Segundo Correia e Souza (2009), na produção das placas de fosfogesso é utilizada uma fibra a base de celulose, esta fibra altera a densidade do material.

Foi verificado por Kanno (2009) que o gesso natural conformado pelo método UCOS também é influenciado pela umidade, a deformação dos corpos é maior com o aumento da umidade do corpo, sendo a deformação extremamente acentuada a uma umidade relativa de 100%; possivelmente o fosfogesso também é influenciado pela água.

Durante o preparo das amostras para a análise por espectrometria gama, foi verificado que o tijolo proveniente da empresa Bunge apresentou deformação, isso pode indicar a presença de água no tijolo e pode ter afetado o processo de emanção, pois o comprimento de difusão de radônio na água é menor que no ar, como mostrado na figura 2.3. Já o tijolo mineral não apresentou esta deformação, o mesmo se partia facilmente.

Utilizando os valores das tabelas 4.1, 4.2 e 4.6 foi verificada a correlação entre a taxa de exalação de ^{222}Rn experimental para os tijolos e placas de fosfogesso e a taxa de exalação obtida por meio do modelo proposto pela UNSCEAR a partir da concentração de ^{226}Ra . Os resultados são apresentados nas figuras 4.9 e 4.10.

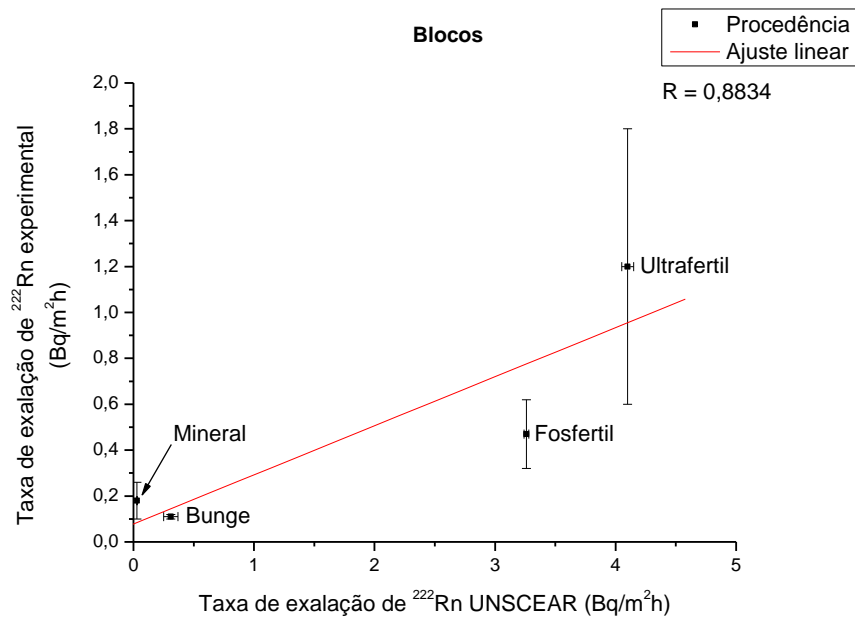


FIGURA 4.9: Correlação entre a taxa de exalação de ^{222}Rn experimental e teórica utilizando o modelo da modelo da UNSCEAR para os tijolos de fosfogesso

