



INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGETICAS E NUCLEARES
Autarquia associada à Universidade de São Paulo

**AVALIAÇÃO DA EXPOSIÇÃO EXTERNA EM RESIDÊNCIA
CONSTRUÍDA COM FOSFOGESSO**

FREDDY LAZO VILLAVERDE

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

2008

Dedico este trabalho a minha família, aos meus queridos pais, Celso e Jacinta pelo milagre da vida, os meus irmãos, Doris e Luis Alberto pela alegria de viver.

MEUS SINCEROS AGRADECIMENTOS

- ✚ Ao longo do desenvolvimento deste trabalho muitas dificuldades tiveram que ser superadas e foram muitas as pessoas que contribuíram para isso, gostaria de agradecer a todos que diretamente me auxiliaram na conclusão deste trabalho e, em especial:
- ✚ À Dra Marcia Pires de Campos, por aceitar a orientação deste trabalho, pela constante dedicação, apoio e compreensão durante o desenvolvimento da dissertação com seus ensinamentos, sugestões, críticas e correções sempre pertinentes, na execução experimental e redação final para o aperfeiçoamento deste trabalho e mostrar a importância da sua realização.
- ✚ Ao IPEN- Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares e à USP- Universidade de São Paulo, pela oportunidade oferecida para a realização deste trabalho de mestrado.
- ✚ A CNEN- Comissão Nacional de Energia Nuclear, pelo apoio econômico com a concessão da bolsa de mestrado, muito obrigado.
- ✚ Ao meu grande amigo o Dr. Paulo Sérgio Cardoso da Silva, pela sua ajuda, apoio, solidariedade e compreensão nos momentos difíceis, mostrando que na vida todo tem uma solução.
- ✚ À Dra Catia Heloisa Rosignoli Saueia, pelas suas palavras de alento e incentivo na pesquisa, aqui deixo minha enorme gratidão e admiração.
- ✚ À COSEAS - Coordenadoria da Saúde e Assistência Social da Universidade de São Paulo, pelo apoio na moradia, de maneira especial para a assistente social Fátima.
- ✚ A minha grande família, por entender minha ausência em momentos importantes de nossa vida, por sermos uma família sempre unida.
- ✚ À Andréia Estevam Lopes pelo seu apoio, amor e carinho durante tudo este tempo.

- ✚ Ao Marcelo Bessa Nisti, pelo seu bom humor, gentileza, solidariedade, paciência e dotes de maestro, pelos ensinamentos e valiosas sugestões que permitiram o enriquecimento deste trabalho.
- ✚ Ao Lúcio Leonardo e Marcos Medrado, meus amigos de aula nos cursos da pós-graduação e colegas de trabalho.
- ✚ Aos funcionários e colegas do Laboratório de Radiometria Ambiental do CMR-IPEN, em especial a Sandra Regina, Adir Janete Godoy, Marcelo Maduar, Paulo Rene, Ana Claudia, Joselene de Oliveira e Donilda, pela ajuda, colaboração, amizade e suporte afetivo durante minha permanência.
- ✚ A todos meus amigos da pós-graduação Simone Alberigi, Fernanda Melo Le Bourlegat, Suely Jesus, Ademar e Lilian Saueia, por partilhar nossa amizade, companheirismo e momentos agradáveis na nossa sala de bolsistas, obrigado meus caros amigos brasileiros.
- ✚ À empresa Inovamat, Inovação em Materiais Ltda, pelo fornecimento gentil de amostras das placas pré-fabricadas de fosfogesso, e pelas informações técnicas solicitadas, em especial aos Engenheiros Wellington Massayuki Kano e Hebert Rosseto.
- ✚ Agradeço em particular aos membros da banca examinadora os quais contribuíram com sugestões para o aperfeiçoamento.
- ✚ A meus amigos peruanos Luis Gomez, Max Mucha e Juan Julca, por partilhar momentos inesquecíveis durante os quase três anos da minha permanência no Brasil.

AVALIAÇÃO DA EXPOSIÇÃO EXTERNA EM RESIDÊNCIA CONSTRUÍDA COM FOSFOGESSO

Freddy Lazo Villaverde

RESUMO

Neste trabalho foi estudada a viabilidade do uso de placas pré-fabricadas de fosfogesso na construção de residências. Para tanto, foi avaliada a dose efetiva por exposição externa à radiação gama em uma residência modelo construída com estas placas, a partir da determinação, por espectrometria gama, da concentração dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{210}Pb e ^{40}K nas mesmas. A atividade equivalente de rádio e os índices de risco interno e externo devido aos radionuclídeos presentes no material também foram avaliados. As placas foram fabricadas com fosfogesso proveniente de indústrias de fertilizantes localizadas em Cajati, Cubatão e Uberaba. As amostras foram identificadas de acordo com a procedência do fosfogesso, Cajati (CA), Cubatão (CT) e Uberaba (UB). Os resultados da concentração dos radionuclídeos naturais variaram de $15,9 \text{ Bq kg}^{-1}$ a 392 Bq kg^{-1} para o ^{226}Ra , de $26,1 \text{ Bq kg}^{-1}$ a 253 Bq kg^{-1} para o ^{232}Th , de $26,4 \text{ Bq kg}^{-1}$ a 852 Bq kg^{-1} para o ^{210}Pb e foi menor que 81 Bq kg^{-1} para o ^{40}K . A dose efetiva anual foi obtida utilizando-se um modelo dosimétrico disponível na literatura a partir do conceito de quarto padrão, os resultados foram de $0,02 \text{ mSv a}^{-1}$ para a residência construída com fosfogesso da procedência CA, $0,20 \text{ mSv a}^{-1}$ para a CT e $0,14 \text{ mSv a}^{-1}$ para UB, todas as doses foram inferiores ao limite de dose efetiva para indivíduos do público de $1\text{mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ estabelecido pela Comissão Internacional de Proteção Radiológica.

EXTERNAL EXPOSURE ASSESSMENT IN DWELLING BUILT WITH PHOSPHOGYPSUM

Freddy Lazo Villaverde

ABSTRACT

In this study it was evaluated the viability of the use of phosphogypsum plates as a building material in the dwelling construction. Thus, the effective dose due to external gamma exposure was assessed through the ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{210}Pb e ^{40}K activity concentration in phosphogypsum plates. Samples of this material were analyzed by high resolution gamma spectrometry for their natural radionuclide activity concentration. The radium equivalent activity and external and internal hazard indices were also calculated. The plates were made with phosphogypsum from fertilizer industries located in Cajati, Cubatão and Uberaba. The samples were identified according to phosphogypsum origin, Cajati (CA), Cubatão (CT) and Uberaba (UB). The activity concentrations results varied from 15.9 to 392 Bq kg⁻¹ for ^{226}Ra , 26.1 to 253 Bq kg⁻¹ for ^{232}Th , and 27.4 to 852 Bq kg⁻¹ for ^{210}Pb . The results of ^{40}K were lower than 81 Bq kg⁻¹. The annual effective dose was obtained through the dosimetric model with reference standard room concept, the results were 0.02 mSv y⁻¹ for a house built with phosphogypsum from origin CA, 0.2 mSv y⁻¹ for CT phosphogypsum and 0.14 mSv y⁻¹ for UB phosphogypsum, everything the effective doses were below 1 mSv y⁻¹, an annual effective dose limit for public exposure by International Commission on Radiological Protection.

SUMÁRIO

	Página
1. INTRODUÇÃO	9
2. OBJETIVOS	15
2.1 Objetivos Gerais.....	15
2.2 Objetivos Específicos.....	15
3. FUNDAMENTOS TEÓRICOS	17
3.1 Os minérios fosfáticos no Brasil.....	17
3.2 Produção de ácido fosfórico para fertilizantes fosfatados.....	18
3.3 O fosfogesso.....	21
3.4 Possíveis aplicações do fosfogesso.....	22
3.4.1 Aplicação na agricultura.....	23
3.4.2 Aplicação na produção de cimento.....	24
3.4.4 Aplicação na construção civil.....	24
3.5 Impacto ambiental do fosfogesso.....	26
3.6 Caracterização radioquímica dos radionuclídeos naturais: Potássio, Urânio, Tório e Rádio.....	28
3.6.1 Potássio.....	29
3.6.2 Urânio.....	29
3.6.3 Tório.....	29
3.6.4 Rádio.....	30
4. METODOLOGIA	31
4.1 Espectrometria gama: princípios do método.....	31
4.2 Fator de auto-absorção.....	33
4.3 Dose efetiva por exposição externa.....	34
4.4 Determinação da atividade equivalente de rádio ($R_{a_{eq}}$).....	36
4.5 Determinação do índice de risco externo (H_{ex}).....	36
4.6 Determinação do índice de risco interno (H_{in}).....	37
5. PARTE EXPERIMENTAL	38
5.1 Descrição da residência e quarto padrão estudados.....	38
5.2 Fabricação e características das placas de fosfogesso.....	40

5.3 Obtenção e preparo das amostras.....	40
5.4 Determinação dos níveis de radiação gama.....	41
5.4.1 Determinação das concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K e ^{210}Pb nas placas de fosfogesso.....	41
6. RESULTADOS E DISCUSSÃO	45
6.1 Concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K e ^{210}Pb nas placas de fosfogesso.....	45
6.2 Estimativa da dose efetiva por exposição externa.....	51
6.3 Resultados dos parâmetros radiológicos.....	55
6.3.1 Atividades equivalente de radio (Ra_{eq}).....	55
6.3.2 Índice de risco externo (H_{ex}) e risco interno (H_{in}).....	56
7. CONCLUSÕES	58
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	60

1 INTRODUÇÃO

De forma inevitável, o homem sempre esteve exposto às radiações naturais de origem terrestre ou cósmica. A exposição à radiação ionizante de fontes naturais ocorre devido aos elementos radioativos naturais presentes no solo, nas rochas, nos alimentos, na água, no ar e àqueles que surgem da interação dos raios cósmicos com a superfície terrestre (Singh et al., 2005).

Os radionuclídeos primordiais são aqueles que existem na crosta terrestre desde a sua formação, podendo ser integrantes de uma série de decaimentos radiativos, 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) ou decair, de forma isolada para um isótopo estável (^{40}K).

Os radionuclídeos das séries radioativas naturais do urânio e do tório decaem para isótopos estáveis do chumbo e radionuclídeos como o ^{40}K , que não compõem uma série radioativa, decaem diretamente para um núcleo estável (Campos, 1994; Rosa, 1997). Estes radionuclídeos podem aumentar o risco de exposição externa devido às suas emissões gama (Xinwei, 2005).

Dentre as séries radioativas naturais, o maior interesse em termos de proteção radiológica é pela série do ^{232}Th (FIG. 1.1), pois este isótopo representa 100% do tório natural e pela série do ^{238}U (FIG. 1.2), 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 (Campos, 1994; Paes, 2001).

Os estudos para avaliação da exposição do ser humano à radiação natural se intensificaram a partir de meados da década de 70, tendo como um marco significativo, a publicação pela *United National Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation* no início da década de 80 (UNSCEAR, 1982). Entre as possíveis formas de exposição, foi ressaltada 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 duas vias: irradiação externa, devido às radiações gama emitidas pelos radionuclídeos naturais presentes nos materiais de construção e no solo e à fração da radiação cósmica que

consegue atravessar a blindagem representada pela estrutura da residência; e irradiação interna, devido à inalação dos isótopos de radônio e de seus descendentes de meia-vida curta (Rosa, 1997).

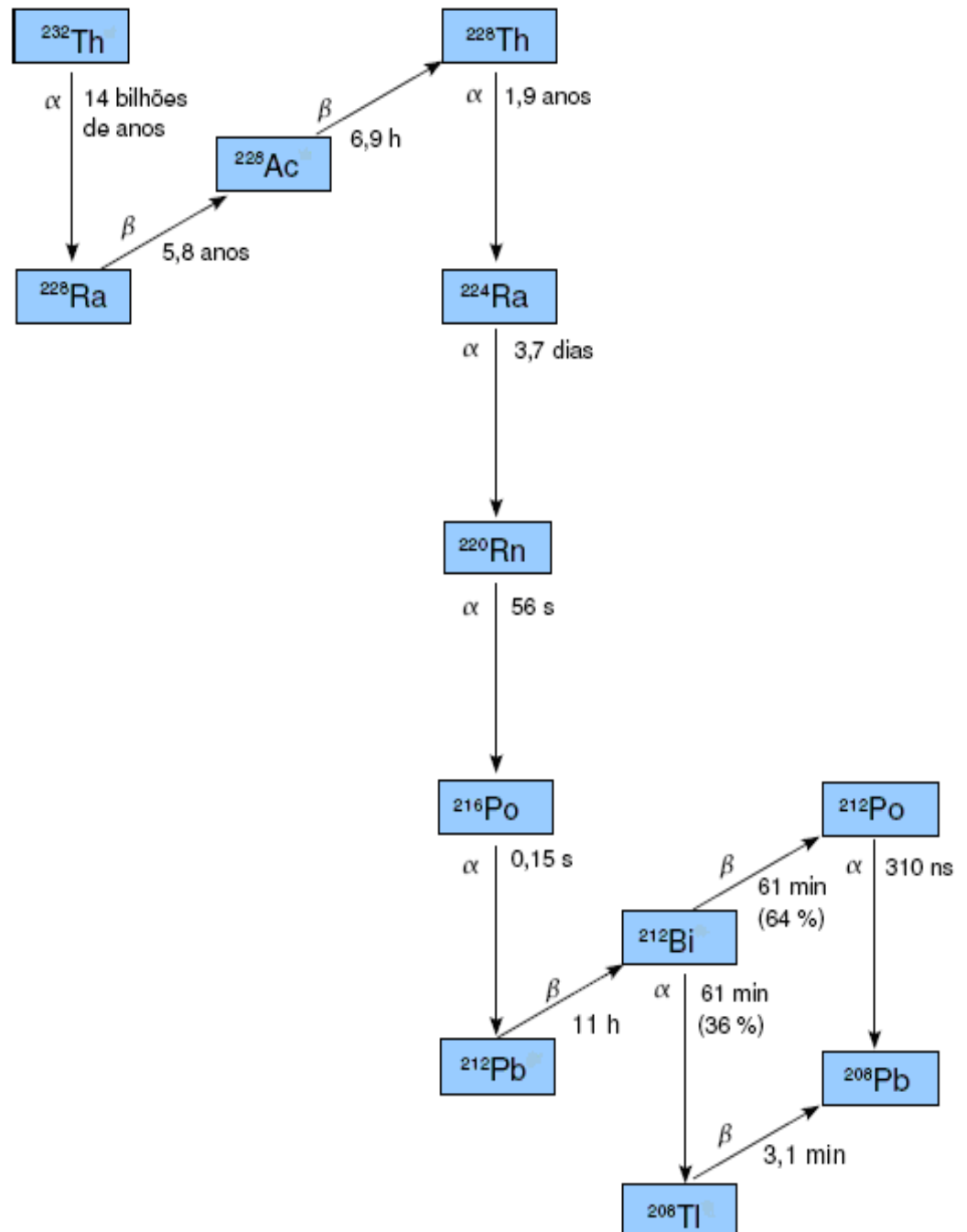


FIGURA 1.1 – Série de decaimento do ^{232}Th . (Umisedo, 2007)

