

Luana Gomes Carneiro

CARACTERIZAÇÃO DA EXPOSIÇÃO OCUPACIONAL A PARTÍCULAS
TRANSPORTADAS PELO AR UTILIZANDO AS TÉCNICAS DE PIXE, ^{252}CF - PDMS
E ESPECTROMETRIA ALFA.

Dissertação apresentada como requisito para
obtenção do Grau de Mestre pelo Programa de
Pós-Graduação em Radioproteção e Dosimetria
da Comissão Nacional de Energia Nuclear na
área de Biofísica das Radiações.

Orientador: Dr^a Kenya Dias da Cunha.
IRD/CNEN

Rio de Janeiro - Brasil
Instituto de Radioproteção e Dosimetria – Comissão Nacional de Energia Nuclear
Coordenação de Pós – Graduação
2008

Livros Grátis

<http://www.livrosgratis.com.br>

Milhares de livros grátis para download.

Ficha Catalográfica

Carneiro, Luana Gomes

Caracterização da exposição ocupacional a partículas transportadas pelo ar utilizando as técnicas de PIXE, ^{252}Cf - PDMS e Espectrometria alfa.

xiv, 75 p. 29,7 cm: il., Graf., tab

Dissertação (mestrado) - Instituto de Radioproteção e Dosimetria – Rio de Janeiro, 2008.

1.PIXE; 2. PDMS; 3. Espectrometria alfa; 4. aerossóis; 5.amostradores de ar

O presente trabalho foi desenvolvido no Instituto de Radioproteção e Dosimetria da Comissão Nacional de Energia Nuclear, sob orientação da Pro^a Dr^a Kenya Moore de Almeida Dias da Cunha, com auxílio concedido pelas seguintes agências:
Comissão Nacional de Pesquisa e Desenvolvimento – Cnpq
Comissão Nacional de Energia Nuclear - CNEN.

Dedico este trabalho a meus pais, Dagoberto e Denise, sem vocês nada disso seria realidade, a meus afilhados, os filhinhos do meu coração e a meu grande amor Cristiano que me ajudou a ter força para seguir em frente.

“Mas é preciso ter força, é preciso ter raça, é preciso ter gana sempre, quem traz no corpo a marca... mistura a dor e a alegria, mas é preciso ter manha, é preciso ter graça, é preciso ter sonho sempre, quem traz a fé nessa marca, possui a estranha mania de ter fé na vida”.

(Maria, Maria – Milton Nascimento)

AGRADECIMENTOS

A Deus, a quem recorri nos momentos de maior aflição e que certamente é a força para não desistir nunca.

À Dr^a Kenya Moore de Almeida Dias da Cunha, pela orientação desta dissertação, pela dedicação e confiança dedicada a mim durante a realização deste trabalho.

À minha pequena grande amiga Geiza Celeste Medeiros que, além do indispensável auxílio técnico, me dedicou muita amizade, carinho e respeito.

À amiga Maristela dos Santos pelo apoio e carinho quase maternal que foram cruciais no desenvolvimento deste trabalho.

À amiga Rosilda Maria Gomes de Lima do IEN, pela confiança e apoio de sempre.

Ao amigo e revisor deste trabalho Dr^o Denison Sousa dos Santos pela amizade de todos os dias.

Aos professores da Pós Graduação do IRD pelos conhecimentos passados.

Ao amigo Wanderson de Oliveira Sousa, pelo apoio técnico e pelo respeito e amizade.

À amiga Sueli Mesquita pelas suas frases de efeito nos momentos críticos e pela amizade todos os dias.

À Dr^a Lígia Julião pelo apoio e carinho desde o início.

As minhas amigas e colegas de turma Sane Simone e Tatiane Rocha pelos grandes momentos que passamos juntas.

Aos amigos do curso de mestrado, Cássio Miri, Gisele Guimarães, José Luis e Leonardo Curvello e Mirtha Gamarra pelas alegrias e dificuldades compartilhadas.

Aos amigos do SEMIN e SEMEX, Leonardo Gonçalves, Raimundo Félix, Luciene Cosme e

todos os demais que me deram força, com quem sorri e chorei durante esse tempo de trabalho.