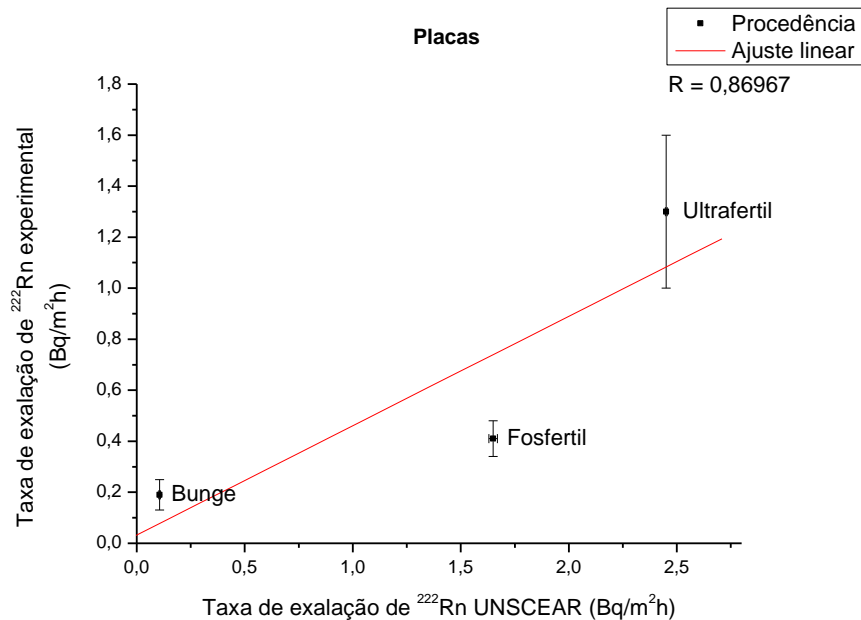


FIGURA 4.10: Correlação entre a taxa de exalação de ^{222}Rn experimental e teórica utilizando o modelo da modelo da UNSCEAR para as placas de fosfogesso

Observa-se pelas figuras 4.9 e 4.10 que, embora os valores experimentais das taxas de exalação sejam menores que os obtidos pelo modelo teórico, o comportamento para as placas e tijolos de todas as procedências estudadas é o mesmo.

4.4 Avaliação da contribuição do revestimento para a taxa de exalação de ^{222}Rn

4.4.1 Preparo das amostras com revestimento

Oito tijolos e seis placas foram preparados para verificar a influência do revestimento. Quatro tijolos e três placas foram pintados com duas demãos de tinta látex, com 50 % de diluição. Nos outros quatro tijolos e três placas foi aplicada apenas uma camada de textura lisa. Após isso, foram montadas câmaras de acumulação, conforme o segundo arranjo experimental descrito anteriormente.

Na tabela 4.8 são apresentados os resultados da taxa de exalação de ^{222}Rn para as placas e tijolos de fosfogesso cobertos com os revestimento de tinta látex e de textura lisa.

TABELA 4.8 – Taxa de exalação de radônio nas placas e tijolos de fosfogesso com revestimento

Procedência	Taxa de exalação de radônio ($\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$)							
	Placas				Blocos			
	<i>Textura lisa</i>		<i>Tinta látex</i>		<i>Textura lisa</i>		<i>Tinta látex</i>	
Bunge	0,08 ± 0,00	0,12 ± 0,08	0,04 ± 0,00	0,05 ± 0,01				
Ultrafertil	0,39 ± 0,04	0,45 ± 0,08	0,27 ± 0,18	0,14 ± 0,03				
Fosfertil	0,15 ± 0,01	0,17 ± 0,01	0,07 ± 0,01	0,11 ± 0,03				
Mineral	— ^a	— ^a	0,03 ± 0,01	0,04 ± 0,00				

a – não há placas de gesso disponíveis para análise

Comparando-se os valores das tabelas 4.1, 4.2 e 4.8 pode-se verificar que a taxa de exalação de ^{222}Rn diminui com a presença dos revestimentos, indicando que essa pode ser uma medida mitigadora, quando necessário.

4.5 Estimativa de dose efetiva

A dose efetiva para um indivíduo morando em uma residência construída com materiais a base de fosfogesso foi avaliada a partir do modelo proposto por Sweikani e Raja, utilizando-se as equações (2.8, 2.9 e 2.10). A dose efetiva foi calculada considerando-se período de exposição de 7000 h por ano e assumido que a taxa de ventilação é de 0,5 trocas por hora. Para uma concentração representativa de radônio foi adotado o valor de equilíbrio de 0,4 mencionado na BBS-115 (1996). Foram ainda utilizados um fator de conversão entre a concentração e a dose anual de $17\mu\text{Sv}/\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ e a média geométrica da taxa exalação de ^{222}Rn durante o período de monitoração.

Na residência construída em São Carlos as medidas do quarto padrão são de $3,36 \times 3,3 \times 2,3 \text{ m}$, conforme a figura 4.11.

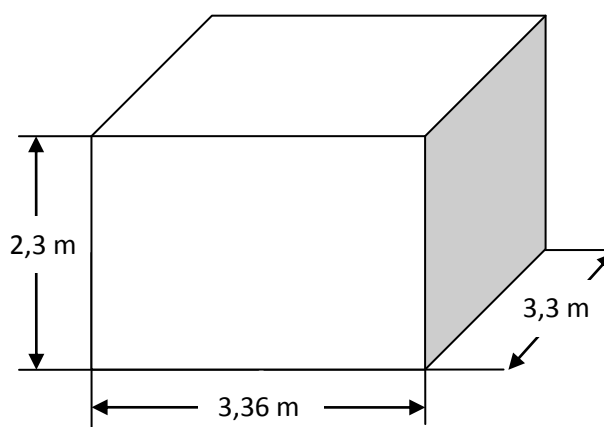


FIGURA 4.11: Representação do quarto padrão.