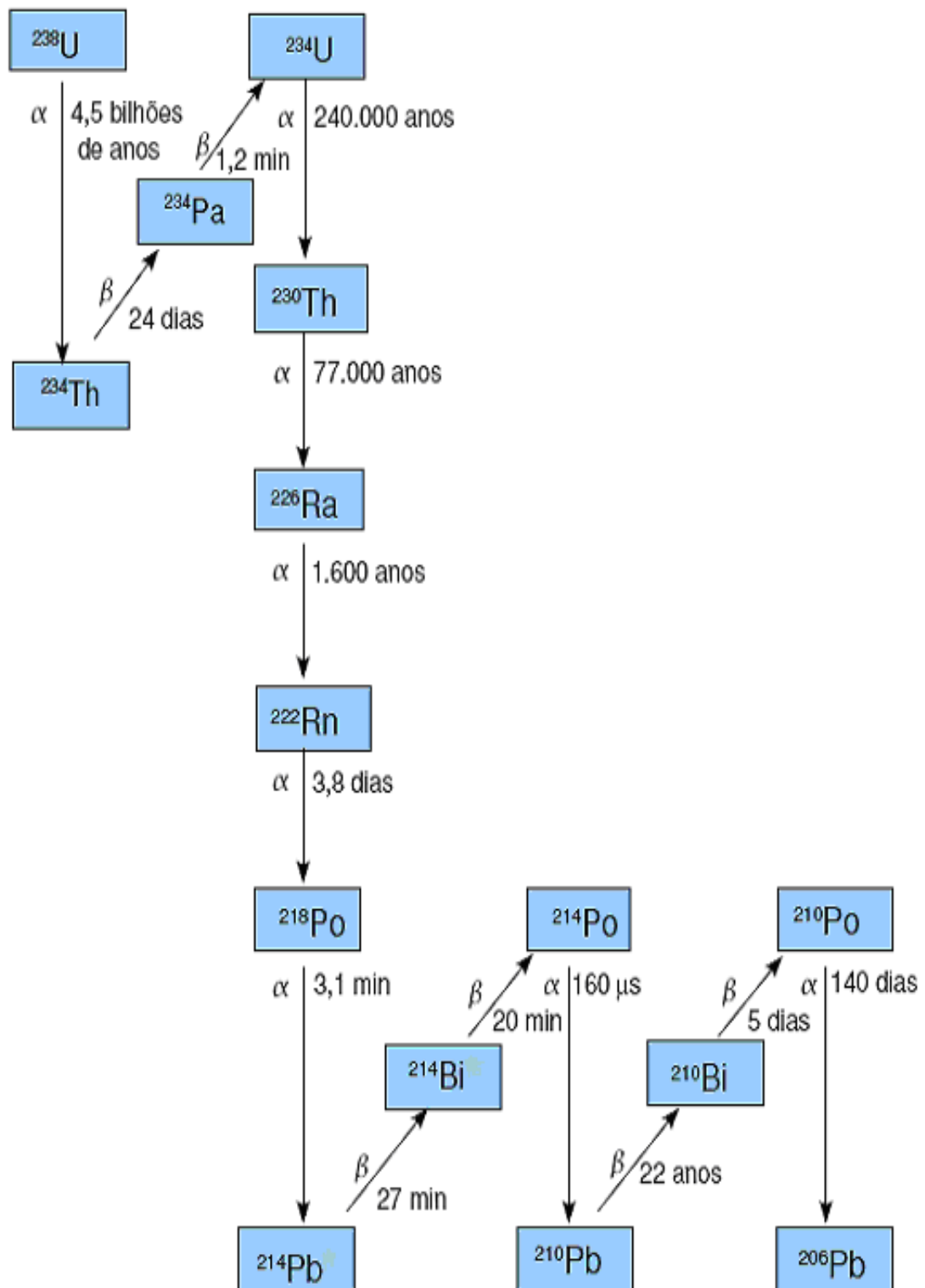


FIGURA 1.2 - Série de decaimento do ^{238}U . (Umisedo, 2007)

A exposição crônica dos seres humanos a baixas doses de radiação ionizante pode causar prejuízos à saúde, que podem surgir entre 5 a 30 anos após a exposição. Os riscos aumentam com a dose e a probabilidade de aparecimentos de danos é maior quando a exposição começa em uma idade menor (Kovler et al., 2002; Kovler, 2008).

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

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 mais detalhados sobre a quantificação de radionuclídeos naturais em diversos materiais têm sido realizados.

Atividades industriais como, por exemplo, a mineração pode alterar o equilíbrio radioativo existente na natureza e contribuir para o aumento do nível dos radionuclídeos naturais em determinados compartimentos do meio ambiente (USEPA, 1992).

Dentre os produtos originários de matérias primas naturais, sobre os quais houve intervenção humana, destaca-se o fosfogesso, subproduto das indústrias de fertilizantes fosfatados obtido das matérias primas apatita e fosforita.

Os materiais que contêm radionuclídeos naturais podem ser classificados como de ocorrência natural, denominados NORM, do inglês, *Naturally Occurring Radioactive Materials*, ou tecnologicamente aumentados, denominados TENORM, do inglês, *Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Material*, dependendo se houve ou não um processamento industrial que levasse ao aumento da concentração dos radionuclídeos no material e ao aumento do nível de radioatividade.

Os radionuclídeos das séries do ^{238}U e do ^{232}Th , além do ^{40}K , encontram-se presentes nos materiais classificados como NORM e TENORM e o seu uso pode causar um incremento significativo na exposição da população, que não pode ser desprezado.

O fosfogesso se enquadra no grupo de materiais classificados como TENORM e o seu uso na construção civil pode aumentar a exposição para certos grupos da população, pois concentra os radionuclídeos naturais em níveis significativos sob o ponto de vista de radioproteção.

A indústria da construção civil utiliza uma grande variedade de materiais, com diferentes origens e finalidades. Grande parte dos materiais de construção é de origem mineral e apresenta concentrações significativas de radionuclídeos de meia-vida longa, tais como urânio, tório e seus descendentes (Rosa, 1997).

Ultimamente vem crescendo na construção civil o uso de rejeitos industriais de beneficiamento de minérios, dentre eles o gesso químico, ou fosfogesso. O fosfogesso é gerado pela indústria de fertilizantes fosfatados na produção de ácido fosfórico por via úmida. O processo consiste no ataque da rocha fosfática beneficiada com ácido sulfúrico concentrado, gerando ácido fosfórico (H_3PO_4) na fase líquida e fosfogesso ($CaSO_4 \cdot 2H_2O$) na fase sólida (Saeia et al., 2005).

Estima-se que são geradas aproximadamente 4,3 toneladas de fosfogesso para cada tonelada de ácido fosfórico produzido (Silva et al., 2001). A produção brasileira deste resíduo chega a 5,5 milhões de toneladas por ano e as principais indústrias geradoras estão localizadas em Rio Grande, extremo sul do estado do Rio Grande do Sul, em Cubatão e Cajati, no estado de São Paulo e em Uberaba, estado de Minas Gerais (Mazzilli et al., 2000).

Atualmente, a maior parte do fosfogesso produzido é armazenada em pilhas ao ar livre, o que exige monitoração, para a verificação de possível contaminação atmosférica, poluição das águas subterrâneas, emanação e exalação de radônio e exposição direta à radiação gama (Santos et al., 2006; Silva et al., 2005).

A preocupação com a reutilização, a reciclagem, e o armazenamento adequado desse resíduo vem crescendo substancialmente nos últimos tempos. Estudos mundiais mostram que de todo o fosfogesso produzido, 14% são reprocessados, 58% são armazenados e 28% são descartados em lagoas de sedimentação (Rutherford et al., 1994; Lysandrou e Pashalidis, 2008). Assim, sendo esta geração inevitável, tornam-se necessários estudos sobre a viabilização do reaproveitamento do fosfogesso produzido pelas indústrias de fertilizantes fosfatados. Essa prática tem, numa primeira avaliação, a vantagem de minimizar os problemas ambientais e econômicos decorrentes da disposição desse resíduo no meio ambiente.

No Brasil, o fosfogesso é considerado um passivo ambiental pela falta de normas específicas que regulamentem o seu uso. Isso implica num aproveitamento de apenas 10% da quantidade total disponível, com a utilização concentrada na indústria de cimento, papel e na agricultura (Saeia, 1998; Damasceno e Lima, 1994). Este resíduo vem sendo também utilizado como substituto do gesso natural na produção de cimento, como

fonte de cálcio e enxofre na agricultura, como condicionador de solos que contêm níveis elevados de sódio.

Em outros países é usado na construção de estradas e como material na construção civil na forma de placas de forros para o teto e placas pré-fabricadas, em razão do baixo custo e da grande disponibilidade do material (UNSCEAR, 1993; Rosa, 1997; Damasceno e Lima, 1994).

Nos últimos anos, alguns grupos de pesquisa no Brasil vêm estudando a possibilidade do aproveitamento do fosfogesso na construção civil. O presente trabalho vem contribuir com esses estudos e faz parte de uma pesquisa ampla, em andamento no Laboratório de Radiometria Ambiental do Centro de Metrologia das Radiações do Ipen. Pretende-se com este estudo avaliar a viabilidade, em termos de proteção radiológica, do uso das placas pré-fabricadas a base de fosfogesso na construção de residências. Para tal fim, foi construída uma residência modelo na cidade de São Carlos, estado de São Paulo, por pesquisadores do Instituto de Física da Universidade de São Paulo - Campus São Carlos e engenheiros da empresa Inovamat, Inovação em Materiais Ltda. A residência foi construída utilizando-se nas paredes e teto placas pré-fabricadas contendo fosfogesso.

Os resultados obtidos indicarão a possibilidade, em termos de proteção radiológica, do uso desse passivo ambiental na construção de moradias, contribuindo para uma forma de construção sustentável, tanto do ponto de vista ambiental, quanto sócio-econômico, ao proporcionar a redução do custo da construção, permitindo a diminuição do déficit habitacional no país.

OBJETIVOS

2.1 Objetivos Gerais

O acúmulo constante de fosfogesso por parte das indústrias de fertilizantes no Brasil, 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 deste material.

Um dos motivos que pode inviabilizar a utilização do fosfogesso é o desconhecimento do impacto radiológico associado ao seu uso, uma vez que as normas para sua utilização são bastante restritivas.

Assim, este trabalho tem como objetivo principal avaliar a viabilidade sob o ponto de vista de proteção radiológica do uso de fosfogesso na fabricação de placas pré-fabricadas para a construção de residências.

Para tanto, avaliou-se a exposição externa para os moradores de residências construídas com estas placas, a partir da determinação da concentração dos radionuclídeos emissores gama presentes nas mesmas. Foram também determinados a atividade equivalente de rádio e os índices de risco externo e interno para complementar a avaliação radiológica.

2.2 Objetivos Específicos

- Determinar as concentrações, por espectrometria gama, dos radionuclídeos das séries naturais do urânio e do tório e ^{40}K nas placas de fosfogesso usadas na residência estudada;
- Estimar a dose efetiva por exposição externa à radiação gama no interior da residência, a partir do conceito de quarto padrão.
- Contribuir para um banco de dados sobre o uso do resíduo fosfogesso como material de construção;

- Fornecer dados técnico–científicos aos órgãos ambientais, contribuindo para a possível normatização técnica sobre o uso das placas pré-fabricadas na construção de residências.

3 FUNDAMENTOS TEÓRICOS

3.1 Os minérios fosfáticos no Brasil

Os depósitos mundiais de rocha fosfática são principalmente de origem ígnea e sedimentar. As rochas de origem sedimentar representam entre 80 a 85% da quantidade total, enquanto as rochas ígneas totalizam os 15 a 20 % restantes (Lima, 1989).

As reservas mundiais de rochas fosfáticas são de aproximadamente 50 bilhões de toneladas, concentradas principalmente em três países, no Marrocos com 21 bilhões de toneladas, que representam 42,3%, na China com 13 bilhões de toneladas, que representam 26% e nos Estados Unidos com 3,4 bilhões de toneladas, que representam 7%, totalizando 75% das reservas. O percentual restante está principalmente distribuído entre a República da África do Sul, a Jordânia, a Austrália, a Tunísia, a Rússia, a Síria, o Egito e o Brasil (DNPM, 2008).

O Brasil conta com reservas de rocha fosfática de 317 milhões de toneladas, que estão localizadas principalmente nos estados de Minas Gerais (68%), Goiás (14%) e São Paulo (6%), (DNPM, 2008). A participação brasileira frente às reservas mundiais de rochas fosfáticas é bastante modesta e estimada em aproximadamente 1% do total (Rosa, 1997; Saueia, 2006).

A maior parte das reservas brasileiras de rochas fosfáticas, cerca de 80%, é de origem ígnea, também conhecida como magmática e está concentrada principalmente nos estados de Minas Gerais, São Paulo e Goiás. As reservas de rochas sedimentares, conhecidas como fosforitas, estão localizadas principalmente no nordeste, em Pernambuco, e no sudeste, em Minas Gerais, tanto as rochas fosfáticas de origem ígnea, quanto sedimentar apresentam teores de pentóxido de fósforo (P_2O_5) bastante variáveis, em média 12% e 17%, respectivamente (Saueia, 2006; DNPM, 1993).

Os principais minérios de fosfato do Brasil são a apatita e a fosforita que ocorrem principalmente no sudeste e no nordeste, respectivamente. A apatita, em geral, contém teores elevados de flúor, ferro e traços de metais pesados, dentre eles urânio e tório (DNPM, 1976). A fosforita, que constitui o principal mineral das rochas sedimentares

brasileiras, geralmente ocorre associada a carbonatos de cálcio e magnésio, óxidos de ferro e alumínio e traços de urânio e tório (Rosa, 1997). Esses minérios apresentam concentrações de urânio variando de 260 a 1860 Bq·kg⁻¹ para a apatita e de 460 a 2640 Bq·kg⁻¹ para a fosforita (Rosa, 1997; Papastefanou, 2001; Makweba e Holm, 1993).