Ao querido funcionário da *Elfe* Marcelo que foi meu amigo desde o início.

À secretária da CPG Ângela Marta pelo o precioso auxílio diversas vezes.

À Engenheira Cíntia Lima pelo auxílio em alguns momentos.

A meu pai, o meu maior fã e incentivador que soube compreender cada momento difícil.

À minha mãe, que sempre esteve e sempre estará do meu lado.

Ao meu amor que provou que amor é mais do que beijos, me apoiando, me deixando chorar no seu ombro e compartilhando comigo momentos tristes e felizes.

A todos aqueles que de alguma forma me ajudaram a chegar até aqui, que me fizeram forte, que torceram pelo meu sucesso mesmo que eu não soubesse.

E um agradecimento especial aos que **não** acreditaram que eu seria capaz, porque isso me deu mais vontade de seguir em frente.

RESUMO

Os riscos para a saúde humana devidos à exposição a aerossóis dependem do tipo de incorporação, da concentração em massa e da especiação dos elementos presentes nas partículas. Neste estudo, a técnica de PDMS (Plasma Desorption Mass Spectrometry) foi utilizada como técnica complementar à técnica de PIXE (Particle Induced X-ray emission) para a caracterização de amostras de aerossóis coletadas no meio ambiente. A técnica de PIXE foi utilizada para a identificação dos elementos presentes na amostra e para a caracterização de suas concentrações em massa. A espectrometria de massa por dessorção (PDMS) foi utilizada para a identificar os compostos presentes nas amostras. As amostras de aerossol foram coletadas utilizando um Impactador em Cascata de seis estágios em três instalações. Os Diâmetros Aerodinâmicos Medianos de Massa (MMAD's) indicaram que as partículas encontravam-se na fração fina do aerossol. Os resultados da simulação teórica para estimar a concentração de urânio em amostras de urina de indivíduos expostos a partículas contendo urânio, via inalação, utilizando os parâmetros do modelo pulmonar da ICRP sugerem que a concentração em massa na fração respirável do aerossol e a especiação química são fatores importantes para a determinação da concentração de urânio na urina e que a determinação da solubilidade com parâmetros específicos para cada composto é o mais importante fator para o cálculo da concentração de urânio na urina. A técnica de PIXE permite identificar e quantificar os elementos mais pesados que o Na ($Z=11$), enquanto a técnica de PDMS permite identificar os compostos orgânicos e inorgânicos presentes nas amostras. Uma vez que estas técnicas são utilizadas como técnicas complementares eles fornecem importantes informações sobre a caracterização aerossóis.

ABSTRACT

The risk for human health due to exposure to aerosols depends on the intake pattern, the mass concentration and the speciation of the elements present in airborne particles. In this work PDMS (Plasma Desorption Mass Spectrometry) was used as complementary technique to the PIXE (Particle Induced X ray Emission) technique to characterize aerosols samples collected in the environment. The PIXE technique allows the identification of the elements present in the sample and to determine their mass concentrations. The mass spectrometry (PDMS) was used to identify the speciation of these elements present in the samples. The aerosol samples were collected using a six-stage cascade impactor in three sites. The Mass Median Aerodynamic Diameter (MMAD) measured indicated that the airborne particulate were in the fine fraction of the aerosols. The theoretical uranium concentration in urine samples using ICRP lung model parameters suggest that the elemental mass concentration in respirable fraction of aerosol and the chemical speciation are important factors to determine the uranium concentration in urine and that the determination of specific solubility parameters for each compound is the most important factor to calculate the uranium concentration in urine. PIXE allows to identify and quantify the elements heavier than Na ($Z=11$) while PDMS allows to identify the organic and inorganic compounds present in the samples. As these techniques are used as complementary techniques they provide important information about the aerosols characterization.