Para a taxa de exalação de radônio foram utilizados os dados obtidos experimentalmente (TAB 4.1 e 4.2), a área do quarto padrão foi calculada, considerando a área das paredes e do teto e o valor encontrado é de $41,7 \text{ m}^2$. Na tabela 4.9 são apresentados os resultados da dose efetiva devido a inalação de radônio a partir do conceito de quarto padrão e do modelo proposto por Shweikani e Raja (2009).

TABELA 4.9 – Dose efetiva em um quarto padrão construído com placas e tijolos de fosfogesso, utilizando o modelo proposto pela Shweikani e Raja

Procedência	Dose efetiva anual (mSv a ⁻¹)					
	Placas			Tijolos		
	<i>Sem revestimento</i>	<i>Textura lisa</i>	<i>Tinta látex</i>	<i>Sem revestimento</i>	<i>Textura lisa</i>	<i>Tinta látex</i>
Bunge	0,010	0,005	0,007	0,007	0,002	0,002
Ultrafertil	0,073	0,022	0,026	0,068	0,015	0,009
Fosfertil	0,024	0,009	0,010	0,027	0,003	0,007
Mineral	— ^a	— ^a	— ^a	0,010	0,002	0,002

a – não há placas de gesso disponíveis para análise

Na FIG 4.12 é apresentada graficamente a estimativa da dose efetiva anual para os tijolos e placas pré-fabricadas de fosfogesso.

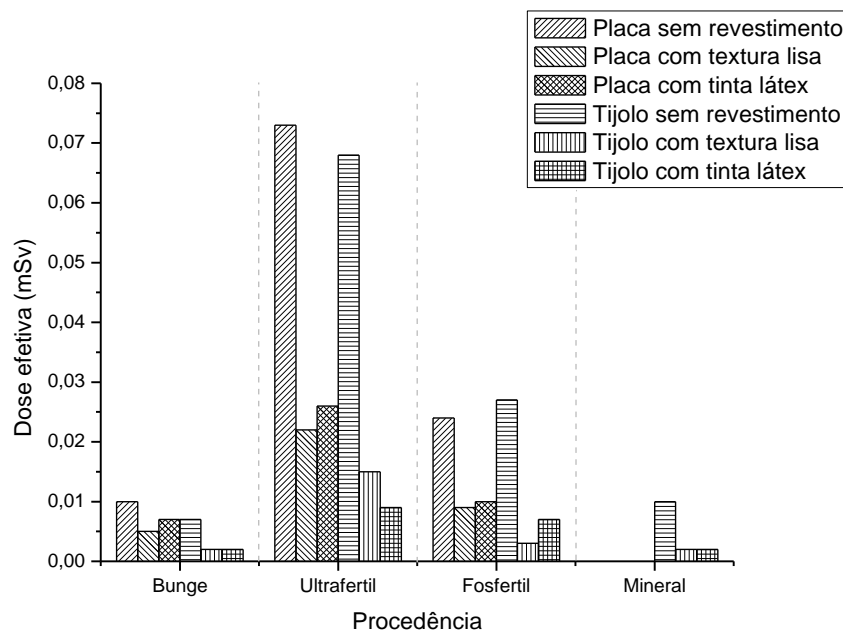


FIGURA 4.12 – Dose efetiva anual para os tijolos e placas de fosfogesso

O maior valor de dose efetiva foi obtido para um cômodo construído com material a base de fosfogesso da Ultrafertil. Vale lembrar que esses valores representam apenas a dose relativa à exalação de radônio das paredes e do teto da residência e que não foram consideradas as contribuições do radônio proveniente do solo e do piso. Mesmo para o caso do fosfogesso da Ultrafertil os valores de dose efetiva encontram-se abaixo do limite de dose para indivíduos do público estabelecido pela Comissão Nacional de Energia Nuclear de 1 mSv a^{-1} .

5. CONCLUSÕES

Cumprindo o objetivo de estudar a exalação de ^{222}Rn por tijolos e placas de fosfogesso foram determinadas as taxas de exalação de ^{222}Rn para os tijolos e placas de fosfogesso procedentes das empresas Bunge Fertilizantes e Fosfertil localizadas na cidade de Cubatão, estado de São Paulo e Ultrafertil, localizada na cidade de Uberaba, estado de Minas Gerais. Foi também determinada a taxa de exalação de tijolos de gesso comum. Os resultados médios obtidos foram de $0,19 \pm 0,06 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, $1,3 \pm 0,3 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ e $0,41 \pm 0,07 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ para as placas fabricadas com fosfogesso proveniente das empresas Bunge, Ultrafertil e Fosfertil, respectivamente.