Os minérios de fosfato possuem significativa radioatividade natural originada pelas séries de decaimento do ²³⁸U e ²³²Th, os níveis variam de acordo com o tipo de rocha. As rochas sedimentares possuem altas concentrações de urânio e baixas concentrações de tório, enquanto as rochas de origem ígnea, predominantes no Brasil, contêm baixas concentrações de urânio e altas concentrações de tório e terras raras (Rosa, 1997; Saueia, 1998; Ruterford et al, 1994). Conseqüentemente, a extração e mineração da rocha fosfática, assim como a geração de produtos e subprodutos a partir dela, podem ser fontes de urânio, tório e de radionuclídeos de suas séries de decaimento no meio ambiente.

3.2 Produção de ácido fosfórico para fertilizantes fosfatados

A mineração da rocha fosfática é feita por lavra a céu aberto em quase todo o mundo, grandes escavador móveis retiram a rocha desagregada em grandes blocos que são britados e transportados para o armazenamento. A rocha britada é então moída e por meio de um separador magnético, consegue-se obter a magnetita separada do minério fosfático.

Este minério é concentrado em grande parte pelo processo de flotação, resultando em um concentrado impuro de apatita na fase aquosa, que deverá passar por um espessador e um secador para a obtenção, finalmente de um concentrado de rocha fosfática ou concentrado fosfático com teor de 35% de P₂O₅, termo utilizado comercialmente (Paes, 2001; Rocha, 1983).

Em 2007 a produção mundial de concentrado de rocha fosfática foi de 147.585 milhões de toneladas, superior em 3,6% em relação ao ano anterior. A China foi o maior produtor, com 24% do total, seguida pelos Estados Unidos (21%) e Marrocos (20%). Em sexto lugar e com 4% do total mundial, o Brasil produziu 6.185 milhões de toneladas. O setor foi positivamente favorecido pela boa produção agrícola ocorrida em 2007 (DNPM, 2008).

As principais empresas brasileiras produtoras de fertilizantes fosfatadas são FOSFÉRTIL/ ULTRAFÉRTIL, BUNGE do Brasil e a COPEBRÁS que juntas, respondem por 96% do total de concentrado de rocha fosfática produzido. A produção ocorre principalmente nos estados de Minas Gerais, Goiás e São Paulo (DNPM, 2008).

Becker apresentou a composição química dos concentrados de rocha fosfática de varias procedências (Becker, 1989). Os macro componentes variam nos seguintes intervalos: CaO (29 a 54%); P₂O₅ (24 a 40%); SiO₂ (0,1 a 14%); F (1,3 a 4,1%); CO₂ (0,2 a 7,3%); SO₃ (0 a 3,3%); Al₂O₃ (0,2 a 1,8%); Fe₂O₃ (0,1 a 2,6%); MgO (0 a 2,2%); Na₂O (0,2 a 1,5%).

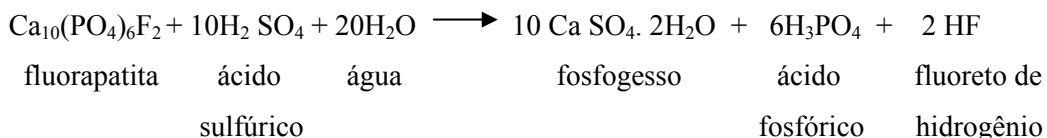
A concentração dos radionuclídeos na rocha concentrada é duas a quatro vezes maiores do que a concentração na rocha bruta (Santos, 2002).

A rocha beneficiada, que é utilizada como matéria-prima para a produção de ácido fosfórico, é geralmente muito insolúvel, fazendo com que seja necessário um ataque químico drástico para a sua obtenção. São conhecidos dois processos de produção de ácido fosfórico a partir da rocha fosfática, o que se dá por via seca e o que ocorre por via úmida.

No processo por via seca, a rocha fosfática, juntamente com o coque e a areia são tratados em forno elétrico a 1300 ° C para a liberação de fósforo elementar na forma de vapor, que é condensado e em seguida, oxidado a P₂O₅, o qual, com água, produz ácido fosfórico de alta pureza, destinado especificamente aos setores farmacêuticos e de alimentos, esse processo apresenta elevado consumo de energia (Paes, 2001; Santos, 2002).

O processo por via úmida é utilizado em mais de 90% das áreas de produção do ácido fosfórico no mundo (Rutherford, 1994). Este processo é mais aplicado na obtenção do ácido fosfórico para a indústria de fertilizantes e fosfato industrial, destinados aos outros setores industriais, onde a presença de impurezas pode ser aceita em níveis superiores aos da indústria farmacêutica e alimentícia. O consumo médio de energia nesse processo é cinco vezes menor que o por via seca (Santos, 2002).

No processamento por via úmida, a rocha fosfática concentrada é tratada com ácido sulfúrico e água, produzindo sulfato de cálcio hidratado (denominado fosfogesso), ácido fosfórico e fluoreto de hidrogênio, conforme demonstrado na reação:



Dependendo das condições da reação pode-se obter o fosfogesso hemihidratado (CaSO₄ · ½ H₂O) ou bihidratado (CaSO₄ · 2H₂O) (Paes, 2001). Este grau de hidratação pode ser controlado pela temperatura ou pela concentração do ácido sulfúrico (Saeuia, 2006).

As indústrias nacionais normalmente produzem o sulfato de cálcio na forma bihidratada, por economia e facilidade de adaptação do processo industrial a uma gama bastante grande de teores de P_2O_5 na rocha fosfática (Rosa, 1997).

O processo bihidratado é largamente utilizado em todo o mundo e atualmente o mais empregado no Brasil, apresenta um custo relativamente baixo, mas ao mesmo tempo é o processo em que o fosfogesso é obtido com maiores teores de impurezas. O processo hemihidratado produz 40 a 52% de P_2O_5 , bastante superior quando comparado aos 28 a 30 % daquele produzido pelo processo bihidratado (Chang e Mantell, 1990). No entanto, os custos do processo hemihidratado são mais elevados, pois o produto final é mais puro e o gasto de energia é maior.

Durante a reação da rocha fosfática com ácido sulfúrico, o equilíbrio radioativo que normalmente existe entre os radionuclídeos das series de ^{238}U e ^{232}Th e seus produtos de decaimentos é quebrado e os radionuclídeos naturais contidos na rocha são separados de acordo a sua solubilidade e demais características químicas. O urânio e tório são incorporados ao ácido fosfórico, enquanto os isótopos de ^{226}Ra , ^{210}Pb e ^{210}Po permanecem no fosfogesso (Saueia et al,2005; Silva et al, 2001). Na FIG. 3.1, é apresentado o fluxograma simplificado do processo industrial para a obtenção do ácido fosfórico.

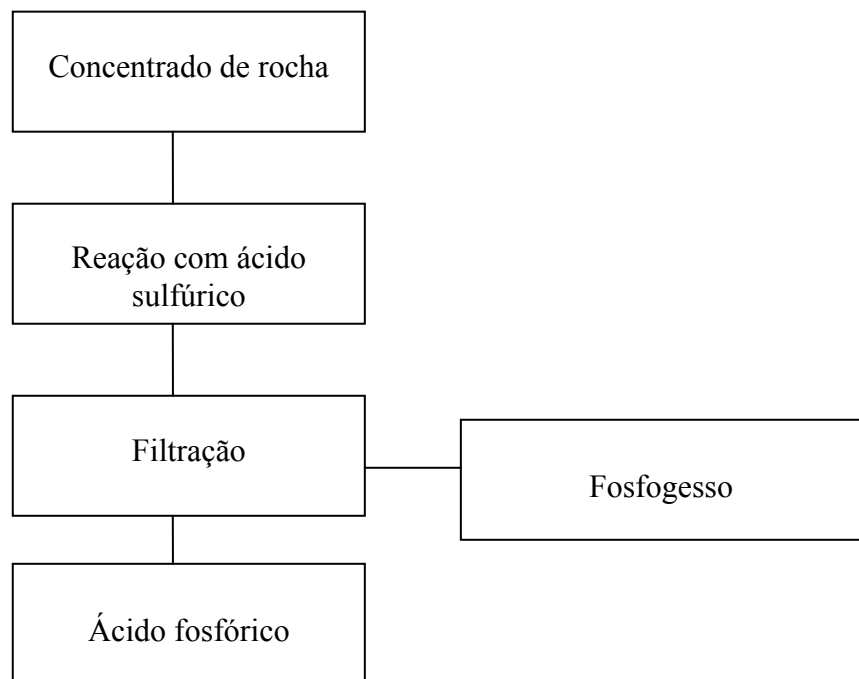


FIGURA 3.1- Fluxograma simplificado do processo industrial para a obtenção do ácido fosfórico (Cekinski, 1990).

Sabe-se que o ácido fosfórico é o principal insumo para a produção de diversos tipos de fertilizantes fosfatados utilizados na agricultura. Estes fertilizantes contribuem com um aumento de produtividade de 30 a 50%, quando corretamente aplicados. A gama de consumidores engloba desde o pequeno produtor rural até grandes empresas interessadas em produção agrícola volumosa, apontando para um crescimento do uso do produto, pois o Brasil apresenta grande disponibilidade de terras cultiváveis e é promissor em relação à agroindústria.

3.3 O fosfogesso

O fosfogesso é um subproduto da indústria de fertilizantes fosfatados gerado durante a produção do ácido fosfórico pela reação do concentrado de rocha fosfática com ácido sulfúrico (processo por via úmida). No Brasil, por razões econômicas e de adaptação do processo industrial, este é o processo mais utilizado na produção de ácido fosfórico.

Também conhecido como gesso industrial ou gesso químico o fosfogesso é um resíduo formado principalmente por sulfato de cálcio hidratado ($\text{CaSO}_4 \cdot n\text{H}_2\text{O}$), onde n pode ser igual a $\frac{1}{2}$ ou 2, estes contêm 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 fosfogesso tem uma propriedade física similar ao gesso natural. A densidade da partícula varia entre 2,27 e 2,40 g cm^{-3} (Senes, 1987).

As condições do processo de produção do ácido fosfórico têm influência na morfologia do cristal do fosfogesso, o que explica a produção de cristais de formas diferentes. O tipo de rocha fosfática, o tamanho das partículas da rocha fosfática, a concentração do ácido fosfórico, o conteúdo de sólidos na pasta de gesso, o excesso de ácido sulfúrico na pasta de gesso, as impurezas na rocha fosfática, a temperatura e a reação do sistema (razão volume- alimentação, agitação e recirculação) são fatores que controlam a forma e o tamanho dos cristais de fosfogesso (Becker, 1989).

As características químicas e mineralógicas do fosfogesso dependem da natureza do minério fosfático, do tipo do processo por via úmida utilizado, da eficiência da operação da planta, da idade da pilha e de alguns contaminantes que possam ser introduzidos no fosfogesso na área de produção (Arman e Seals, 1990).

O fosfogesso é basicamente composto de cálcio e sulfato (Berish, 1990), é ácido devido ao resíduo de ácido fosfórico, ácido sulfúrico e ácido fluorídrico contido dentro da porosidade, mas pode alcançar a neutralidade se for lavado ou lixiviado com

água. No fosfogesso há muitas impurezas presentes, como quartzo, fluoretos, fosfatos, matéria orgânica e minerais de alumínio e ferro (Rutherford, 1994).

A composição macroscópica do fosfogesso, em sua maioria, varia de acordo com o tipo de processo de via úmida utilizado na obtenção do ácido fosfórico. Na TAB. 3.1 apresenta-se a composição macroscópica típica do fosfogesso produzido por meio de diferentes processos por via úmida a partir da rocha fosfática sedimentar.

TABELA 3.1 - Composição de macro constituintes típicos para o fosfogesso produzido em diferentes processos (Rutherford, 1994).

Componente	Bihidratado (%)	Hemihidratado (%)
CaO	32,5	36,9
SO ₃	44,0	50,3
P ₂ O ₅	0,65	1,50
F	1,2	0,8
SiO ₂	0,5	0,7
Fe ₂ O ₃	0,1	0,1
Al ₂ O ₃	0,1	0,3
MgO	0,1	—
H ₂ O	19,0	9,0

3.4 Possíveis aplicações do fosfogesso

A grande produção de fosfogesso nos últimos anos pelas indústrias de fertilizantes no Brasil e a necessidade de áreas cada vez maiores para o seu armazenamento impulsionaram o interesse na reciclagem desse resíduo industrial.

Essa prática tem, numa primeira avaliação, a vantagem adicional de minimizar os problemas ambientais e econômicos decorrentes da deposição desse resíduo na biosfera, porém uma análise da viabilidade dessa conduta se faz necessária. Assim, uma avaliação das características radiológicas do fosfogesso deve fazer parte de qualquer proposta de uso extensivo deste resíduo.

No Brasil, até o presente momento, não há nenhuma norma específica que regulamente a utilização do fosfogesso, portanto, a maior parte desse resíduo fica armazenada em grandes pilhas ao ar livre, no próprio local de produção e apenas uma pequena parte é reutilizada.

As principais aplicações do fosfogesso estão na agricultura, na produção de cimento e na construção civil, que é objeto de estudo deste trabalho.

3.4.1 Aplicação na agricultura

Atualmente o maior consumidor nacional do fosfogesso é a agricultura, dados do ano de 2004 (Aquino, 2005) mostram um consumo de 4,5 milhões de toneladas por ano de fosfogesso aplicados em diversas regiões do país.

Na agricultura, o fosfogesso é chamado de gesso agrícola e é comumente utilizado como fonte de nutrientes para plantas e em vários processos físicos e químicos no perfil do solo, como condicionador e melhorador de solos sódicos e solos argilosos, além disso, quando aplicado na superfície do solo é dissolvido pela chuva e ajuda na infiltração da água, evitando o endurecimento superficial e favorecendo a germinação das sementes (Nuernberg et al, 2005).

O fosfogesso é uma grande fonte de nutrientes, tais como cálcio e enxofre. O cálcio desempenha papel fundamental como condicionador do ambiente radicular, cujos efeitos são observados, tanto no crescimento das raízes, quanto na resistência de frutos em pós-colheita durante a armazenagem (Nuernberg et al, 2005). Já o enxofre é responsável por funções vitais nas plantas, pois é componente dos aminoácidos, participando do metabolismo e está ligado às vitaminas presentes nas plantas (Nuernberg et al, 2005).

Devem-se salientar também as quantidades substanciais de fósforo (P) presentes no fosfogesso, resquício do processo de fabricação de fertilizantes fosfatados, que podem ser benéficas às plantas quando aplicadas em proporções ideais (Sumner, 1992).