Sumário

RESUMO	viii
ABSTRACT	ix
Capítulo I	1
Capítulo II	3
2.1. Introdução	3
2.2. Modelos Biocinéticos	6
2.3. Caracterização de aerossóis	9
2.3.1 Amostradores Inerciais	10
a) Impactador em cascata (IC)	10
b) Amostrador Pessoal com Ciclone	10
c) Amostrador Grosso e Fino (AGF)	11
2.4. Técnicas Analíticas	11
2.4.1. Método PIXE (Particle Induced X Ray Emission)	11
a) Incertezas do método	12
2.4.2. Espectrometria de massa por dessorção	14
Capítulo III	17
3.1. Fábrica de Combustível Nuclear (FCN)	17
3.1.1. FCN - Reconversão	18
3.1.2. Pastilhas	20
3.1.3. FCN - Componentes e Montagem do Elemento Combustível	21
3.2. Instituto de Engenharia Nuclear (IEN)	21
3.3. Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD)	23
Capítulo IV	24
4.1. Caracterização de Aerossóis	24
4.1.1. Coleta de amostras de aerossóis	25

a) Amostradores portáteis com ciclone	26
b) Amostrador Grosso e Fino (AGF)	28
c) Impactador em Cascata (IC)	28
4.2. Amostras de Urina	30
4.3. Técnicas Analíticas	30
4.3.1. Técnica de PIXE	30
a) Calibração	32
b) Limite de detecção	33
c) Análise de espectros	35
4.4. Técnica de PDMS	36
4.5. Espectrometria Alfa (α)	37
4.5.1. Abertura das amostras e separação cromatográfica	38
a) Pré-concentração do urânio	39
4.5.2. Sistema de Espectrometria α	39
a) Cálculo da concentração de isótopos de interesse	40
4.5.2 Limite de detecção da técnica de espectrometria alfa	42
Capítulo V	44
Capítulo VI	58
APÊNDICE A	60
CARACTERIZAÇÃO DAS AMOSTRAS DE AEROSSÓIS COLETADAS NA FÁBRICA DE COMBUSTÍVEL NUCLEAR	60
1 - Amostradores Portáteis com ciclone (APC)	60
2 - Impactador em Cascata (IC)	61
3 - Amostrador Grosso e Fino (AGF)	62
APÊNDICE B	64
CARACTERIZAÇÃO DAS AMOSTRAS DE AEROSSÓIS COLETADAS NO INSTITUTO DE ENGENHARIA NUCLEAR (IEN)	64
1 - Impactador em Cascata (IC)	64
2 - Amostrador Grosso e Fino (AGF)	64

APÊNDICE C	66
CARACTERIZAÇÃO DAS AMOSTRAS DE AEROSSÓIS COLETADAS NO INSTITUTO DE RADIOPROTEÇÃO E DOSIMETRIA (IRD)	66
1 - Impactador em Cascata (IC)	66
2 - Amostrador Grosso e Fino (AGF)	66
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	67

Lista de figuras

Figura 2.1. Esquema geral do metabolismo de metais (modificado de Apostolli, 1992).	4
Figura 2.2 - Representação simplificada do sistema respiratório proposto pela publicação nº 66 da ICRP (1994).	8
Figura 2.5 - Espectro de massa baseado na medida de tempo de voo de íons secundários dessorvidos da superfície de uma amostra contendo urânio.	16
Figura 3.1 – Vista aérea da INB Resende	18
Figura 3.2 – Vista aérea da Fábrica de Combustível Nuclear - Reconversão	18
Figura 3.3 – Esquema da produção do dióxido de urânio	19
Figura 3.4 – Esquema simplificado da fabricação de pastilhas de UO_2	20
Figura 3.5 – Vista aérea do Instituto de Engenharia Nuclear.	22
Figura 3.6 – Mapa da Ilha do Fundão com a localização do Instituto de Engenharia Nuclear	22
Figura 3.7 – Vista aérea do Instituto de Radioproteção e Dosimetria com uma vista ao fundo da praia do Recreio dos Bandeirantes	23
Figura 4.1. Fotografia mostrando o amostrador portátil com ciclone utilizado neste estudo para coleta de aerossóis na fração respirável.	27
Figura 4.2. Fotografia do arranjo experimental na coleta de aerossóis usando o amostrador grosso e fino (AGF).	28
Figura 4.3. Fotografia mostrando o arranjo experimental para coleta de aerossóis usando o amostrador do tipo impactador em cascata (IC).	29
Figura 4.4. Esquema simplificado do arranjo experimental utilizado.	31
Figura 4.5. (a) Arranjo experimental da linha de PIXE no acelerador Van der Graaff da PUC-RIO. (b) Detalhe da torre suporte de amostra.	31
Figura 4.6. Curva de eficiência absoluta do detector de Raios-X.	33
Figura 4.7. Curva do limite de detecção do método PIXE, para os elementos leves ($Z \leq 42$), identificados pelas linhas de energia $K\alpha$.	34
Figura 4.8. Curva do limite de detecção do método PIXE, para os elementos pesados $Z \geq 43$), identificados pelas linhas de energia $L\alpha$.	35
Figura 4.9. Esquema simplificado do arranjo experimental utilizado para a	