Já para os tijolos de fosfogesso, os valores foram $0,11 \pm 0,01 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, $1,2 \pm 0,6 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, $0,47 \pm 0,15 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, para o fosfogesso da Bunge, Ultrafertil e Fosfertil. O tijolo fabricado com gesso comum apresentou valor médio de $0,18 \pm 0,08 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, bastante similar ao obtido para o tijolo de fosfogesso da Bunge Fertilizantes.

A metodologia aplicada neste trabalho para a determinação da taxa de exalação de ^{222}Rn por meio da câmara de acumulação mostrou-se adequada, uma vez que os resultados obtidos são compatíveis com os valores da literatura para materiais similares.

A título de comparação foi também determinada a taxa de exalação teórica, por meio do modelo proposto pela UNSCEAR para materiais de construção, a partir da concentração de ^{226}Ra nos tijolos e placas de fosfogesso de diferentes procedências. Os resultados mostram que a taxa de exalação de ^{222}Rn obtida por meio do modelo UNSCEAR muitas vezes é super estimada, mostrando a importância da determinação experimental.

Foram também realizadas medidas da taxa de exalação de ^{222}Rn nas placas e tijolos de fosfogesso para verificar a influência da presença de revestimento (aplicação de tinta e textura) no material sobre a taxa de exalação de radônio. Os resultados obtidos mostraram significativa redução na taxa de exalação de ^{222}Rn , indicando que a utilização do revestimento pode ser uma medida mitigadora, quando necessário.

A avaliação da correlação entre a taxa de exalação de ^{222}Rn , a concentração de ^{226}Ra nas placas e tijolos de fosfogesso e a porosidade total desses materiais confirmou que esses parâmetros são diretamente responsáveis pela exalação de radônio do material. Foi também observado, contrariando o senso comum, que a taxa de exalação de radônio diminui com o aumento da porosidade para os tijolos de fosfogesso, possivelmente porque a maior porosidade permite ao radônio emanado do grão permanecer nos poros, reduzindo a exalação do gás.

A dose efetiva devido à inalação de radônio para um indivíduo habitando uma residência construída com tijolos ou placas de fosfogesso foi estimada para cada uma das procedências de fosfogesso. Os valores de dose obtidos para todos os materiais e procedências estudados encontram-se abaixo do limite de dose anual para indivíduos do público de 1 mSv a^{-1} , recomendado pela Comissão Internacional de Proteção Radiológica (ICRP 60, 1990) e pela Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN 3.01, 2005). Isto demonstra que a utilização de tijolos e placas de fosfogesso na construção de residências não contribui para o incremento significativo de dose na população, portanto, os riscos podem ser considerados desprezíveis.

Além disso, os tijolos e placas de fosfogesso conformados pelo método UCOS podem ser 100% reciclados, não gerando resíduos para o meio ambiente ao término de sua utilização.

Cabe ainda ressaltar dois aspectos importantes oriundos das conclusões obtidas neste trabalho; em termos sociais, o uso das placas e tijolos de fosfogesso estudados apresenta-se como uma opção para minimizar a falta de moradia popular, já em relação ao aspecto ambiental, tem-se uma alternativa para diminuir os problemas em relação aos resíduos gerados pela indústria de fertilizantes fosfatados.

6. SUGESTÕES PARA NOVOS TRABALHOS

Como sugestão para trabalhos futuros propõem-se:

- Realizar a medida dos produtos de decaimento do radônio;
- Realizar um estudo para a exposição interna ao torônio;
- Realizar uma estimativa da exposição por inalação de radônio para os trabalhadores que produzem os tijolos e placas de fosfogesso, considerando o tempo de permanência no local de trabalho;
- Realizar medidas do coeficiente de difusão e fração de emanação, verificando a relação da taxa de exalação de radônio com esses parâmetros.
- Criar uma base de dados nacional com as características dos resíduos NORM e TENORM gerados no país, visando o desenvolvimento de tecnologias de produção de materiais de construção com NORM e TENORM associados.

REFERÊNCIA BIBLIOGRÁFICAS

AL-AZMI, D., ABU-SHADY, A.I., SAYED, A.M., AL-ZAYED, Y., Indoor radon in Kuwait. *Health Physics*, v. 94. p. 49-56. 2008

AMRANI, D., CHEROUATI, D. E., Radon exhalation rate in building materials using plastic track detectors. *Journal of Radionalytical and Nuclear Chemistry*. v. 242. p. 269-271. 1999.