O fosfogesso pode também ser usado para reduzir a saturação do alumínio tóxico e como fonte de cálcio para alguns subsolos (Sumner, 1992), permitindo um maior aprofundamento das raízes das plantas, resultando num melhor aproveitamento da água e dos nutrientes.

Nos Estados Unidos, a utilização do fosfogesso na agricultura é limitada devido às impurezas e radionuclídeos contidos neste resíduo, especialmente o ^{226}Ra . A “U.S.

Environmental Protection Agency” (USEPA, 1992), regulamenta que o fosfogesso deve ser empilhado ou colocado em minas abertas e que pode ser utilizado na agricultura apenas se a concentração de ^{226}Ra for inferior a 370 Bq kg^{-1} .

No Brasil não existe ainda uma regulamentação específica sobre essa aplicação, a conduta é baseada nas recomendações internacionais e em portaria do Ministério da Agricultura.

3.4.2 Aplicação na produção de cimento

O uso comercial do fosfogesso ou gesso químico no Brasil está principalmente relacionado à produção de cimento. O consumo de fosfogesso por parte das indústrias cimenteiras nacionais chega a 1,7 milhões de toneladas por ano (Aquino, 2005).

Para ser aplicado na indústria cimenteira o fosfogesso necessita de um índice de acidez superior a 4 e um teor de ácido fosfórico menor que 0,8%. Um baixo pH pode contribuir para a despassivação de armaduras em estruturas de concreto armado e redução da resistência inicial dos concretos. Já o alto teor de ácido fosfórico contribui para o aumento do tempo de pega dos cimentos produzidos (Canut, 2006).

A aplicação do fosfogesso como aditivo ao clínquer na produção de cimento Portland, em substituição ao gesso natural, se constitui em alternativa interessante. Nesse caso, o sulfato de cálcio atua como agente controlador do tempo de pega do cimento sendo adicionado em teor de até 5%, segundo a especificação brasileira. Embora viável, o uso do fosfogesso depende da localização das indústrias de fertilizantes em relação a das cimenteiras e atualmente são utilizados nessa aplicação apenas 10% da quantidade total disponível no Brasil (Mazzilli et al, 2000).

Sabe-se que algumas impurezas encontradas no fosfogesso podem também alterar as propriedades dos concretos e argamassas produzidos pelo cimento ativado com fosfogesso, sobretudo na redução na resistência inicial e no retardo do tempo de pega. (Smadi et al, 1999).

3.4.3 Aplicação na construção civil

O fosfogesso, devido à semelhança de suas propriedades físicas e químicas com o gesso natural (gipsita), pode vir a ser substituto deste na fabricação de placas para forros, painéis, divisórias, blocos pré-moldados, pisos e revestimentos. O gesso natural vem sendo

usado como material de construção civil há milênios, desde a construção das pirâmides do Egito (Hincapie e Cincotto, 1997).

Em diversos países como o Japão, devido à escassez de matéria-prima gipsita, o fosfogesso é amplamente utilizado como gesso natural em materiais de construção (Canut, 2006).

A reserva brasileira de gipsita ou gesso é de 400 milhões de toneladas, conforme dados do Anuário Mineral Brasileiro 1990 (DNPM, 1990). As jazidas de gipsita ocorrem predominantemente nas regiões Norte e Nordeste, sendo esta última responsável por aproximadamente 94 % da produção nacional.

Atualmente, o gesso é utilizado na construção civil como aglomerante inorgânico de endurecimento rápido. Essa propriedade permite a produção de componentes, como blocos e placas, sem tratamento para a aceleração do endurecimento. Esses componentes, por sua vez, devido às propriedades específicas do gesso, apresentam características de isolamento térmico, acústica e de proteção ao fogo. Além disso, a pasta de gesso pode ser utilizada em acabamentos com excelentes resultados.

Deve-se considerar que o setor da construção civil é indiretamente reconhecido como um dos responsáveis pelo impacto ambiental. Tal fato se dá, principalmente pela grande quantidade de recursos naturais explorados e que são transformados e beneficiados como material a ser empregue na construção civil, como é o caso das reservas naturais de gesso.

Portanto, tem havido um grande interesse em substituir este material pelo fosfogesso na indústria da construção civil, tanto como material de vedação, por exemplo, placas pré-fabricadas 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 material, beneficiando grande parte da população mais pobre que vive em condições precárias.

O uso de fosfogesso em base e sub-base de pavimentos urbanos e rodoviários já é uma realidade em alguns países. Nos Estados Unidos, trechos de rodovias foram construídos utilizando o resíduo 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 5 anos após a construção de um trecho da malha viária mostraram que o pavimento sob tráfego intenso ainda apresenta boa capacidade de

suporte, nesse caso foram utilizadas na base do pavimento misturas de fosfogesso e cimentos nas proporções de 90% e 10% respectivamente (Chang e Mantell, 1990).

3.5 Impacto ambiental do fosfogesso

O descarte final do fosfogesso pode ser feito de duas maneiras: disposição em pilhas em áreas próximas às indústrias ou por meio de bombeamento para lagoas (Freitas, 1992).

A disposição em áreas próximas às indústrias é a forma mais comum de descarte do fosfogesso e é freqüentemente adotada em quase todo o mundo. Nesta situação existem duas alternativas, “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, e depois de seco é acumulado em pilhas ao ar livre em áreas especialmente destinadas a essa finalidade (Freitas, 1992).

O fosfogesso e as soluções utilizadas no processo de fabricação do ácido fosfórico têm o potencial de poluir o meio ambiente, não só do ponto de vista radiológico, mas também químico (Hull e Burnett, 1996). 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 anions lábeis, acidez, elementos traços e radionuclídeos, a exalação de radônio, a inalação de poeira e a exposição direta à radiação gama.

Nas FIG. 3.4 e 3.5 são apresentadas as formas de estocagem de fosfogesso utilizadas pela empresas de fertilizantes brasileiras.



FIGURA 3.4 - Pilha de fosfogesso de uma indústria brasileira de fertilizantes.



FIGURA 3.5 - Modo de armazenamento do fosfogesso

Outros problemas decorrentes do armazenamento do fosfogesso incluem o escoamento na superfície, a erosão e a instabilidade das pilhas. Embora vários autores tenham proposto diferentes métodos para a remoção dos radionuclídeos presentes no fosfogesso, esses procedimentos se mostraram inviáveis do ponto de vista econômico (UNSCEAR, 1993).

Além dos problemas ambientais decorrentes do armazenamento, existe o risco de contaminação interna e de exposição 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.

Portanto, o uso do fosfogesso como material de construção, pode atender aos requisitos citados acima.

3.6 Caracterização radioquímica dos radionuclídeos naturais: potássio, urânio, tório e rádio

Os radionuclídeos das séries naturais do ^{238}U , ^{232}Th e o ^{40}K estão presentes na crosta terrestre e, portanto, encontram-se nas rochas fosfáticas, matéria prima do fosfogesso. Por suas características físicas e químicas podem causar algum dano radiológico ao homem, já que se pretende usar placas pré-fabricadas de fosfogesso, como material de construção, sendo estes fontes de exposição externa nos moradores, por isso o interesse na descrição destes radionuclídeos.

3.6.1 Potássio

O potássio é encontrado em níveis elevados na maioria dos solos e rochas. Um dos radioisótopos do potássio mais importante é o ^{40}K que tem uma abundância isotópica de 0,0119 % e meia vida de $1,3 \times 10^9$ anos. Quando esse radionuclídeo decai, pode emitir uma partícula β^- com energia de 1,31 MeV e se transformar no elemento estável ^{40}Ca , essa forma de decaimento ocorre com 89,3% de probabilidade. A outra forma desse núcleo decair é por captura eletrônica com 10,7% de probabilidade, seguido da emissão de um fóton da radiação gama com energia de 1,46 MeV, formando como produto de decaimento o elemento estável ^{40}Ar .

3.6.2 Urânio

O urânio é um dos elementos mais pesados encontrado na natureza, possui vários isótopos, os de número de massa 235 e 238 encabeçam duas séries de decaimento compostas de vários isótopos radioativos, que decaem sucessivamente para isótopos de outros elementos também radioativos constituindo uma série de decaimento, até chegarem a um isótopo estável de chumbo.

O ^{238}U representa 99,98% do urânio natural e está presente em toda a crosta terrestre, na forma de minérios de urânio e em quantidades traço em diversos tipos de rochas e minerais. Já o ^{235}U apresenta abundância isotópica de apenas 0,72% e não será considerado neste trabalho.

O urânio ocorre na maioria das rochas e solos e sua concentração nas rochas fosfáticas pode chegar a 120 ppm. Essa concentração relativamente alta reflete-se na concentração encontrada nos fertilizantes fosfatados comerciais (Eisenbud, 1987).

3.6.3 Tório

O tório é encontrado em várias rochas e solos com 100% de ^{232}Th em concentrações que variam de 8,1 a 33 ppm para as rochas ígneas (Umisedo, 2007).

O ^{232}Th decai por emissão de partícula alfa para o ^{228}Ra e encabeça uma série de decaimentos sucessivos até que seja formado o elemento estável ^{208}Pb . A meia-vida do ^{232}Th é de aproximadamente 14 bilhões de anos

Outros dois isótopos de tório são encontrados na natureza, o ^{230}Th e o ^{228}Th , respectivamente com meias-vidas de 75.400 anos e 1,9 anos (USEPA, 2008).

3.6.4 Radio

O ^{226}Ra é a maior fonte de radioatividade no fosfogesso. Este radionuclídeo é formado pelo decaimento alfa do ^{230}Th na série de decaimento do ^{238}U e possui meia-vida de 1620 anos. Esse isótopo do rádio tem como descendente direto o ^{222}Rn , um gás inerte que se difunde com grande facilidade no ar e que quando é inalado, pode prejudicar a saúde dos indivíduos, pois produz filhos radioativos sólidos que ficam retidos no sistema respiratório.

O ^{228}Ra é o segundo isótopo de rádio mais abundante, membro da série do ^{232}Th e ao contrário do ^{226}Ra que se concentra no fosfogesso, não é normalmente encontrado nesse material, especialmente quando o fosfogesso é proveniente de rochas ígneas, como é o caso mais comum no Brasil.

Alguns autores (May e Sweeney, 1984; Beretka e Mathew, 1985 e Moisset, 1990) mostraram que a maior parte do ^{226}Ra encontrado no fosfogesso está associada à finura das partículas de fosfogesso. O ^{226}Ra está associado à granulometria das partículas no processo hemihidratado, que são mais finas que àquelas obtidas no processo bihidratado.

4 METODOLOGIA

O conhecimento dos níveis de radiação no interior de residências é um aspecto importante na avaliação das exposições a que o homem está submetido, uma vez que muitos indivíduos passam grande parte de seu tempo dentro delas. Essa exposição é muito variável e depende das características do local onde se situa a construção, dos materiais de construção utilizados, das características da construção e dos hábitos de ocupação. As principais vias de exposição à radiação natural no interior de residências são a exposição externa à radiação gama proveniente dos materiais de construção e a exposição interna oriunda da inalação de radônio que emana do solo e dos materiais de construção. Neste trabalho foi avaliada a exposição externa em um quarto padrão de uma residência construída com placas pré-fabricadas à base de fosfogesso devida à radiação gama emitida pelos radionuclídeos naturais presentes nas placas.

Os principais radionuclídeos que contribuem para os níveis de radiação gama em uma residência são o ^{40}K e os isótopos emissores gama que compõem as séries naturais do ^{238}U e do ^{232}Th . Para a avaliação realizada neste trabalho foram determinadas, por espectrometria gama, as concentrações dos radionuclídeos naturais presentes nas placas pré-fabricadas, especificamente, ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K e estimada a dose para os indivíduos que ocuparão a residência, por meio de um modelo dosimétrico obtido na literatura.

4.1 Espectrometria gama: princípios do método

A espectrometria gama é uma técnica não destrutiva, baseada na interação da radiação emitida pela amostra com um detector e 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.

Nas determinações por espectrometria gama, a auto-absorção da radiação pela amostra nem sempre é um problema tão crítico, pois 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 fazer-se a correção para auto-absorção na determinação da concentração do elemento em questão.

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; Gilsen, 1998).

Para quantificar um determinado radionuclídeo, ou seja, determinar sua atividade específica ou concentração de atividade, citada neste trabalho apenas como concentração, utiliza-se o cálculo da área sob o pico de interesse, que é convertida em concentração por meio da eficiência de contagem associada àquele pico, conforme a equação 4.1.

$$C = \frac{\text{Área} - BG}{m.t.\varepsilon.I\gamma} \quad (4.1)$$

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})

$I\gamma$ - intensidade absoluta da transição gama considerada

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.

4.2 Fator de auto-absorção

A espectrometria gama é uma técnica que pode apresentar problemas quando são analisados radionuclídeos que emitem radiação gama de baixa energia, como por exemplo, o ^{210}Pb ($E = 46,5 \text{ keV}$). Neste caso os fótons de baixa energia e pequeno poder de penetração interagem com a própria amostra antes de atingirem o detector, acarretando a determinação de uma concentração menor que a real.

A correção da auto-absorção consiste na determinação da quantidade de radiação atenuada pela amostra e pode ser dificultada pelo fato do coeficiente de atenuação, para a energia de interesse, ser fortemente dependente da composição da amostra. Essa correção pode ser feita a partir do conhecimento exato da composição da amostra ou pelo uso de modelos de correção, como o proposto por Cutshall et al.(1983).

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, posteriormente executa-se o mesmo procedimento para um recipiente da mesma geometria que o da amostra, mas contendo água.

O fator de auto-absorção pode então ser calculado por meio da equação 4.2, adaptada do modelo de Cutshall e colaboradores (Nisti, 2008):

$$f = \frac{\ln\left(\frac{A_{\text{amostra}}}{A_{\text{água}}}\right)}{\left(\frac{A_{\text{amostra}}}{A_{\text{água}}} - 1\right)} \quad (4.2)$$

Onde:

A_{amostra} - área do pico da transição de 46,5 keV relativa à amostra

$A_{\text{água}}$ - área do pico da transição de 46,5 keV relativa à amostra de água

Na equação apresentada, A_{amostra} e $A_{\text{água}}$ 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.

4.3 Dose efetiva por exposição externa

Todos os materiais de construção contêm quantidades variadas de radionuclídeos naturais. Os materiais derivados da rocha e do solo da crosta terrestre contêm principalmente radionuclídeos naturais da série do ^{238}U (frequentemente representado pelo ^{226}Ra), da séries do ^{232}Th e ^{40}K (Hizem et al, 2005).