análise de PDMS.	36
Figura 4.10. Arranjo experimental da coluna de separação cromatográfica.	38
Figura 4.11. Esquema simplificado da célula de deposição de urânio.	39
Figura 5.1. Curvas da variação da concentração de urânio na urina considerando uma única incorporação de 1Bq e os parâmetros de incorporação do ICRP 66.	53
Figura 5.2. Curvas da variação da concentração de urânio na urina considerando uma única incorporação de 1Bq e os parâmetros de incorporação do ICRP 66.	54
Figura 5.3. Curvas da concentração de urânio na urina considerando incorporação contínua de 0,000064 Bq e os parâmetros de incorporação específicos da FCN.	55
Figura 5.4. a - Espectro de massa das partículas impactadas no primeiro estágio do IC baseado nos íons secundários dessorvidos da superfície da amostra.	56
Figura 5.4. b -Região do espectro do espectro de massa ampliada.	57

Lista de tabelas

Tabela 4.1. Relação dos locais e pontos de coleta na FCN indicando os períodos de amostragem e os amostradores utilizados para cada.	25
Tabela 4.2. Relação dos locais de coleta no IEN, identificando sua localização e os amostradores utilizados em cada ponto.	26
Tabela 4.3. Relação dos períodos de coleta no IRD indicando o amostrador utilizado em cada período.	26
Tabela 4.4. Relação das amostras analisadas por espectrometria α	37
Tabela 4.5. Limite de detecção do urânio, na análise por espectrometria α .	42
Tabela 4.6. Limites de concentração de U em massa e o equivalente em atividade, calculados para cada tipo de amostra analisada pelo método PIXE.	42
Tabela 4.7. Limites de concentração dos isótopos de U calculados para cada tipo de amostra analisada por espectrometria alfa.	43
Tabela 5.1. Concentração elementar nas amostras coletadas nas três etapas da FCN. Amostras coletadas com o impactador em cascata.	45
Tabela 5.2. Valores de MMAD determinado para partículas coletadas nas três etapas do processo na FCN. Amostras coletadas com o impactador em cascata.	46
Tabela 5.3 Concentração elementar nas amostras coletadas no IEN e no IRD. Amostras coletadas com o impactador em cascata.	47
Tabela 5.4 Valores de MMAD determinado para partículas coletadas no Laboratório de processos químicos do IEN. Amostras coletadas com o impactador em cascata.	48
Tabela 5.5. Valores de MMAD determinado para partículas coletadas no Instituto de Radioproteção e Dosimetria. Amostras coletadas com o impactador em cascata.	50
Tabela 5.6. Concentração em mBq/m^3 de ^{238}U e ^{234}U no ar.	51
Tabela 5.7. Concentração em Bq/L na urina coletada em trabalhadores da FCN.	52
Tabela A.1- Condições de coleta de amostras com APC na FCN – Unidade de Reversão (Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo) – Trabalhador 1	60
Tabela A.2- Condições de coleta de amostras com APC na FCN – Unidade de Reversão (Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo) – Trabalhador 2.	60
Tabela A.3- Condições de coleta de amostras com APC na FCN – Unidade de Fabricação de Pastilhas (Retífica) – Trabalhador 3.	60