ANDRADE, A., SOUZA, S., DIOGO J.M.S., Atributos Físicos do solo em diferentes sistemas de manejo. In: II Simpósio Internacional Savanas Tropicais. *Anais...* Brasília, 2008.

AXIOVISION. **AxioVision User's Guide. Release 4.8.1.** 2009

BARTLETT, D.T., GILVIN, P.J., STILL, R., DIXON, W.D., MILES, J.C.H. The NRPB radon personal dosimetry service. *Journal of Radiological Protection*, v.8, p. 19-24, 1988.

BAYKARA, O., KARATEPE, S., DOGRU, M. Assessments of natural radioactivity and radiological hazards in construction materials used in Elazig, Turkey. *Radiation Measurements*, v. 46. p. 153-158. 2011

CACCURI, L.S. **Avaliação da exposição ocupacional ao ^{222}Rn no galpão da salvaguardas do IPEN.** Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo. 2007.

CAMPOS, M.P.; PECEQUILO, B.R.S. Exposure assessment due to building materials in ordinary houses at São Paulo, Brazil. *Rev. Bras. Pesq.Des.* v.5, n.2,p. 60-65, 2003.

CAMPOS, M. P.; PECEQUILO, B. R. S.; MAZZILLI, B. P. ^{222}Rn and ^{212}Pb exposures at a Brazilian spa. *Radiation Protection Dosimetry*, v. 141, p. 210-214, 2010.

CANUT, M. M. C., JACOMINO, V. M. F., BRATVEIT, A., GOMES, A. M., YOSHIDA, M. I., Microstructural analyses of phosphogypsum generated by Brazilian fertilizer industries. *Materials Characterization*, v. 59, p. 365-373. 2008.

CHANG, W. F.; MANTELL, M. I., **Engineering properties and construction applications of phosphogypsum.** Florida Institute of Phosphate Research. Coral Gables: p. 201, Florida. 1990.

CHEN, J., RAHMAN, N. M., ATIYA, I. A. Radon exhalation from building materials for decorative use. *Journal of Environmental Radioactivity*, v. 101 p. 317-322. 2010.

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR. **Diretrizes básicas de radioproteção.** (CNEN NE 3.01). 2005.

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR. **Nível de isenção para o uso do fosfógeno na agricultura e indústria cimenteira.** Resolução Nº 113, 2011.

CORREIA, C. M. P., **Conforto termo – acústico de uma habitação de baixo custo**. Tese (Doutorado em Ciências e Engenharia dos Materiais) – Instituto de Química de São Carlos, Instituto de Física de São Carlos, Escola de Engenharia de São Carlos da Universidade de São Paulo, São Carlos, 2009.

CORREIA, C. M. P., SOUZA, M. F. Mechanical Strength and Thermal Conductivity of Low-Porosity Gypsum Plates. *Materials Research*. v. 12. p. 95-99. 2009.

Costa, L.J.P. ; Campos, M. P. ; NISTI, M. B. ; MAZZILLI, B. P. . Radon exhalation from phosphogypsum bricks. In: 6th Conference on Protection against Radon at Home and at Work, 2010, Praga. *Book of abstracts*, 2010. p. 125-125.

CUTSHALL, N. H.; LARSEN, I. L.; OLSEN, C. R.; Direct analysis of ^{210}Pb in sediment samples: self-absorption corrections. *Nuclear Instruments and Methods*, v. 206, p. 309-312, 1983.

DAMASCENO, E.C.; LIMA, J.R.B. Aproveitamento de resíduos da indústria de mineração: o fosfogesso gerado pela solubilização de concentrados fosfáticos. In: 3º Congresso Ítalo Brasileiro di Ingegneria mineraria, 26-27 settembre, p.229-230, Verona, 1994. *Proceedings...* Verona, 1994.

DE JONG, P., VAN DIJK, W. VAN DER GRAAF, E.R., DE GROOT, T.J.H., National survey on the natural radioactivity and ^{222}Rn exhalation rate of building materials in the Netherlands. *Health Physics*, v. 91. p. 200-210. 2006.

DEPARTAMENTO NACIONAL DE PRODUÇÃO MINERAL. MINISTÉRIO DE MINAS E ENERGIA. *Sumário Mineral 2011*. Fosfato. 2011.