Os subprodutos indústrias como o fosfogesso, geralmente contêm uma concentração significativa de radionuclídeos naturais e seu uso em residências como materiais de construção, pode provocar um incremento na dose de radiação recebida pelos moradores (Ackers et al, 1984).

Nas últimas décadas, tem crescido o interesse no estudo da radioatividade em vários materiais de construção. Os resultados foram usados para avaliar os possíveis riscos radiológicos à saúde humana e para desenvolver padrões e diretrizes para o uso destes materiais convencionais (Campos e Pecequilo, 2003; Turhan et al, 2008).

Cabe mencionar que a residência em estudo foi construída com placas pré-fabricada à base de fosfogesso, material que pode conter quantidades consideráveis de radionuclídeos naturais e, portanto, torna-se muito importante avaliar a dose no interior dessa habitação.

Numa residência, o cálculo da dose efetiva anual depende da concentração dos radionuclídeos presentes nos materiais de construção, da forma e do tamanho da residência, do fator de ocupação e do fator de conversão de dose (Ademola e Farai, 2005; Turhan et al, 2008).

A avaliação da dose efetiva anual no interior da residência estudada neste trabalho foi feita de acordo com a metodologia descrita por Turhan e Gündüz (2008) e Turhan et al.(2008), a partir do conceito de quarto padrão, para a obtenção dos parâmetros utilizados na estimativa da dose.

A metodologia citada prevê o conhecimento da taxa de dose absorvida no ar provocada pelos radionuclídeos emissores gama presentes nas placas. Essa taxa de dose absorvida foi calculada por meio da equação 4.3 (Turhan e Gündüz, 2008; Turhan et al, 2008).

$$D_R = (q_{Ra} \cdot C_{Ra} + q_{Th} \cdot C_{Th} + q_K \cdot C_K) \cdot m_i \quad (4.3)$$

Onde:

D_R - taxa de dose absorvida no ar (nGy h^{-1})

q_{Ra} , q_{Th} e q_K - fatores de conversão da concentração de ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nas placas de fosfogesso em dose absorvida no ar (nGy h^{-1} por Bg kg^{-1})

C_{Ra} , C_{Th} e C_K - Concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nas placas de fosfogesso (Bq kg^{-1})

m_i - fração porcentual de massa do material de construção do tipo i no quarto padrão

Na equação 4.3, para as concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nas placas pré-fabricadas de fosfogesso foram utilizados os valores obtidos experimentalmente no presente trabalho. Os fatores de conversão da concentração dos radionuclídeos presentes nas placas dose absorvida no ar (q_{Ra} , q_{Th} e q_K) variam de acordo com as dimensões, densidade do material e espessura das paredes dos quartos em estudo, os fatores utilizados neste trabalho foram calculados por (Máduar et al, 2008).

A dose efetiva anual devido à exposição externa foi calculada por meio da equação 4.4 (Turhan e Gündüz, 2008; Turhan et al, 2008), a partir das informações da taxa de dose absorvida, do fator de ocupação, da fração do material no local de estudo e do fator de conversão de dose absorvida no ar para dose efetiva.

$$E = D_R \cdot T \cdot f \cdot \text{FCD} \cdot 10^{-6} \quad (4.4)$$

Onde:

E - dose efetiva anual devido à exposição externa (mSv a^{-1})

D_R - taxa de dose absorvida no ar (nGy h^{-1})

T - 8760 h a^{-1}

f - fator de ocupação na residência

FCD - fator de conversão de dose absorvida no ar para dose efetiva (Sv Gy^{-1})

Na equação (4.4), para a taxa de dose absorvida foi utilizado o resultado da equação 4.3. Para o fator de ocupação interna, foi utilizado o valor de 0,8, supondo que os indivíduos gastam 80% de seu tempo no interior das residências e para o fator de conversão de dose absorvida no ar para dose efetiva recebida pelos moradores foi utilizado o valor de 0,7, ambos sugeridos pelo UNSCEAR (1993, 2000).

4.4 Determinação da atividade equivalente de rádio (Ra_{eq})

A atividade equivalente de rádio é um índice bastante utilizado como padrão de segurança na avaliação da exposição da população em residências. Por meio dele são comparadas as concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nos materiais utilizados na construção, levando-se em conta o risco associado a cada um deles (Saeia et al, 2005; Venturini et al, 1997). Este índice é baseado na estimativa de que 1 Bq kg⁻¹ de ^{226}Ra , 0,7 Bq kg⁻¹ de ^{232}Th e 13 Bq kg⁻¹ de ^{40}K produzem a mesma taxa de dose devido à irradiação gama. Este índice foi calculado de acordo com a equação 4.5 (Beretka e Mathew, 1985).

$$Ra_{eq} = C_{Ra} + 1,43. C_{Th} + 0,07. C_K \quad (4.5)$$

Onde:

C_{Ra} , C_{Th} e C_K - concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nas placas de fosfogesso (Bq kg⁻¹).

O uso de materiais de construção cuja atividade equivalente de rádio (Ra_{eq}) excede a 370 Bq kg⁻¹ é desaconselhado, a fim de evitar riscos por exposição externa (Ademola, 2007; UNSCEAR, 1982).

4.5 Determinação do índice de risco externo (H_{ex})

Outro índice a ser considerado na avaliação da exposição provocada por materiais de construção é o índice de risco externo (H_{ex}). O critério utilizado para este modelo pondera as concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K no material e considera que a dose anual por exposição externa deve ser limitada a 1,5 mSv a⁻¹ (Kumar et al, 2003).

O índice de risco externo (H_{ex}) foi calculado a partir da equação 4.6.

$$H_{ex} = \frac{C_{Ra}}{370} + \frac{C_{Th}}{259} + \frac{C_K}{4810} \quad (4.6)$$

onde:

C_{Ra} , C_{Th} , C_K - concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nas placas de fosfogesso (Bq kg⁻¹).

O valor máximo do índice de risco externo (H_{ex}) deve ser menor que a unidade, para que o risco de exposição à radiação externa seja considerado desprezível (Xinwei,

2005; Ademola, 2007). O modelo para a determinação do índice H_{ex} é bastante conservador, baseado em paredes de espessura ilimitada sem janelas e portas.

4.6 Determinação do índice de risco interno (H_{in})

Além do índice de risco por exposição externa devido à presença de emissores gama nos materiais de construção, existe o risco ao sistema respiratório devido à inalação do radônio e seus produtos de decaimentos de meia-vida curta. O risco de exposição interna pela inalação do radônio e seus produtos de decaimento é quantificado pelo índice de risco interno (H_{in}), obtido a partir da equação 4.7.

$$H_{in} = \frac{C_{Ra}}{185} + \frac{C_{Th}}{259} + \frac{C_K}{4810} \quad (4.7)$$

onde:

C_{Ra} , C_{Th} , C_K - concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nas placas de fosfogesso (Bq kg^{-1})

Para o uso seguro de um material na construção de residências, o índice de risco interno (H_{in}), também deve ser menor que a unidade (Xinwei, 2005; Ahmed, 2005).

5 PARTE EXPERIMENTAL

5.1 Descrição da residência e quarto padrão estudados

A residência em estudo encontra-se localizada na Rua Alberto Lanzoni, 696 - Parque Santa Felícia Jardim, cidade de São Carlos, estado de São Paulo- Brasil. 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, conta com vários cômodos, cozinha, dois banheiros, dois dormitórios e sala, o teto e as paredes são construídos com placas pré-fabricadas à base de fosfogesso e o piso é de concreto. A empresa disponibilizou para o Laboratório de Radiometria Ambiental do Ipen um cômodo (considerado como o quarto padrão) para o desenvolvimento de alguns trabalhos de pesquisa relacionados à avaliação dos níveis de radioatividade, sendo um deles o presente trabalho.

As paredes das residências são compostas por dois conjuntos de placas com dimensões de 40x40 cm (FIG. 5.1), espessura de 17 mm, espaçadas por 11 cm, espessuras dos perfis de aço aos quais as placas são fixadas. 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.

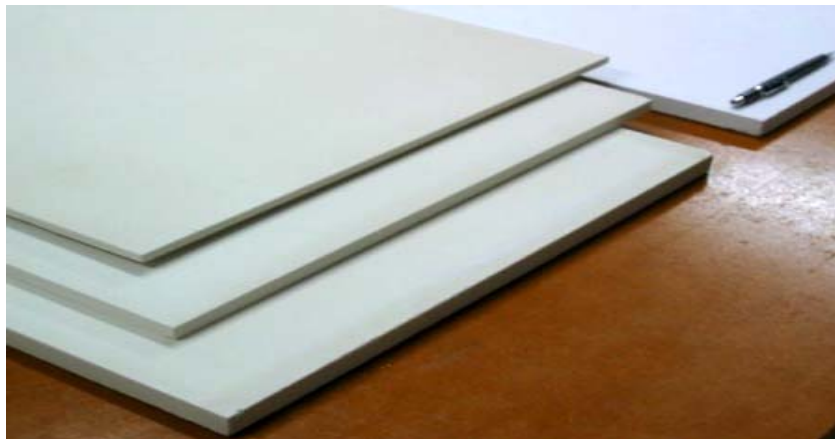


FIGURA 5.1 – Placas pré-fabricadas à base de fosfogesso.

Observam-se nas FIG. 5.2 e 5.3 as vistas externa e interna da residência construída com as placas pré-fabricadas na cidade de São Carlos.



FIGURA 5.2 - Vista externa da residência construída com placas pré-fabricadas de fosfogesso.



FIGURA 5.3- Vista interna do quarto padrão estudado.

5.2 Fabricação e características das placas de fosfogesso

Para a fabricação das placas a empresa recebe o fosfogesso na forma bihidratada que passa por um tratamento térmico ao redor de 160°C, esse procedimento transforma o fosfogesso da forma bihidratada para a hemihidratada. Esse pó de fosfogesso hemihidratado é umedecido com uma solução de ácido cítrico ao 1%, vertido num molde e é compactado na forma de placas a uma pressão de 2 MPa ou 20atm.

A relação água / fosfogesso é igual a 0,17 e essa água acidulada é responsável pela hidratação de cerca de 90% do fosfogesso, fazendo-o retornar à forma bihidratada, com alta resistência mecânica pela adição da mínima quantidade de água e da aplicação da compactação. Assim, as placas pré-fabricadas são compostas de fosfogesso hemihidratado e bihidratado, aparentemente de cor branco cinza. O processo de fabricação das placas foi desenvolvido por meio do método “UCOS” (Umedecimento, Compactação e Secagem), desenvolvido e patenteado pela empresa Inovamat, Inovação em Materiais Ltda. (Kanno e Rosseto, 2008).

5.3 Obtenção e preparo das amostras

A empresa Inovamat, Inovação em Materiais Ltda. forneceu três placas pré-fabricadas de fosfogesso, cada uma delas produzida com fosfogesso de diferente procedência, com as mesmas dimensões das placas utilizadas na construção da residência e o quarto padrão. O fosfogesso utilizado na fabricação das placas é proveniente das três principais empresas de fertilizante do Brasil, FOSFÉRTI / ULTRAFÉRTIL, BUNGE do Brasil e a COPEBRÁS. As placas de fosfogesso foram classificadas e denominadas segundo a procedência dos complexos industriais, a saber, Cajati (CA), Cubatão (CT) e Uberaba (UB).

As amostras foram levadas ao Laboratório de Radiometria Ambiental do Centro de Metrologia das Radiações do ipen, trituradas e moídas para melhor homogeneização das mesmas. Após esse tratamento, as amostras foram transferidas para frascos de polietileno de 100 ml, pesadas com uma balança eletrônica, marca Gehaka, modelo BK6000, tampadas e seladas por um período de 30 dias para possibilitar o equilíbrio radioativo entre os descendentes das séries do tório e do urânio, especificamente o ^{226}Ra e seus produtos de decaimento de meia-vida curta.

Trabalhou-se cada amostra em triplicata, identificando cada um delas corretamente, obtendo-se um total de nove amostras. A TAB 5.1 apresenta as massas e

densidades das amostras preparadas, essas amostras foram identificadas pela procedência conforme já descrito anteriormente.

TABELA 5.1 – Massas e densidades das amostras das placas pré-fabricadas de fosfogesso.

Amostras	Massas (g)	Densidade (g cm⁻³)
CA1	134,98	1,35
CA2	131,06	1,31
CA3	132,76	1,33
CT1	143,71	1,44
CT2	139,78	1,40
CT3	136,73	1,37
UB1	126,84	1,27
UB2	122,28	1,22
UB3	127,79	1,28

5.4 Determinação dos Níveis de Radiação Gama

5.4.1 Determinação das concentrações de ²²⁶Ra, ²³²Th, ⁴⁰K e ²¹⁰Pb nas placas de fosfogesso

Após de um período de 30 dias, todas as amostras foram analisadas por espectrometria gama. Um aspecto importante na determinação da concentração do urânio e tório, é o que diz respeito ao equilíbrio radioativo entre os radionuclídeos pais e seus descendentes presentes no material analisado. Sabe-se que os radionuclídeos das séries do ²³⁸U e ²³²Th estão em equilíbrio na rocha fosfática e que esse equilíbrio é interrompido no processo químico para produção do fosfogesso. Contudo, esses radionuclídeos continuam presentes no fosfogesso (Saueia, 2006).

Na série do ²³⁸U a maior importância, em termos de proteção radiológica é atribuída ao ²²⁶Ra, os descendentes do ²²⁶Ra têm meia-vida curta e o equilíbrio radioativo é alcançado num período relativamente curto, desde que se garanta que o ²²²Rn não escape do material.

Para determinar áreas com a precisão desejada num tempo razoável de contagem foram escolhidas as transições gama de maior intensidade das séries do urânio e tório. O tempo de contagem das amostras variou conforme o nível de radioatividade apresentado pelas mesmas, para as amostras denominadas CA, CT e UB foram escolhidos os tempos de contagem de 200.000, 40.000 e 100.000, 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 , 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 a 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 , 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 1460,8 keV, respectivamente.

Para a determinação da concentração de ^{210}Pb foi feito o cálculo do fator de correção para auto-absorção, utilizando o método descrito por (Cutshall et al., 1983), devido à atenuação da radiação gama de baixa energia pela própria amostra. Na TAB. 5.2 observam-se as energias de transição gama de maior intensidade utilizadas neste trabalho.

TABELA 5.2 Radionuclídeos e respectivas energias e intensidades de radiação gama (IAEA, 1990).