Tabela A.4- Condições de coleta de amostras com IC na FCN – Unidade de Reconversão (Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo).	61
Tabela A.5- Condições de coleta de amostras com IC na FCN – Unidade de Reconversão (Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo + Forno de Leito Fluidizado).	61
Tabela A.6- Condições de coleta de amostras com IC na FCN – Unidade de Fabricação de Pastilhas (Retífica).	62
Tabela A.7- Condições de coleta de amostras com AGF na FCN – Unidade de Reconversão (Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo)	62
Tabela A.8- - Condições de coleta de amostras com AGF na FCN – Unidade de Fabricação de Pastilhas (Retífica).	63
Tabela B.1- Condições de coleta de amostras com IC no Laboratório de Processos Químicos do Instituto de Engenharia Nuclear	64
Tabela B.2 - Condições de da coleta realizada com AGF no Laboratório de Processos Químicos do Instituto de Engenharia Nuclear	64
Tabela B.3 - Condições de da coleta realizada com AGF no Laboratório de Processos Químicos do Instituto de Engenharia Nuclear	65
Tabela C. 1 - Condições de coleta de amostras com IC no Instituto de Radioproteção e Dosimetria	66
Tabela C.2- Condições de coleta de amostras com AGF no Instituto de Radioproteção e Dosimetria	66

Lista de Siglas e Abreviaturas

AGF – Amostrador Grosso e fino
AI – Interstícios Alveolares
APC – Amostrador pessoal com ciclone
BB – brônquios
bb- bronquíolos
CCN – Ciclo do combustível nuclear
CNEN – Comissão Nacional de Energia Nuclear
DUA – Diuranato de amônia
ET₁ - Passagens respiratórias anteriores da região extratorácica.
ET₂ – Passagens respiratórias posteriores da região extratorácica
FCN – Fábrica de combustível nuclear
fr - fração remanescente
IC – Impactador em cascata
ICRP – Comissão Internacional de Proteção Radiológica
IEN – Instituto de Engenharia Nuclear
INB – Indústrias Nucleares do Brasil
IRD – Instituto de Radiproteção e Dosimetria
LMD – Limite Mínimo Detectável
LNET – Nódulos linfáticos extratorácicos
LNTH – Nódulos linfáticos torácicos
MCP – micro-channel plate
MMAD – Mass Median Aerodynamic Diameter
Mev – Mega elétron-volt
nA - nano ampere
PDMS – Plasma desorption Mass Spectrometry
PIXE – Particle Induced X rays Emission
Puc-rio – Pontifícia Universidade Católica de Rio de Janeiro
TCAU – Tricarbonato de Amônia e Uranila
TOF – Time of flight
SEMIN – Serviço de Monitoramento Individual

Capítulo I

INTRODUÇÃO

O homem sempre esteve exposto à radiação ionizante de origem natural, proveniente dos raios cósmicos e de radionuclídeos, como isótopos naturais de macro constituintes dos seres vivos como o ^{40}K ou presentes na estrutura cristalina da crosta terrestre como o ^{232}Th e ^{238}U . Outras fontes naturais, como as erupções dos vulcões, tornados e outras formas de intemperismo vêm expondo o homem a diferentes substâncias tóxicas. Além das fontes naturais o desenvolvimento industrial é uma importante fonte geradora de agentes tóxicos aos quais o homem está exposto. Dentre as atividades humanas que podem causar sérios danos ao meio ambiente estão a mineração e beneficiamento de minérios, a queima de combustíveis e a indústria petroquímica. (Cawse, 1974; Cawse and Peirson, 1972; Duggan and Burton, 1983).

O ciclo do combustível nuclear, no Brasil, inclui diversas etapas desde a mineração até a utilização do urânio como combustível dos reatores nucleares para geração de energia. Nas etapas de reconversão, de precipitação do TCAU e fabricação da pastilha os trabalhadores estão expostos a partículas contendo urânio. Os riscos para os trabalhadores dependem das propriedades físicas, químicas e termodinâmicas da partícula inalada e das características de cada indivíduo exposto.

Para caracterizar a exposição de trabalhadores a partículas foi realizado um estudo utilizando três técnicas analíticas: PIXE (Particle Induced X rays Emission); ^{252}Cf -PDMS (Plasma Desorption Mass Spectrometry) e espectrometria alfa.

OBJETIVOS

O objetivo deste estudo é avaliar a influência das características do aerossol na exposição de trabalhadores devido à inalação.

