

Estudo da exalação de Rn-222 em fosfogesso por meio da técnica de adsorção em carvão ativado

Marcelo Bessa Nisti¹ e Marcia Pires de Campos¹

¹Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – Comissão Nacional de Energia Nuclear
055080-000, Brasil
mbnisti@ipen.br e mcampos@ipen.br
<http://www.ipen.br>

Resumo: Estimou-se a exalação de radônio pelo fosfogesso armazenado a céu aberto por meio da técnica de adsorção em carvão ativado. O fosfogesso, subproduto das indústrias de fertilizantes fosfatados, se enquadra no grupo de materiais classificados como TENORM. A determinação da taxa de exalação de radônio nas pilhas de fosfogesso foi feita por meio da técnica de adsorção do radônio em carvão ativado, a partir da concentração dos descendentes do ²²²Rn, ²¹⁴Pb e ²¹⁴Bi, obtidas por espectrometria gama. Os resultados médios e respectivos desvios padrão obtidos para as pilhas de fosfogesso das empresas Ultrafertil e Fosfertil foram $0,16 \pm 0,07 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ e $0,08 \pm 0,02 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, respectivamente. Os resultados obtidos neste trabalho foram compatíveis com os valores encontrados na literatura.

1 Introdução

O ²²²Rn é formado como um produto da série radioativa do ²³⁸U a partir do decaimento alfa do ²²⁶Ra e possui a capacidade de se difundir através do solo e dos materiais de construção, podendo emanar para o interior dos ambientes. Além do solo e dos materiais de construção [1 e 2], as águas minerais e/ou termais são fontes importantes de ²²²Rn [3], pois o gás que emana das águas é inalado pelos indivíduos juntamente com aquele que se difunde do solo e das paredes do local. A concentração de radônio em um ambiente depende principalmente da exalação do gás pelo solo e pelos materiais de construção. A taxa de exalação é definida como a atividade de radônio liberada da superfície de um material por unidade de tempo e depende do conteúdo de radioatividade do material, do fator de emanação, do coeficiente de difusão do gás no material, da porosidade e densidade do material [4,5 e 6]. 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. O fosfogesso se enquadra no grupo de materiais classificados como TENORM. A produção brasileira de fosfogesso 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 [7]. 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 [8 e 9]. A maioria dos estudos não foram conclusivos em relação ao risco que estão sujeitos os trabalhadores das pilhas de fosfogesso. São necessários mais estudos para determinar os efeitos do solo e cobertura vegetal sobre a exalação de ^{222}Rn [5].

2 Metodologia

Para a determinação das taxas de exalação de radônio nas pilhas de fosfogesso foi utilizada a técnica de adsorção em carvão ativado e posterior determinação da quantidade exalada por meio da concentração dos descendentes ^{214}Pb e ^{214}Bi , obtida por espectrometria gama, utilizando-se um detector de germânio hiperpuro com eletrônica associada e acoplado a um microcomputador [5 e 10]. No cálculo foram também considerados a área útil de adsorção de radônio no carvão ativado e o tempo de exposição do carvão ao fosfogesso. Para a confecção dos amostradores de carvão ativado para adsorção de radônio utilizou-se um frasco de polietileno de 100 ml com carvão ativado granulado puro de diâmetro variando de 6 a 10 mm, batoque de polietileno furado e tule. O volume interno do frasco de polietileno foi completamente preenchido com carvão ativado, para garantir a retenção do carvão dentro do frasco sem prejudicar a adsorção do ^{222}Rn pelo amostrador de carvão, foi colocada uma cobertura de tule presa com o batoque furado. Os amostradores foram acondicionados dentro de um tubo de PVC com diâmetro de 7,2 cm, lacrados com a respectiva tampa do tubo de PVC e instalados em quatro pontos distintos nas pilhas de fosfogesso, formando assim um acumulador de radônio, em cada ponto foram instalados dois amostradores, totalizando oito por pilha de fosfogesso. O tempo de amostragem nas pilhas de fosfogesso da Ultrafertil e Fosfertil foi de 8 e 1,7 dias, respectivamente. Após o período de amostragem os frascos foram levados ao Laboratório de Radiometria Ambiental do IPEN para a determinação dos níveis de radiação gama. A determinação da concentração mínima detectável (CMD) foi feita a partir do modelo proposto por Currie [11]. Para a determinação da CMD “a priori” de cada radionuclídeo foi utilizado um frasco de polietileno de 100 ml, com carvão ativado novo e para determinação da CMD “a posteriori” o modelo foi aplicado para cada espectro relativo às amostras de carvão ativado analisadas. O ^{222}Rn foi determinado utilizando-se as transições gama de 295,2 keV e 351,9 keV do ^{214}Pb e 609,3 keV do ^{214}Bi . Após a retirada do amostrador da pilha de fosfogesso, o mesmo foi selado e armazenado por 4 horas (para que fosse atingido o equilíbrio radioativo entre o ^{222}Rn e seus descendentes) para então ser iniciada a medida no sistema de detecção. Os amostradores de carvão ativado e as amostras de fosfogesso foram medidas utilizando a técnica de espectrometria gama num detector de germânio hiperpuro Canberra GX2518 de configuração vertical, 25% de eficiência relativa e resolução efetiva de 1,8 keV relativa os 1332 keV do ^{60}Co , com eletrônica associada e acoplado a um microcomputador. Os espectros gama obtidos foram analisados com o programa InterWinner 6.0 da *Eurisys Measurements Incorporation* [12]. A partir do conhecimento da área do pico da transição gama de interesse, da radiação de fundo para a transição gama considerada, massa da amostra, eficiência do detector e do tempo de contagem foram obtidas as concentrações dos radionuclídeos de interesse. A

radiação de fundo foi determinada a partir da medida de um recipiente de mesma geometria que o utilizado para as amostras contendo água. O tempo de contagem foi determinado a partir do modelo proposto por Nisti [13]. A eficiência de contagem foi previamente determinada para a mesma geometria de frasco de polietileno de 100 mL, numa faixa de energia de 46,5 a 1408 keV. A incerteza associada às concentrações de cada uma das amostras foi calculada utilizando-se propagação de incerteza. As intensidades das transições gama foram obtidas na literatura.