Radionuclídeo	Energia gama (keV)	Intensidade gama (%)
⁴⁰ K	1460,80	10,70
²¹⁰ Pb	46,54	4,10
²¹² Pb	238,63	45,00
	300,09	3,40
²¹⁴ Pb	295,21	18,70
	351,90	35,80
²¹² Bi	727,20	7,00
	1620,60	1,80
²¹⁴ Bi	609,30	45,00
	1120,30	14,90
²²⁸ Ac	338,50	12,30
	911,10	29,00
	968,90	17,50

As amostras de placas de fosfogesso foram medidas num detector de germânio hiperpuro EGNC 15-190-R da Eurisys Measures, de configuração vertical, 15% de eficiência relativa e resolução efetiva de 1,9 keV relativa os 1332 keV do ⁶⁰Co, com eletrônica associada e acoplado a um microcomputador. Os espectros gama obtidos foram analisados com o programa Interwinner 4.1 da *Eurisys Measurements Incorporation* (Gilsen, 1998).

Na FIG. 5.4 é apresentado o espectro com a identificação dos principais radionuclídeos presentes nas amostras de placas pré-fabricadas de fosfogesso.

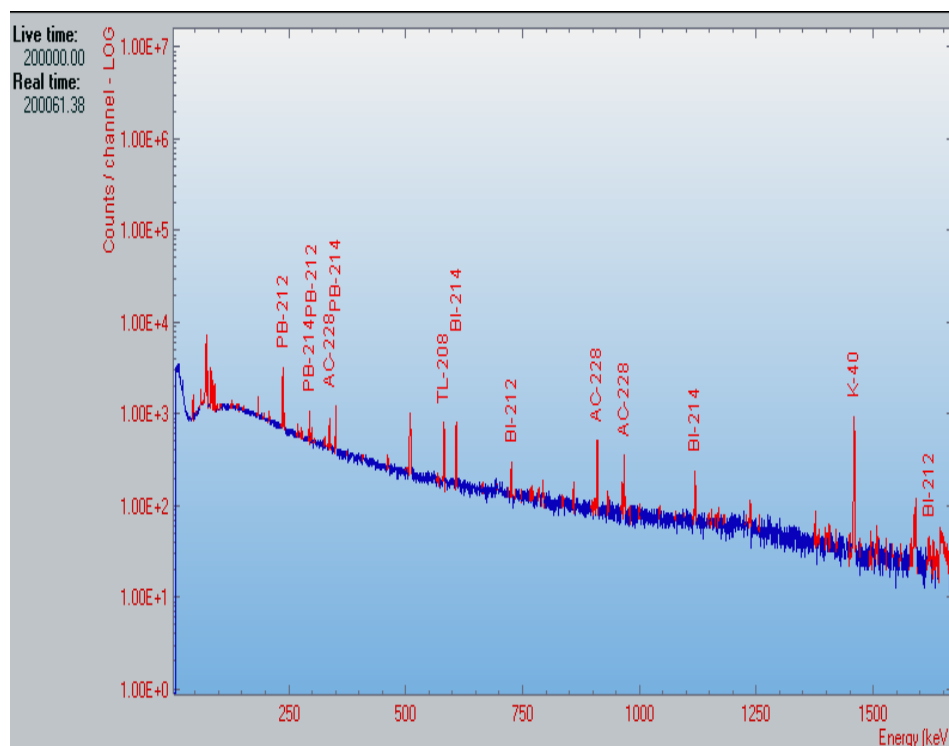


FIGURA 5.4- Espectro gama com a identificação dos radionuclídeos presentes nas placas pré-fabricadas de fosfógeno.

A espectrometria gama, consiste na interação da radiação emitida pela amostra com o detector. Num espectro gama, o centróide do pico permite a identificação do radionuclídeo e a área obtida dá informações sobre a quantidade dos radionuclídeos presentes na amostra.

Assim, a partir do conhecimento da área do pico da transição gama de interesse, da radiação de fundo para a transição gama considerada, da massa da amostra, da eficiência do detector e do tempo de contagem foram obtidas as concentrações dos radionuclídeos de interesse por meio da equação 4.1.

A radiação de fundo foi determinada medindo-se um recipiente de mesma geometria que o utilizado para as amostras 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.

6. RESULTADOS E DISCUSSÃO

6.1 Concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K e ^{210}Pb nas placas 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 . A TAB. 6.1 apresenta os resultados das concentrações dos descendentes do ^{226}Ra e ^{232}Th , mostrando o equilíbrio entre os radionuclídeos pais e seus filhos.

TABELA 6.1 - Concentrações dos descendentes do ^{226}Ra e ^{232}Th (Bq kg^{-1}) e respectivos desvios-padrão nas placas de fosfogesso.

Amostras	Concentração (Bq kg^{-1})				
	^{214}Pb	^{214}Bi	^{212}Pb	^{212}Bi	^{228}Ac
CA1	16,1±1,3	15,5±1,3	23,9 ± 1,6	40,7±5,9	22,2±1,9
CA2	15,3±1,3	17,8±1,4	22,1 ± 1,5	27,9±5,7	21,7±1,9
CA3	16,7±1,4	14,5±1,3	23,7 ± 1,6	29,1±5,9	23,3±2,1
CT1	406 ± 26	377 ± 22	247 ± 15	290 ± 24	225 ± 13
CT2	406 ± 26	377 ± 22	249 ± 15	263 ± 23	237 ± 14
CT3	409 ± 26	378 ± 22	242 ± 14	285 ± 23	238 ± 14
UB1	302 ± 19	282 ± 16	134 ± 8	181 ± 15	158 ± 9
UB2	306 ± 19	289 ± 17	133 ± 8	143 ± 14	160 ± 9
UB3	299 ± 19	285 ± 16	133 ± 8	151 ± 13	162 ± 9

Devido à atenuação da radiação gama de baixa energia emitida pelo ^{210}Pb ($E = 46,5 \text{ keV}$) pela própria amostra, foi calculado, a partir da equação 4.2, o fator de auto-absorção para as amostras analisadas, os resultados são apresentados na TAB. 6.2.

TABELA 6.2 - Fatores de auto-absorção para o ^{210}Pb .

Amostra	Fator de auto-absorção
CA1	2,58
CA2	2,49
CA3	2,55
CT1	3,55
CT2	3,68
CT3	3,49
UB1	2,65
UB2	2,61
UB3	2,66

Na TAB. 6.3 são apresentados os resultados das concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K e ^{210}Pb (corrigido para auto-absorção) com seus respectivos desvios-padrão.

TABELA 6.3 - Concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K e ^{210}Pb (Bq kg^{-1}) nas placas de fosfogesso.

Amostras	Concentração (Bq kg^{-1})			
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{210}Pb
CA1	$15,8 \pm 0,5$	$28,9 \pm 10,0$	< 33	< 31,5
CA2	$16,6 \pm 1,7$	$23,9 \pm 3,5$	< 34	< 29,3
CA3	$15,6 \pm 1,6$	$25,4 \pm 3,3$	< 39	$18,4 \pm 3,1$
CT1	392 ± 20	254 ± 33	< 74	822 ± 19
CT2	392 ± 21	249 ± 13	< 81	1002 ± 22
CT3	393 ± 22	255 ± 26	< 69	731 ± 18
UB1	292 ± 15	158 ± 24	< 52	312 ± 12
UB2	297 ± 12	145 ± 14	< 56	282 ± 12
UB3	292 ± 10	149 ± 15	< 51	290 ± 12

Os resultados apresentados na TAB. 6.1 mostram que o ^{226}Ra está em equilíbrio com seus descendentes de meia-vida curta, assim como os descendentes do ^{232}Th , confirmando que é possível obter-se as concentrações desses dois radionuclídeos a partir de seus descendentes. Na TAB. 6.3 observa-se que os radionuclídeos ^{226}Ra e ^{210}Pb encontram-se em equilíbrio relativo nas CA e UB procedentes de Cajati e Uberaba, o que não é observado nas amostras procedentes de Cubatão, indicando que as amostras desta procedência concentram mais chumbo que as outras.

Na TAB. 6.4 são apresentados os resultados das concentrações médias de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K e ^{210}Pb para todas as amostras analisadas, relativas a cada uma das procedências, bem com os desvios-padrão associados a estas concentrações médias.

TABELA 6.4 - Concentrações médias de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K e ^{210}Pb (Bq kg^{-1}) nas placas de fosfogesso

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

Pode-se observar que as concentrações dos radionuclídeos naturais nas amostras de procedência de Cubatão (CT) são as mais altas, seguida da amostra de Uberaba (UB) e finalmente com uma menor concentração da amostra procedentes de Cajati (CA).

Sabe-se que as rochas sedimentares possuem altas concentrações de urânio e baixas concentrações de tório e que após a reação da rocha fosfática com ácido sulfúrico, o urânio e tório são incorporados ao ácido fosfórico e os isótopos de ^{226}Ra e ^{210}Pb permanecem no fosfogesso. Assim, devido aos valores elevados desses dois radionuclídeos nas amostras da procedência CT e UB, é possível que estas sejam provenientes de fosfogesso obtido a partir do resíduo do processamento de rochas sedimentares.

Já as amostras da procedência CA apresentam concentrações bastante baixas de ^{226}Ra e ^{232}Th , sendo a concentração de tório aproximadamente o dobro da de rádio, indicando que o fosfogesso seja proveniente do processamento de rochas ígneas,

predominantes no Brasil. As concentrações dos radionuclídeos no fosfogesso podem variar dependendo da origem da rocha fosfática e do tipo de processo escolhido para obter o ácido fosfórico

Foi observado que em todas as amostras as concentrações de ^{40}K são sempre baixas, próximas do limite inferior de detecção do sistema de contagem utilizado, indicando que este radionuclídeo não contribui de forma significativa para a radioatividade presente no fosfogesso brasileiro.

Na FIG. 6.1 são apresentados graficamente os resultados de cada radionuclídeo analisado nas placas de fosfogesso das três procedências.

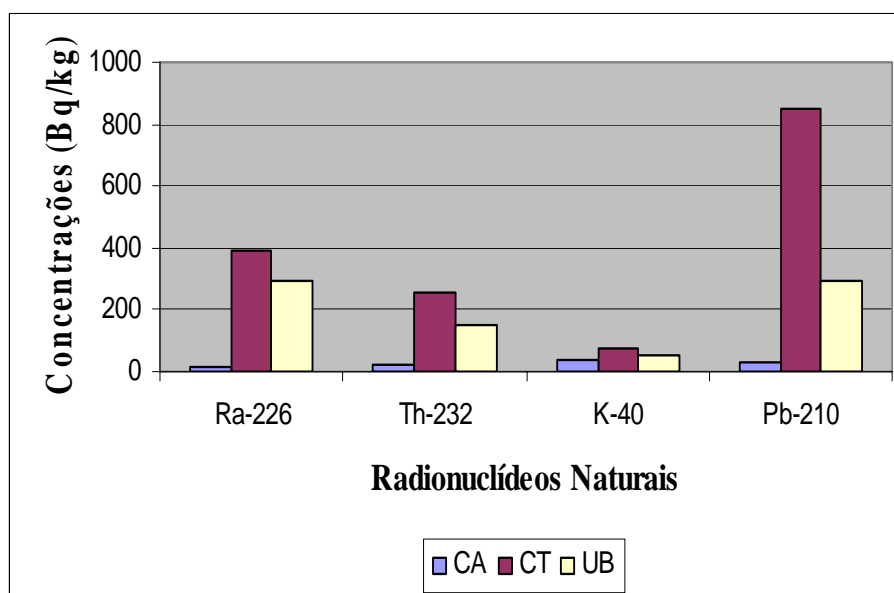


FIGURA 6.1- Concentrações dos radionuclídeos naturais nas placas pré-fabricadas à base de fosfogesso.

Devido ao fato de que as placas analisadas neste trabalho são compostas basicamente de fosfogesso, para uma melhor compreensão dos resultados das concentrações dos radionuclídeos naturais obtidos optou-se por comparar esses valores com os resultados de concentrações dos radionuclídeos naturais presentes no fosfogesso de indústrias nacionais e internacionais, cabe lembrar que as concentrações dos radionuclídeos podem variar dependendo da origem da rocha fosfática e o tipo de processo de produção adotado. Nas TAB. 6.5 e 6.6 são apresentados os resultados das concentrações dos radionuclídeos naturais de indústrias nacionais e internacionais obtidos por diversos pesquisadores.

TABELA 6.5 - Concentrações dos radionuclídeos naturais de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K e ^{210}Pb e atividade equivalente de rádio (Ra_{eq}) em fosfogesso de indústrias internacionais.

Referência	Origem do Fosfogesso	Concentração (Bq kg^{-1})				
		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{210}Pb	Ra_{eq}
Beretka et al, 1985	Austrália	451,4	11,1	NM	NM	473,6
Kovler et al, 2002	Israel	747	14,4	63,1	NM	772,5
Rutherford et al, 1994	Central Florida (USA)	1140	3,7	NM	1370	NM
	Norte Flórida (USA)	500	NM	NM	NM	NM
Kovler, 2008	Israel	390	20	60	NM	NM
	Concentração máxima	NM	NM	NM	NM	NM
	Usado em Europa	1100	160	300	NM	NM
Papastefanou, 2001	Greece	473	NM	25,9	NM	NM
Papastefanou et al, 2006	Austrália	451	10	20	NM	NM
	Sweden	15	62	NM	NM	NM
	Hungary	1093	NM	NM	NM	NM
	Yugoslávia	390	NM	NM	NM	NM

*NM=não mencionada

TABELA 6.6 - Concentrações dos radionuclídeos naturais de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{210}Pb e ^{40}K e atividade equivalente de rádio (Ra_{eq}) em fosfogesso de indústrias nacionais.

Referência	Origem do Fosfogesso	Concentração (Bq kg^{-1})				
		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{210}Pb	Ra_{eq}
Mazzili et al, 2000.	Brasil-industria A	695±47	175±23	25±13	894±210	NM
	Brasil-industria B	100±7	156±38	24±16	116±20	NM
	Brasil-industria C	266±21	174±17	18±1	275±30	NM
Saueia et al, 2006.	Brasil-industria A	744±160	226±31	NM	1061±132	NM
	Brasil-industria B	186±50	86±21	NM	182±65	NM
	Brasil-industria C	344±65	204±33	7,7NM	347±44	NM
Saueia et al, 2005.	Brasil-industria A	700±38	138±9	<45	1135±114	901
	Brasil-industria B	350±42	69±4	<45	353±31	452
	Brasil-industria C	24±3	19±2	<45	66±25	55
Rosa, 1997	Brasil-industria A	65	30	NM	65	NM
	Brasil-industria B	184	174	NM	275	NM
Santos, 2002	Brasil-industria A	850±240	NM	NM	840±240	NM
	Brasil-industria C	360±120	NM	NM	340±120	NM
Paes, 2001	Brasil-industria A	693±50	175±24	24±4	NM	NM
	Brasil-industria B	100±4	156±35	24±16	NM	NM
	Brasil-industria C	265±31	173±12	18±1	NM	NM

*NM=não mencionada

Comparando-se os resultados obtidos neste trabalho com os resultados de concentração de radionuclídeos das indústrias internacionais, observa-se que os valores de ^{226}Ra e ^{232}Th encontram-se dentro da faixa de variação apresentada, já os resultados de ^{40}K no fosfogesso daquelas indústrias são maiores que os obtidos nas placas pré-fabricadas analisadas.