Para atingir este objetivo foi necessário atingir os seguintes objetivos específicos:

- Caracterizar o aerossol na FCN, determinando a concentração elementar, o tamanho das partículas e a concentração de ^{238}U e ^{234}U nas frações respirável e inalável.
- Caracterizar o aerossol nas instalações controle, determinando a concentração elementar, o tamanho das partículas e a concentração de ^{238}U e ^{234}U nas frações respirável e inalável.
- Determinar a concentração de U em amostras de urina usando o método de PIXE;
- Avaliar a influência das características do aerossol na concentração estimada de U na urina.
- Comparar os valores estimados de concentração de U em amostras de urina com os valores determinados nas amostras fornecidas por trabalhadores expostos a partículas contendo U.

Capítulo II

FUNDAMENTOS TEÓRICOS

2.1. Introdução

O desenvolvimento industrial e o desordenado crescimento urbano foram acompanhados do aumento da poluição ambiental fazendo com que, nas últimas décadas, a sociedade viesse a se preocupar de forma mais efetiva em avaliar e gerenciar os riscos para seres humanos e para meio ambiente devido à exposição a metais pesados e radionuclídeos naturais (Roser et al, 1962; Costa Ribeiro et al., 1975; Carvalho et al., 1988; Hewson, 1988; Lipsztein et. al., 1989; Sohrabi, 1990; Mafra et al., 1991; Chen Xing-na et al., 1993; Dias da Cunha et al, 1994; Julião et al., 1994; Narayana et al., 1995; Papastefanou, 1996; Wang et al., 1996; Dias da Cunha, 1997; Azeredo, 1998; Dias da Cunha et al., 1998a, 1998b; Dias da Cunha et al., 2000; Pereira et al, 2002; Dias da Cunha et al., 2004). A presença de poluentes já foi identificada em regiões remotas do planeta como na Antártica onde se observaram partículas contendo cromo (Cr), níquel (Ni), cobre (Co), zinco (Zn), vanádio (V) e chumbo (Pb) na fração fina do aerossol (Artaxo et al, 1992, 1993; Pereira et al, 2004; Leal, 2004; Pereira et al, 2006) e depositadas em amostras de gelo (Planchon et al., 2002; Pereira, 2002; Dias da Cunha et al, 2004). Partículas contendo Ni, V e Mn (manganês) podem ser produzidas pela queima de combustíveis fósseis (Dias da Cunha et al, 2000; Zamora, 2001).

A probabilidade de uma substância produzir efeito adverso está relacionada à sua potencialidade intrínseca de produzir efeitos tóxicos e à susceptibilidade da população exposta. Os efeitos podem ser de dois tipos: sistêmicos e carcinogênicos. Os poluentes sistêmicos são aqueles que produzem efeitos tóxicos outros que não sejam câncer ou mutação gênica. Os poluentes carcinogênicos são aqueles capazes de induzir uma modificação celular e iniciar um processo carcinogênico (WHO, 1999).

Um estudo realizado em uma usina de beneficiamento de pirocloro, localizada no estado de Goiás, para avaliar a exposição de trabalhadores à poeira de minério contendo tório, mostrou que a principal fonte de incorporação deste elemento é a ingestão de poeira de minério durante o período de trabalho (Dias da Cunha et al., 1998). As medidas realizadas em uma fábrica localizada na cidade do Rio de Janeiro que utiliza o nitrato de tório na confecção de camisa de lampião demonstraram que os trabalhadores, além da exposição ao aerossol, ingerem nitrato de tório devido a maus

hábitos de higiene (Dias da Cunha, 1997). Na antiga Usina de Santo Amaro (São Paulo, SP), que beneficiava o concentrado de monazita para obter cloreto de terras raras, a monitoração dos trabalhadores mostrou que a inalação de poeira era uma das principais fontes de exposição a tório (Dias da Cunha et al., 1998; Julião et al., 1998).

A monitoração de trabalhadores da Fábrica de Combustível Nuclear (Resende, RJ) demonstrou que em alguns pontos da instalação os trabalhadores podem estar expostos a compostos de urânio de diversas solubilidades, apresentando risco de incorporação destes, sendo a via mais provável a inalação. Contudo, em função dos hábitos adotados por cada trabalhador a incorporação por ingestão pode ocorrer isoladamente ou associada a inalação (Castro, 2005; Santos, 2006).