FAHEEM, M., MATIULLAH. Radon exhalation and its dependence on moisture content from samples of soil and building materials. *Radiation Measurements*, v. 43. p. 1458-1462. 2008.

FOLKERTS, K. H., KELLER, G., MUTH, H. An experimental study on diffusion and exhalation of ^{222}Rn and ^{220}Rn from building materials. *Radiation Protection Dosimetry*, v. 9 n. 1 p. 27-34. 1984.

EC – European Commission. Radiation protection 112 – Radiological protection principles concerning the natural radioactivity of building materials. Directorate General Environment. Nuclear Safety and Civil Protection. 1999.

EMBRAPA - Centro Nacional de Pesquisa de Solos (CNPS). *Manual de métodos de análise de solo* 2ª ed. Rio de Janeiro, EMBRAPA - CNPS, p. 212, 1997.

GILSEN, P. **Operating manual 4.1. Inter winner spectroscopy program family version 4.1** 1998.

GIRAULT, F., GAJUREL, A. P., PERRIER, F., UPRETI, B. N., RICHON, P., Radon emanation of heterogeneous basin deposits in Kathmandu Valley, Nepal. *Journal of Asian Earth Sciences*, v. 40. p. 595-610. 2011.

GOUVEIA, L. T., FURLAN, A. P., PARREIRA, A. B., FERNANDES JR., J. L., FABBRI, G. T. P. Considerações acerca da absorção de asfalto pelos agregados e sua influência na suscetibilidade à umidade. In: XVIII ANPET-Congresso de Pesquisa e Ensino em Transportes, v. 1. p. 138-149. Florianópolis. 2004. *Anais...* Florianópolis, 2004

GUBIANI, P.I., REINERT, D.J., REICHERT. J.M., Método alternativo para a determinação da densidade de partículas do solo – exatidão, precisão e tempo de processamento. *Ciência Rural*, v. 36. p. 664-668. 2006.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. *International Basic Safety Standards for Protection against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Sources*. Vienna, Safety Series N° 115, 1996 (BSS-115).

INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. *Report of the task group on reference man*. Oxford, Pergamon Press: ICRP Publication 23, 1975. (ICRP-23)

INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. *1990 Recommendations of the international commission on radiological protection*. Pergamon Press. Oxford, 1991. (ICRP-60).

INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. *Protection against Radon-222 at home and at work*. Oxford, Pergamon Press: ICRP Publication 65, 1993. (ICRP-65)

INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. *Human respiratory tract model for radiological protection*. Oxford, Pergamon Press: ICRP Publication 66, 1994. (ICRP-66)

INTERWINNER. *InterWinner (WinnerGamma) Spectroscopy Program Family Version 6.0*, 2004.

JACOMINO, V.F., BELLINTANI, S.A., OLIVEIRA, J., MAZZILLI, B.P., FIELDS, D.E., SAMPA, M.H.O., SILVA, B. Estimates of cancer mortality due to the ingestion of mineral springs waters from a high natural radioactive regions of Brazil. *J. Environ. Radioactivity*, v. 33, n. 3, p.319-329, 1996.

JASAITIS, D., DIRGZDYS, A. Natural Radionuclide Distribution and Radon Exhalation Rate from the Soil in Vilnius City. *Journal of Environmental Engineering and Landscape Management*, Vilnius, v. 15, n.1, p. 31-37, 2007.

KANNO, C. M. P., *Propriedades mecânicas do gesso de alto desempenho*. Tese (Doutorado em Ciências e Engenharia dos Materiais) – Escola de Engenharia de São Carlos, Instituto de Física de São Carlos, Instituto de Química de São Carlos da Universidade de São Paulo, São Carlos, 2009.

KHAN, A.J., PRASAD, R., TYAGI, R.K. Measurement of radon exhalation rate from some building materials. *Radiation Measurements*, v. 20, p. 609-610. 1992.

KOTRAPPA, P., STIEFF, F. Radon exhalation rates from building materials using electret ion chamber radon monitors in accumulators. *Health Physics*, v. 97, p. 163-166. 2009.

LETTNER, H., STEINHÄUSLER, F., Radon exhalation of waste gypsum recycled as building materials. *Radiation Protection Dosimetry*, v. 24. p. 415-417. 1988.

LÓPEZ, F. A., GÁZQUEZ, M., ALGUACIL, F. J., BOLÍVAR, J. P., GARCÍA-DÍAZ, I., LÓPEZ-COTO, I., Microencapsulation of phosphogypsum into a sulfúrico polymer matrix: Physico-chemical and radiological characterization. *Journal of Hazardous Materials*, v. 192. p. 234-245. 2011.