Em relação ao fosfogesso nacional cabe ressaltar que os resultados são extremantes concordantes com os obtidos neste trabalho. A indústria A corresponde à procedência CT, a indústria B representa a procedência CA e a indústria C é relativa à procedência UB.

6.2 Estimativa da dose efetiva por exposição externa.

Para avaliar a dose efetiva anual recebida no interior de uma residência, foi adotada a metodologia descrita no item 4.3, optando-se por um quarto padrão como referência.

Foram utilizados neste cálculo os dados da concentração de radionuclídeos naturais nas placas de fosfogesso, informações sobre a fração porcentual das placas utilizadas na construção do quarto padrão analisado, o tempo de permanência, além dos fatores de conversão da concentração de radionuclídeos em dose absorvida no ar e de conversão de dose absorvida no ar para dose efetiva.

Existem na literatura vários valores de fatores de conversão da concentração de ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K para dose absorvida no ar, esses fatores variam em função as dimensões, densidades e espessuras das paredes, sendo a densidade e espessura os parâmetros que exercem maior influência na determinação desses fatores de conversão (Máduar e Hiromoto, 2004).

Para o presente trabalho foram adotados os valores obtidos por (Máduar et al., 2008), devido ao fato dos mesmos terem sido calculados por meio de um modelo computacional, a partir das informações de densidade das placa de fosfogesso, das dimensões e da espessura das paredes do quarto padrão avaliado. Na TAB. 6.7, são apresentados os valores obtidos na literatura dos fatores de conversão das concentrações em dose absorvida no ar para diferentes modelos e dimensões de quarto padrão.

TABELA 6.7- Valores dos fatores de conversão das concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K em dose absorvida no ar (nGy h^{-1} por Bq kg^{-1}).

Referência	Dimensões (m^3)	Espessura da parede (cm)	Fatores de conversão (nGy h^{-1} por Bq kg^{-1})		
			^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
Acker et al,1984	6x4x3	20	0,62	0,89	0,05
Turhan et al, 2008	4x5x2,8	20	0,92	1,1	0,08
Ademola et al, 2005	3,6x3,6x3,0	10	1,3	1,71	0,11
Máduar et al, 2008	3,4x3,3x2,3	15	0,08	0,103	0,00776

Pode-se observar que os valores reportados por (Máduar et al.,2008) são significativamente menores que os obtidos por outros autores, isto se deve à espessura das paredes do quarto estudado e à densidade das placas de fosfogesso utilizadas na construção da residência em estudo. As paredes do quarto padrão são compostas de uma estrutura de aço, onde são fixadas duas placas de fosfogesso, de 1,7 cm de espessura cada, uma na face externa e a outra na face interna da parede, entre as placas existe um espaço de 11 cm, preenchido com fibras sintéticas que não contribuem para a dose efetiva. Assim, a espessura efetiva das paredes do quarto padrão é de 14,4 cm. A densidade das placas de fosfogesso estudadas é de $1,33 \text{ g cm}^{-3}$, aproximadamente metade das densidades estudadas por outros autores (Acker et al, 1984; Turhan et al,2008).

Na FIG. 6.2 é apresentado um esquema do quarto padrão com as dimensões exatas, números de portas e janelas, o pé direito do quarto padrão é 2,30 m.

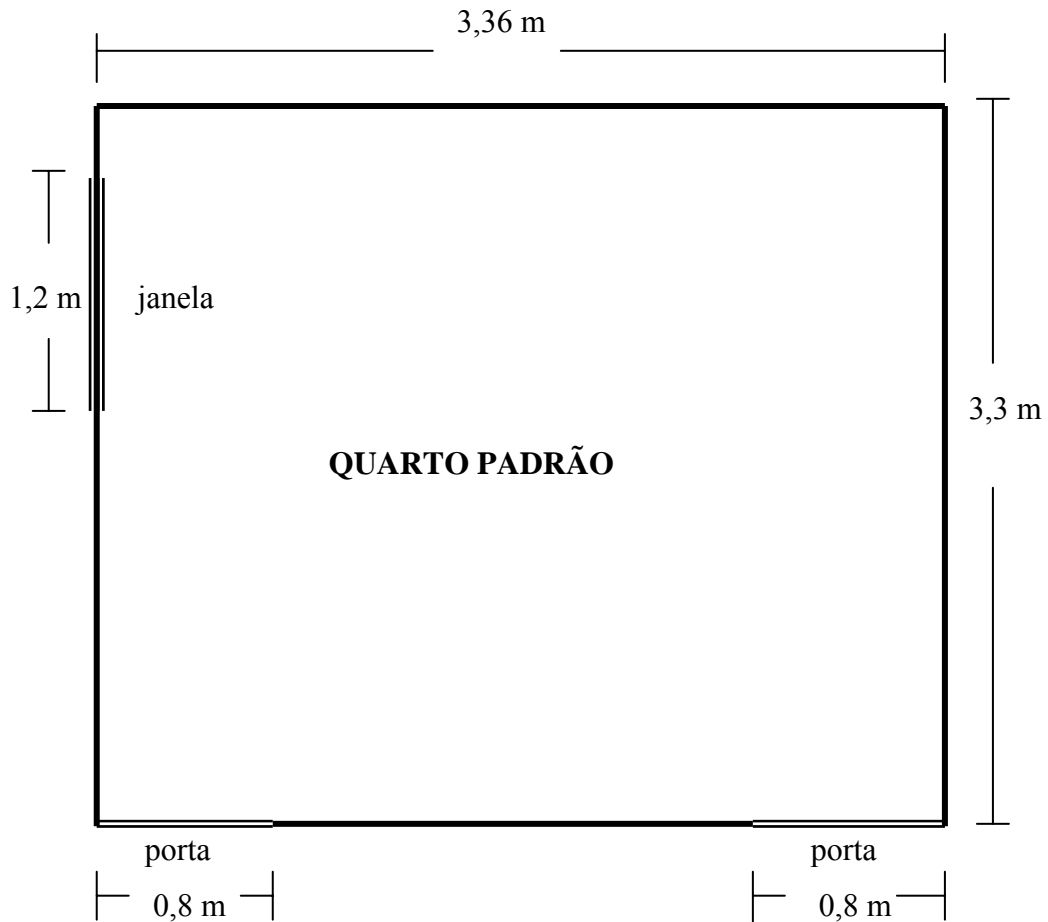


FIGURA 6.2 - Representação esquemática da planta do quarto padrão

A estimativa de dose efetiva anual por exposição externa foi feita de acordo com as equações 4.3 e 4.4 descritas no item 4.3. Para as concentrações dos radionuclídeos naturais presentes nas placas pré-fabricadas foram utilizados os dados obtidos experimentalmente (TAB. 6.4), a fração de massa do tipo de material de construção (m_i) foi calculada pela somatória das áreas das paredes e teto, descontando-se as áreas das janelas, portas e pisos (FIG. 6.2), pois estes não são compostos de fosfogesso, a fração m_i foi então de 70,4%. Substituindo os valores na equação 4.3, os valores das taxas de dose absorvida foram $2,98 \text{ nGy h}^{-1}$, $40,81 \text{ nGy h}^{-1}$ e $27,79 \text{ nGy h}^{-1}$, para as amostras das procedências CA, CT e UB respectivamente. A dose efetiva foi calculada a partir da equação 4.4 a partir dos valores da dose absorvida no ar, do fator de ocupação de 0,8, do número de horas de um ano (8760) e do fator de conversão de dose absorvida no ar para dose efetiva (0,7).

Os resultados da dose efetiva anual para o quarto padrão construído com fosfogesso das três procedências é apresentado na TAB. 6.8.

TABELA 6.8 - Dose efetiva anual (mSv a^{-1}) no quarto padrão estudado, considerando-se as três procedências de fosfogesso.

Procedência	E (mSv a^{-1})
CA	0,02
CT	0,20
UB	0,14

Na FIG 6.3 é apresentado graficamente o índice de dose efetiva anual, calculados nas placas pré-fabricadas de fosfogesso.

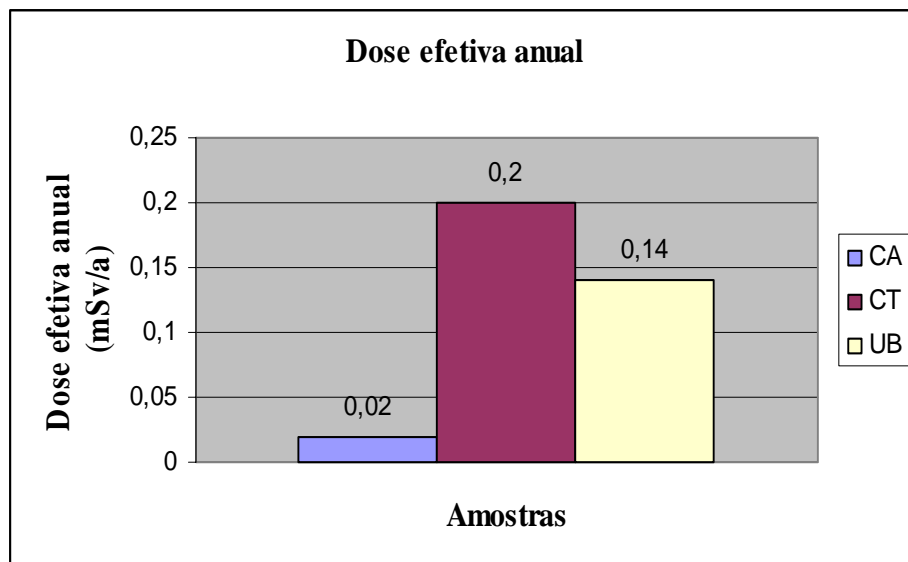


FIGURA 6.3- Dose efetiva anual para as três procedências de fosfogesso

Observa-se que as doses efetivas anuais correspondentes às amostras CA, CT e UB são bastante baixas, inferiores ao limite anual de dose efetiva para indivíduos do público, estabelecido em 1 mSv a^{-1} (ICRP 60, 1990, CNEN 3.01, 2005).

A Comissão Europeia (EC, 1999) recomenda que a dose efetiva anual recebida por um indivíduo em uma residência deve ser inferior a $0,3 \text{ mSv}$, para que não seja necessária uma análise detalhada do conteúdo de radionuclídeos emissores gama presentes nos materiais de construção.

A UNSCEAR em sua publicação do ano de 2000 sugere ainda que a dose anual por exposição gama externa não deve ultrapassar 0,48 mSv.

Pode-se observar que as doses efetivas anuais para a exposição externa devido a emissores gama avaliadas neste trabalho encontram-se abaixo dos valores recomendados pelos principais órgãos reguladores.

Os resultados obtidos sugerem que não há risco significativo em termos de proteção radiológica, considerando-se apenas a irradiação externa e que, portanto, sob este critério, as habitações construídas com placas pré-fabricadas de fosfogesso das procedências acima mencionadas podem ser habitadas.

6.3 Resultados dos parâmetros radiológicos

6.3.1 Atividade equivalente de rádio (Ra_{eq})

Os resultados das atividades equivalentes de rádio (Ra_{eq}) nas amostras de placas pré-fabricadas à base de fosfogesso foram obtidos a partir da equação 4.5 e são apresentados na TAB. 6.9. Na TAB. 6.10 encontram-se os valores médios da atividade equivalente de rádio de todas as amostras analisadas, bem como os desvios-padrão.

TABELA 6.9 - Atividade equivalente de rádio (Ra_{eq}) em $Bq\ kg^{-1}$ nas placas pré-fabricadas à base de fosfogesso

Amostra	Ra_{eq} ($Bq\ kg^{-1}$)
CA 1	59,7
CA 2	53,4
CA 3	54,5
CT 1	760
CT 2	755
CT 3	763
UB 1	521
UB 2	509
UB 3	508

TABELA 6.10 - Atividades médias de rádio equivalente e desvios padrão nas placas pré-fabricadas à base de fosfogesso

Amostra	Ra_{eq} (Bq kg⁻¹)
CA	55,8 ± 3,4
CT	759,4 ± 4,4
UB	512,9 ± 7,1

Os resultados obtidos variam de 53,4 a 763 Bq kg⁻¹, a faixa de variação mostrou-se bastante ampla, evidenciando a diferença de procedência dos fosfogesso. É possível observar-se também que a atividade equivalente de rádio da procedência CA é inferior ao valor limitante de 370 Bq kg⁻¹, sugerido pela UNSCEAR e que as das procedências CT e UB apresentam resultados acima desse valor.

6.3.2 Índices de risco externo (H_{ex}) e risco interno (H_{in})

Os índices de risco externo (H_{ex}) e risco interno (H_{in}) foram calculados a partir das equações 4.6 e 4.7, respectivamente, considerando-se as concentrações médias de ²²⁶Ra, ²³²Th e ⁴⁰K por procedência. Os resultados são apresentados na tabela 6.11.

TABELA 6.11: Índices de risco externo (H_{ex}) e risco interno (H_{in})

Procedência	H_{ex}	H_{in}
CA	0,15	0,19
CT	2,05	3,10
UB	1,37	2,16

Os índices de risco externo e interno variam de 0,15 a 2,05 e de 0,19 a 3,10, respectivamente. A faixa de variação é bastante ampla, mais uma vez evidenciando a diferença de procedência. É possível observar que apenas as amostras da procedência CA apresentam índices de risco considerados desprezíveis de acordo com os valores sugeridos pela UNSCEAR, que recomenda que os mesmos devam ser menores que um. As procedências CT e UB apresentam índices de risco externo e interno maior a unidade, que é o valor máximo sugerido. Cabe ressaltar, como dito anteriormente, que esses índices são baseados em modelos bastante restritivos.