3 Resultados e conclusões

A taxa de exalação de ^{222}Rn nas pilhas de fosfogesso foi obtida a partir das concentrações de ^{214}Pb e ^{214}Bi , considerando-se que a adsorção do ^{222}Rn no carvão ativado foi constante e com eficiência de 100% [5], todos os resultados foram corrigidos pela data de retirada do amostrador da pilha de fosfogesso e seu período de exposição [14]. Na tabela 1 são apresentados os resultados da taxa de exalação nas pilhas de fosfogesso da Ultrafertil e Fosfertil, por ponto de amostragem.

Tabela 1. Taxa de exalação do ^{222}Rn ($\text{Bq m}^{-2} \text{s}^{-1}$) na pilha de fosfogesso da Ultrafertil e Fosfertil

Pontos	ULTRAFERTIL	FOSFERTIL
	^{222}Rn ($\text{Bq m}^{-2} \text{s}^{-1}$)	^{222}Rn ($\text{Bq m}^{-2} \text{s}^{-1}$)
1A	$0,102 \pm 0,004$	$0,073 \pm 0,003$
1B	$0,083 \pm 0,003$	$0,070 \pm 0,003$
2A	$0,214 \pm 0,008$	$0,053 \pm 0,004$
2B	$0,195 \pm 0,007$	$0,051 \pm 0,003$
3A	$0,268 \pm 0,010$	$0,098 \pm 0,006$
3B	ND	$0,091 \pm 0,006$
4A	$0,119 \pm 0,005$	$0,082 \pm 0,003$
4B	ND	$0,115 \pm 0,005$
média \pm desv.padrão	$0,164 \pm 0,073$	$0,079 \pm 0,022$

ND: não determinado (amostrador danificado)

Os resultados obtidos nas taxas de exalação de ^{222}Rn nas pilhas de fosfogesso da Ultrafertil e Fosfertil utilizando os amostradores de carvão ativado foram na média de $0,164 \pm 0,073 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ e $0,079 \pm 0,022 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, respectivamente. Os resultados obtidos neste trabalho foram compatíveis com os valores encontrados na literatura [5]. A diferença entre as taxas de exalação das empresas Ultrafertil e Fosfertil pode ser explicada pelos valores diferentes de porosidade determinadas nas amostras coletadas de fosfogesso.

Referências

1. 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.

2. De Jong, P., van Dijk, W., van der Graaf, E.R., de Groot, T.J.H. National survey on the natural radioactivity and ^{222}Rn exhalation rate of building materials in the Netherlands. *Health Phys.* 91(3), 200-210, 2006.
3. Jacomino, V.F., Bellintani, S.A., Oliveira, J., Mazzilli, B.P., Fields, D.E., Sampa, M.H.O., Silva, B. Estimates of cancer mortality due to the ingestion of mineral springs waters from a high natural radioactive regions of Brazil. *J. Environ. Radioactivity*, v. 33, n. 3, p.319-329, 1996.
4. Sharma, N., Virk, H.S. Exhalation rate study of radon/thoron in some buiding materials. *Radiation Measurements* 34, 467-469 (2001).
5. Dueñas, C.; Liger, E.; Cañete, S.; Pérez, M.; Bolivar, J.P. Exhalation of ^{222}Rn from phosphogypsum piles located at the Southwest of Spain. *Journal of Environmental Radioactivity.*, v95, p.63-74, 2007.
6. Tuccimei, P., Moroni, M., Norcia, D. Simultaneous determination of ^{222}Rn and ^{220}Rn exhalation rates from building materials used in Central Italy with accumulation chambers and a continuous solid state alpha detector: Influence of particle sizes, humidity and precursors concentration. *App. Radiation and Isotopes*, 64, p.254-263, 2006.
7. Mazzilli, B.; Palmiro, V.; Saueia, C.H.R.; Nisti, M.B. Radiochemical characterization of Brazilian phosphogypsum. *Journal of Environmental Radioactivity*, 49(1), pp.113-122, 2000.
8. 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.
9. Silva, P.S.C.; Mazzilli, B.P.; Fávoro, 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*, 264 (2), pp.449-455, 2005.
10. April, J.M., Garcia-Tenorio, R., Periañez, R., Enamorado, S.M., Andreu, L., Delgado, A. Occupational dosimetric assessment (inhalation pathway) from the application of phosphogypsum in agriculture in South West Spain. *J. Environ. Radioactivity* 100, 29-32, 2009.
11. Currie, L.A. Limits for qualitative detection and quantitative determination. *Anal. Chem.* v.40, p. 586-593, 1968.
12. INTERWINNER.: InterWinner (WinnerGamma) Spectroscopy Program Family Version 6.0 (2004)
13. Nisti, M.B.; Santos, A.J.G.; Pecequilo, B.R.S.; Máduar, M.F.; Alencar, M.M.; Moreira, S.R.D. Fast methodology for time counting optimization in gamma-ray spectrometry based on preset minimum detectable amounts. *J Radioanal Nucl Chem* v.281, p.283-286, 2009.
14. Jiménez-ramos, M.C.; Manjón, G.; Abril, J.M. Influence of sampling air flow rate in the decay correction applied to the determination of ^7Be and short-lived radionuclides in aerosol samples. *Atmospheric Environment.*, v40, p.7215-7221, 2006.