LYSANDROU M., CHARALAMBIDES, A., PASHALIDIS, I., Radon emanation from phosphogypsum and related mineral samples in Cyprus. *Radiation Measurements*, v. 42. p. 1583-1585. 2007.

MÁDUAR, M. F., CAMPOS, M. P., MARTINS, E. W., MAZZILLI, B. P., External dose assessment and radon monitoring in an experimental house built with phosphogypsum-based materials. In: International Conference on Radioecology e Environmental Radioactivity. Noruega, 2008. *Proceedings*... Noruega, 2008.

MÁDUAR, M. F., CAMPOS, M.P., MAZZILLI, B. P., VILLAVERDE, F. L. Assessment of external gamma exposure and radon levels in a dwelling constructed with phosphogypsum plates. *Journal of Hazardous Materials*, v. 190, p. 1063-1067. 2011.

MAYYA, Y.S., EAPPEN, K.P., NAMBI, K.S.V., Methodology for mixed field inhalation dosimetry in monazite areas using a twin-cup dosimeter with tree track detectors. *Radiation Protection Dosimetry*, v. 77. p. 177-184. 1998.

MAZZILLI, B.P.; PALMIRO, V.; SAUEIA, C., NISTI, M.B., Radiochemical characterization of Brazilian phosphogypsum. *Journal of Environmental Radioactivity*, v. 49, p. 113-122, 2000.

MISDAQ, M. A., KHAJMI, H., KTATA A. Study of the influence of porosity on the radon emanation coefficient in different building material samples by combining the SSNGD technique with Monte Carlo simulations. *Radiation Physics and Chemistry*, v. 53. p. 385-390. 1998.

MODRO, N.L.R., MODRO, N.R., MODRO, N.R., OLIVEIRA, A.P.N. Avaliação de concreto de cimento Portland contendo resíduos de PET. *Revista Matéria*, v. 14. p. 725-736. 2009.

NISTI, M. B.; Campos, M.P. . Estudo da exalação de Rn-222 em fosfogesso por meio da técnica de adsorção em carvão ativado. In: International Joint Conference RADIO 2011, 2011, Recife. *Proceedings* ... RADIO 2011, 2011. p. 1-4.

NEMAN, R. S. *Medida Separada de Radônio-222 e de seus filhos no ar: Monitoração na Cidade de Poços de Caldas – MG e comparação de atividades envolvendo 2 outras técnicas de medida de Rn-222 no ar*. Tese (Doutorado em Física) – Instituto de Física Gleb Wataghin, Universidade Estadual de Campinas, Campinas, 2004.

NATURALLY OCCURRING RADIOACTIVITY IN THE NORDIC COUNTRIES – Recommendations. The Radiation Protection Authorities in Denmark, Finland, Iceland, Norway and Sweden. 2000. (NORNC)

PAES, V.P. *Caracterização radioquímica do ^{226}Ra , ^{40}K e dos isótopos de urânio e tório no fosfogesso*. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo. 2001.

Paulo, S.R. *Dosimetria ambiental de Rn-222 e filhos: Medida da eficiência absoluta do CR-39 levando-se em conta os efeitos do plate-out e fatores ambientais*. Tese (Doutorado em Ciência) – Universidade de Campinas, Campinas. 1991.

PORSTENDORFER, J. Properties and behaviour of radon and thoron and their decay products in the air. In: FIFTH INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON THE NATURAL RADIATION ENVIRONMENT, 1993, Luxembourg, Bélgica, 1993. p. 44-46. *Proceedings*... Bélgica, 1993.

RABI, J. A., DA SILVA, N. C., Radon exhalation from phosphogypsum building boards: symmetry constraints, impermeable boundary conditions and numerical simulation of a test case. *Journal of Environmental Radioactivity*, v. 86, pp. 164-175 2006.

RABI, J. A., MOHAMAD, A. A. Parametric modelling and numerical simulation of natural-convective transport of radon-222 from a phosphogypsum stack into open air. *Applied Mathematical Modelling*, v. 30. P. 1546-1560. 2006.

REHMAN, S., MATIULLAH, REHMAN, S., RAHMAN, S., Studying ^{222}Rn exhalation rate from soil and sand samples using CR-39 detector. *Radiation Measurements*, v. 41, p. 708-713, 2006.

ROSA, R. *Exposição potencial a radiação natural, no interior de residências, devido ao uso de fosfogesso na indústria da construção civil*. 1997. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Biofísica Carlos Chagas Filho, Universidade Federal do Rio de Janeiro.