7 CONCLUSÕES

Cumprindo o objetivo de analisar a viabilidade da utilização de placas pré-fabricadas à base de fosfogesso na construção de residências a partir da avaliação da exposição externa sofrida pelos moradores dessas habitações foram determinadas as concentrações dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K e ^{210}Pb , pelo método de espectrometria gama. As amostras analisadas foram denominadas CA, CT e UB conforme a procedência das indústrias de fertilizantes fosfatos que produzem o resíduo fosfogesso. As concentrações encontradas nas placas de fosfogesso das três procedências mencionadas apresentam valores entre $15,9 \text{ Bq kg}^{-1}$ e 392 Bq kg^{-1} para o ^{226}Ra ; $26,1 \text{ Bq kg}^{-1}$ e 253 Bq kg^{-1} para o ^{232}Th , valores menores que $74,3 \text{ Bq kg}^{-1}$ para o ^{40}K e entre $27,4$ a 852 Bq kg^{-1} para o ^{210}Pb . Os valores mínimos pertencem à amostra denominada CA e os valores máximos pertencem à amostra CT e a amostra UB encontra-se com valores intermédios dentro destas duas amostras.

Os resultados obtidos neste trabalho indicaram que o intervalo de concentração é bastante amplo, porém compatível com os valores encontrados na literatura.

Após da determinação das concentrações dos radionuclídeos, foi estimada a dose efetiva para o morador de uma residência construída com placas de cada uma das três procedências, os valores obtidos foram $0,02 \text{ mSv a}^{-1}$, $0,20 \text{ mSv a}^{-1}$ e $0,14 \text{ mSv a}^{-1}$, para as placas de procedência CA,CT e UB respectivamente.

Pode ser observado que para nenhuma das placas pré-fabricas avaliadas a dose efetiva no quarto padrão estudado supera os valores estabelecidos pelos órgãos reguladores internacionais, $0,3 \text{ mSv a}^{-1}$ sugerido pela Comunidade Européia para dose em residência, $0,48 \text{ mSv a}^{-1}$ sugerido pela UNSCEAR para exposição externa e 1 mSv a^{-1} para indivíduos do público, recomendado pela Comissão Internacional de Proteção Radiológica (ICRP 60, 1990) e pela Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN 3.01, 2005), demonstrando a utilização destas placas na construção de residências não provoca um incremento significativo de dose na população e portanto, os riscos podem ser considerados desprezíveis.

Em relação aos resultados obtidos para os principais parâmetros radiológicos estabelecidos pelos órgãos reguladores observou-se uma ampla variação, no caso da atividade equivalente de rádio os valores variaram de $55,8 \text{ Bq kg}^{-1}$ a 759 Bq kg^{-1} e a procedência CA foi a que apresentou o menor resultado, sendo este o único que atende a recomendação da UNSCEAR de ser inferior a 370 Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 1982), indicando que o uso desta placa pré-fabricada na construção de residências é considerado seguro para os habitantes, as outras amostras, denominadas CT e UB apresentam resultados acima deste valor.

Pode-se notar também que as atividades equivalentes de rádio apresentadas pelos fosfogessos nacionais e internacionais (TAB. 6.5 e 6.6) também são superiores a este valor máximo sugerido, indicando que este é um valor bastante restritivo.

Quanto aos índices de risco externo (H_{ex}), estes variam de 0,15 a 1,37 e os índices de risco interno (H_{in}) variam de 0,19 a 2,16, a faixa de variação entre as procedências também é bastante ampla. Em todos os resultados obtidos os valores inferior são relativos à procedência CA e os valores superiores relativos à procedência CT. Assim, como no caso da atividade equivalente de rádio a única procedência que obedece à recomendação de ser menor que a unidade é a de Cajati (CA).

A partir dos resultados das doses efetivas por exposição externa para as três procedências estudadas é possível concluir que a utilização das placas pré-fabricadas avaliadas neste trabalho na construção de residências não provoca incremento significativo de dose ou apresenta risco radiológico aos seus moradores.

Por outro lado, se forem avaliados apenas os parâmetros radiológicos, somente as placas fabricadas com o fosfogesso proveniente de Cajati (CA) seriam consideradas seguras para a utilização em residências, o que indica a necessidade de reavaliação dos critérios utilizados no cálculo desses parâmetros, mostrando que é preciso que estes sejam baseados em modelos mais realistas.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ACKERS, J.G.; BOSNJAKOVIC, B.F.M.; STRACKEE, L. Limitation of radioactivity concentrations in building materials based on a practical calculation model. **Radiation Protection Dosimetry**, v.7, p.413-416, 1984.
- ADEMOLA, J.A.; FARAI, I.P. Annual effective dose due to natural radionuclides in building blocks in eight cities of southwestern Nigeria. **Radiation Protection Dosimetry**, v.114, p.524-526, 2005.
- ADEMOLA, J.A. Determination of natural radionuclides content in some building materials in Nigeria by gamma-ray spectrometry. **Health Physics**, v.94, p.43-48, 2007.
- AHMED, N.K. Measurement of natural radioactivity in building materials in Qena city, Upper Egypt. **Journal of environmental Radioactivity**, v.83, p.91-99, 2005.
- AQUINO, P. E. A produção de ácido fosfórico e a geração de fosfogesso, In: **Desafios Tecnológicos para o reaproveitamento do fosfogesso**. Anais eletrônicos. Belo Horizonte. UFMG, 2005. Disponível em: < <http://www.fosfogesso.eng.ufmg>>. Acesso em: 6 julho de 2008.
- ARMAN, A.; SEALS, R.K. A preliminary assessment utilization alternatives for phosphogypsum. In: **Third International Symposium on Phosphogypsum, Orlando, FL, FIPR Pub No 01-060-083**, v.2, p.562-575, 1990.
- BECKER, P. Phosphates and phosphoric acid; raw materials, technology and economics of the wet process. **Fert. Sci. Technol. Ser.**, v.6, p.752, 2.ed.: Marcel Dekker, Inc., New York, 1989.
- BERETKA, J.; MATHEW, P.J. Natural radioactivity of Australian building materials, industrial wastes and by-products. **Health Physics**, v.48, p.87-95, 1985.
- BERISH, C.W. Potential environmental hazards of phosphogypsum storage in central Florida. In: **Proceedings of the third International Symposium on Phosphogypsum, Orlando, FL, FIPR Pub. No 01-060-083**, v.2, p.1-29, 1990.
- CAMPOS, M.P. **Avaliação do impacto radiológico provocado por materiais de construção em moradores de casas populares**. 1994. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.
- 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.
- CANUT, M.M.C. **Estudo da viabilidade do uso do resíduo fosfogesso como material de construção**. 2006. Dissertação (Mestrado)-Escola de Engenharia, Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte
- CEKINSKI, E. **Tecnologia de Produção de Fertilizantes**. Instituto de Tecnológicas. 1990.

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

CNEN – Comissão Nacional de Energia Nuclear. Diretrizes básicas de radioproteção. (CNEN NE 3.01). 2005.

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.

DNPM- Departamento Nacional de Produção Mineral 1976, Perfil analítico dos fertilizantes fosfatados. Boletim n.39. Ministério de Minas e Energia, 1976.

DNPM- Departamento Nacional de Produção Mineral, Anuário Mineral Brasileiro 1990. Ministério de Minas e Energia, Brasília, 1990.

DNPM- Departamento Nacional de Produção Mineral, Anuário Mineral Brasileiro 1993. Ministério de Minas e Energia, Brasília, 1993.

DNPM- Departamento Nacional de Produção Mineral. Sumário Mineral Brasileiro 2008. Ministério de Minas e Energias, Brasília, 2008.

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.

EISENBUD, M. Environmental radioactivity: **from natural industrial and military sources**. 3a edição. New York: Academic Press, Inc. 1987.

FREITAS, J.B. A disposição do fosfogesso e seus impactos ambientais. In: **Seminário sobre o uso do gesso na agricultura**, Uberaba: IBRAFOS, p.325-339, 1992.

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

HINCAPIE, A.M.; CINCOTTO, M.A. Efeito do ácido cítrico no endurecimento de pastas de gesso. **Anais do I Encontro Nacional do Gesso na Construção Civil**. Olinda, PE, p. 94-100, 1997.

HIZEM,N.; FREDJ,B.; GHEDIRA,L. Determination of natural radioactivity in building materials used in Tunisian dwelling by gamma Ray spectrometry. **Radiation protection Dosimetry**, v.114, p.533-537, 2005.

HULL, C.D.; BURNETT, W.C. Radiochemistry of Florida phosphogypsum. **Journal Environmental Radioactivity**, v.32, No 3, p.213-238, 1996.

IAEA. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **The environmental behaviour of radium**. Technical reports series No 310.Vol.1. Vienna, 1990.

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

KANNO W.M.; ROSSETTO, H.L.; Inovamat-Produtos (Novo gesso). São Carlos-São Paulo. Disponível em:< <http://www.inovamat.com.br>>. Acesso em: 22 de agosto de 2008.

KOVLER, K.; HAQUIN, G.; MANASHEROV, V.; NE'EMAN, E., LAVI, N. Natural radionuclides in building materials available in Israel. **Building and Environment**, v.37, p.531- 537, 2002.

KOVLER, K. Radiological constraints of using building materials and industrial by-products in construction. **Construction and Building Materials**. Article in Press, 2008

KUMAR, A.; KUMAR, M.; SINGH, B.; SINGH, S. Natural activities of ^{238}U , ^{232}Th and ^{40}K in some Indian building materials. **Radiation Measurements**, v.36, p. 465-469, 2003.

LIMA, R.M.F. **Novos coletores na flotação do minério fosfático de Tapira**. 1989. Dissertação (mestrado) - Universidade Federal de Minas Gerais, Minas Gerais.

LYSANDROU, M.; PASHALIDIS, I. Uranium chemistry in stack solutions and leachates of phosphogypsum disposed at a coastal area in Cyprus. **Journal of environmental radioactivity**, v.99, p. 359-366, 2008.

MÁDUAR,M.F.; HIROMOTO,G. Evaluation of indoor gamma radiation dose in dwellings. **Radiation Protection Dosimetry**, v.111, p.221-228, 2004.

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.

MAKWEBA, M.M.; HOLM, E. The natural radioactivity of the rock phosphates, phosphatic products and their environmental implications, **The Science of the total Environment**, v.133, p.99-100, 1993.

MAY, A.; SWEENEY, J.W. Assessment of environmental impacts associated with phosphogypsum in Florida. In. Kuntze, R.A.(Ed.) **The chemistry and technology of gypsum**. ASTM Special technical publication: No 861, p.116-139, 1984.

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

MOISSET, J. Complete removal of radium from phosphogypsum. In: **Proceeding of the Third International Symposium on Phosphogypsum**, Orlando, FL. FIPR, v.1, p.181-196, 1990.

NISTI, M.B Comunicação pessoal, 2008

NUERNBERG, N. J.; RECH, T.D.; BASSO, C. **Uso do gesso Agrícola**. Boletim Técnico No 112. Empresa de Pesquisas Agropecuária e Extensão Rural de Santa Catarina S.A (EPAGRI). Santa Catarina, 2005

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

PAPASTEFANOU, C. Radiological impact from atmospheric releases of ^{238}U and ^{226}Ra from phosphate rock processing plants. **Journal of Environmental radioactivity**, v.54, p. 75-83, 2001.

PAPASTEFANOU, C.; STOULOS, S.; IOANNIDOU, A.; MANOLOPOU, M. The application of phosphogypsum in agriculture and the radiological impact. **Journal of Environmental radioactivity**, v.89, p. 188-198, 2006.

ROCHA, A.C.S. **Determinação de urânio em fertilizantes**. 1983. Dissertação (Mestrado)- Instituto Militar de Engenharia, Rio de Janeiro.

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.

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

SANTOS, A.J.G.; SILVA, P.S.C.; MAZZILLI, B.P.; FAVARO, D.I. Radiological Characterization of disposed phosphogypsum in Brazil: Evaluation of the occupation exposure and environmental impact. **Radiation Protection Dosimetry**, v.121, p.179-185, 2006.

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

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**. 2006. Tese (Doutorado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

SENES Consultants Limited. **An analysis of tohe major environmental and health concerns of phosphogypsum tailings in Canada and methods for their reduction**. Ontario. Min, Environ, and Environ. Canadá. 1987.

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

SILVA, P.S.C., MAZZILLI, B.P.; FAVARO, D.I.T. Distribution of U and Th decay series and rare earth elements in sediments of Santos Basin: correlation with industrial activities. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 264, p. 449-455, 2005.

SINGH, S.; RANI, A.; MAHAJAN, R.K. ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K in soil samples from some areas of Punjab and Himachal Pradesh, India using gamma ray spectrometry, **Radiation Measurements**, v.39, p.431-439,2005.

SMADI, M.M.; HADDAD, R.H.; AKOUR, A.M. Potential use phosphogypsum in concrete. **Cement and Concrete Research**, v.29, p.1419-1425, 1999.

SUMNER, M.E. Uso atual do gesso no mundo em solos ácidos. In: **Seminário sobre o uso do gesso na agricultura**. Anais Uberaba, Uberaba: IBRAFOS, p.7-40. 1992.

TURHAN, S.; BAYKAN, U.N.; SEN, K. Measurement of the natural radioactivity in building materials used in Ankara and assessment of external doses. **Journal of Radiological Protection**, v.28, p.83-91, 2008.

TURHAN, S.; GÜNDÜZ, L. Determination of specific activity of ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K for assessment of radiation hazard from Turkish pumice samples. **Journal Environmental Radioactivity**, v. 99, p.332-342, 2008.

UMISEDO, N.K. **Dose de Radiação Ionizante decorrente do uso de fertilizantes agrícolas**. 2007. Teses (Doutorado)- Faculdade Saúde Pública, Universidade de São Paulo.

UNSCEAR – United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Ionizing Radiation: sources and biological effects. United Nations, New York, 1982.

UNSCEAR- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources, effects and risks of ionizing radiations. New York, United Nations, 1993.

UNSCEAR – United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, The 2000 Report to the General Assembly with scientific Annexes. New York: United Nations, 2000.

USEPA- United States Environmental Protection Agency. Potential uses of phosphogypsum and associated risks. Washington DC, 1992.

USEPA - United State Environmental Protection Agency. Radiation Information. Disponível em:< [http: www.epa.gov/ radiation/ radionuclideos](http://www.epa.gov/radiation/radionuclideos)>. Acesso em: 22 de julho de 2008.

VENTURINI, L.; NISTI,M.B. Natural radioactivity of some Brazilian building materials, **Radiation Protection Dosimetry**, v.71, p. 227-229, 1997.

XINWEI, L. Natural radioactivity in some building material of Xi'an, China, **Radiation Measurements**, v.40, p.94 -97, 2005.