O comportamento e os efeitos das substâncias tóxicas no meio ambiente e nos seres humanos estão associados às características do meio, às concentrações, à forma química do elemento, e às propriedades físico-químicas dos compostos. Na interação dos metais com os organismos vivos podem-se distinguir duas fases principais: fase toxicocinética (metabolismo) e fase toxicodinâmica (efeito). O esquema geral do metabolismo de metais foi proposto por Apostolli em 1992 e é apresentado na Figura 2.1. As principais vias de contaminação interna são a inalação e/ou ingestão de substâncias tóxicas.

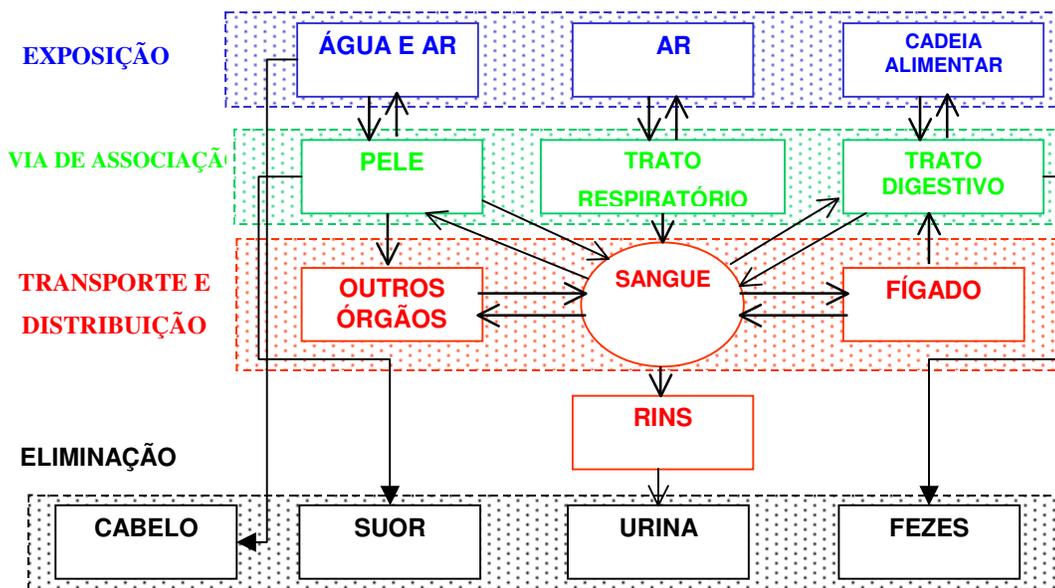


Figura 2.1. Esquema geral do metabolismo de metais (modificado de Apostolli, 1992).

O comportamento biocinético dos metais no corpo humano depende de parâmetros fisiológicos, bioquímicos e físico-químicos. Após a inalação ou ingestão do metal, o seu comportamento no organismo é influenciado pela forma e reações químicas que ocorrem nos diferentes compartimentos do corpo humano (especiação). A idade, as condições de saúde e hábitos alimentares do indivíduo influenciam no processo de absorção.

Para avaliar os riscos devidos à inalação de partículas, é necessário determinar alguns parâmetros como:

- O tamanho das partículas às quais o elemento está associado, pois este parâmetro determina o local de deposição da partícula no trato respiratório, a fração inalada depositada em cada compartimento do trato respiratório e a cinética das partículas ao penetrarem no trato respiratório (ICRP, 1979);

- A composição química, que determina a solubilidade da partícula no líquido pulmonar e o comportamento biocinético do elemento (Watson, 1983; Snipes, 1994; ICRP, 1994). O comportamento biocinético das partículas depende das propriedades físicas e das propriedades morfológicas e fisiológicas do trato respiratório (Lippmann et al, 1969; Lippmann, 1970; Barnes, 1971; Morgan et al., 1983; ICRP, 1994).

Uma vez depositadas no trato respiratório, as partículas são removidas por processo de depuração, que pode ser mecânico e/ou por dissolução. O processo de depuração por dissolução-absorção é aquele no qual ocorre a dissociação dos constituintes da partícula dependendo, assim, de sua composição química, ocorrendo principalmente na região profunda do pulmão (Watson, 1983; Snipes, 1994; ICRP, 1994; Koblinger, et al, 1995). As partículas inaladas depositadas na região superior do trato respiratório são removidas, na maior parte das vezes, por processos mecânicos, principalmente pelos movimentos ciliares podendo, então, ser deglutidas e transferidas para o trato gastrintestinal.