RUTHERFORD, P. .M.; DUDAS, M.J.; SAMEK, R.A. Environmental impacts of phosphogypsum. *The Science Total Environmental*, v.149, p.1-38, 1994.

SABOL, J., WENG, P. S., *Introduction to radiation protection dosimetry*. World Scientific Publishing. 1995.

SAHOO, B. K., SAPRA, B. K., GAWARE, J. J., KANSE, S. D., MAYYA, Y. S., A model to predict radon exhalation from walls to indoor air based on the exhalation from building material samples. *Science of the Total Environment*, v. 409. p. 2635-2641. 2011.

SAKODA, A., ISHIMORI, Y., YAMAOKA K., A comprehensive review of radon emanation measurements for mineral, rock soil, Mill tailing and fly ash. *Applied Radiation na Isotopes*, v. 69, p. 1422-1435, 2011.

SANTOS, A. J. G. *Avaliação do impacto radiológico ambiental do fosfogesso brasileiro e lixiviação de ^{226}Ra e ^{210}Pb* . Tese (Doutorado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo. 2002.

SAUEIA, C. H. R., *Caracterização radioquímica do fofogesso e implicações radiológicas de sua utilização como material de construção*. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo. 1998.

SAUEIA, C. H.; MAZZILLI, B. P.; FAVARO, D. I. T. Natural radioactivity in phosphate rock, phosphogypsum and phosphate fertilizer in Brazil. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, v. 264, p. 445-448, 2005.

SAUEIA, C. H. R., *Distribuição elementar e de radionuclídeos na produção e uso de fertilizantes fosfatados no Brasil*. Tese (Doutorado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo. 2006.

SHAFI-UR-REHMAN, MATIULLAH, SHAKEEL-UR-REHMAN, RAHMAN. Studying ^{222}Rn exhalation rate from soil and samples using CR-39 detector. *Radiation Measurements*, v. 41, p. 708-713. 2006.

SHARAF, M., MANSY, M., SAYED, A. EL., ABBAS, E. Natural radioactivity and radon exhalation rates in building materials used in Egypt. *Radiation Measurements*, v. 31, p. 491-495. 1999.

SHARMA, N., VIRK, H.S. Exhalation rate study of radon/thoron in some buiding materials. *Radiation Measurements*, v 34, 467-469. 2001.

SHWEIKANI, R., RAJA, G. Radon exhalation from some finishing materials frequently used in Syria. *Radiation Measurements*, v. 44, p. 1019-1023. 2009.

SILVA, N. C., FERNANDES, E. A. N., CIPRIANI, M., TADDEI, M. H. T., The natural radioactivity of Brazilian phosphogypsum. *Journal of Radionalytical and Nuclear Chemistry*, v. 249, p. 251-255. 2001.

SOUZA, A. F. C. *Desenvolvimento de uma metodologia para avaliação de doses visando o uso de NORM em materiais de construção*. Dissertação (Mestrado em Ciências em Engenharia Nuclear) – Instituto Militar de Engenharia, Rio de Janeiro, 2009.

TUCCIMEI, P., MORONI, M., NORCIA, D. Simultaneous determination of ^{222}Rn and ^{220}Rn exhalation rates from building materials used in Central Italy with accumulation chambers and a contínuos solid state alpha detector: Influence of particle size, humidity and precursors concentration. *Applied Radiation and Isotopes*, v. 64, p. 254-263. 2006.

VAN DER PAL M., VAN DER GRAAF, E.J., DE MEIJER, R.J., DE WIT, M.H., HENDRIKS, N.A. Experimental set-up for measuring diffusive and advective transporto f radon throught building materials. *The Science of the Total Environmentl*, v. 272. p. 315-321. 2001.

VILLAVERDE, F.V., *Avaliação da exposição externa em residência construída com fofogesso*. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo. 2008.

UJIC, P., CELIKOVIC, I., KANDIC, A., ZUNIC, Z., Standardization and difficulties of the thoron exhalation rate measurements using an accumulation chamber. *Radiation Measurements*, v. 43, p. 1396-1401. 2008.

United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR). Sources and effects of ionizing radiation. Vol. 1 (New York: United Nations Publication) (2000).

ZUBAIR, M., KHAN, M.S., VERMA, D. Radium studies in sand samples collected from Sea Coast of Tiru, Kerala, India using LR-115 plastic track detectors. *International Journal of Applied Science and Engineering*, v. 9 p. 43-47. 2011.