Uma outra possível fonte de contaminação é a ingestão de alimentos. A absorção de metais pelos alimentos pode ocorrer devido à contaminação do solo ou à deposição de partículas nos alimentos durante o cultivo, estocagem ou preparo. Deste modo, a ingestão de alimentos deve ser considerada na avaliação do risco, pois os metais podem ser incorporados através do trato gastrintestinal e, assim como na

inalação, o comportamento biocinético dos elementos dependerá de parâmetros físicos, químicos e biológicos. Estudos realizados sugerem que os compostos dos elementos presentes nas partículas do aerossol diferem daqueles encontrados nos alimentos, onde já foram metabolizados pelas plantas ou animais, podendo estar em uma forma mais solúvel do que nas partículas do aerossol (Cooper, 1985). A população dos Estados Unidos ingere, em média, 100 mg/dia de solo através da inalação, ingestão de alimentos ou água contaminados por partículas transportadas pelo ar (Linsalata *et al.*, 1986).

Os dados existentes na literatura sobre o comportamento biocinético dos metais baseiam-se em estudos com voluntários, vítimas de acidentes e principalmente com animais, sendo a especiação dos elementos determinada através de medidas indiretas (Harrison *et al.*, 2001). Estes estudos mostram que a análise de amostras de fluidos biológicos de indivíduos expostos fornece importantes informações sobre o comportamento dos metais e a excreção urinária caracteriza a incorporação sistêmica.

No estudo utilizando a técnica de PIXE (Particle Induced X rays Emission) para determinação das concentrações de metais e o tamanho das partículas em uma área ao ar livre do Instituto de Engenharia Nuclear (IEN) foram identificadas partículas contendo Cloro (Cl), Potássio (K), Cálcio (Ca), Titânio (Ti), Manganês (Mn), Ferro (Fe), Níquel (Ni), Cobre (Cu) e Zinco (Zn), sendo o Cl o elemento encontrado em maior concentração, o que indica que o spray marinho exerce grande influência sobre os aerossóis gerados naquela região. Os valores de MMAD (Mass Median Aerodynamic Diameter) das partículas coletadas foram da faixa de 1,0 a 2,7 μm . No mesmo estudo foi aplicada a técnica de PDMS (Plasma Desorption Mass Spectrometry), nos resultados apresentados foram encontradas moléculas de Na e NaCl indicando a presença do aerossol marinho, os metais foram encontrados sob a forma de cloreto, indicando que a Baía de Guanabara é uma das fontes de aerossol da região. Estes estudos mostram que a aplicação conjunta das técnicas de PIXE e PDMS na análise de amostras biológicas e ambientais constitui uma ferramenta importante na caracterização de partículas transportadas pelo ar (Dias da Cunha *et al.*, 2000; Zamora, 2001).

2.2. Modelos Biocinéticos

Os modelos biocinéticos são desenvolvidos para descrever o comportamento dos metais no corpo humano.

O modelo geral descreve o corpo humano dividido em compartimentos a partir dos quais o elemento é transferido para os órgãos ou para as vias de excreção seguindo as taxas de transferência entre os compartimentos.

A Comissão Internacional de Proteção Radiológica (ICRP) tem publicado periodicamente modelos biocinéticos para descrição dos casos de inalação, ingestão e absorção pela pele. O modelo do trato respiratório é apresentado na publicação da ICRP número 66 de 1994.

- **Modelo pulmonar proposto na publicação nº 66 da ICRP**

As informações sobre a anatomia e fisiologia do trato respiratório e também sobre deposição, liberação e efeitos biológicos causado pelas partículas radioativas depositadas no pulmão estão descritas na publicação número 66 da ICRP.

O modelo pulmonar proposto pela publicação nº 66 da ICRP (ICRP 66, 1994) leva em consideração informações sobre a deposição e retenção do particulado compreendido entre 0,006 e 100 μm , deposição em regiões inaladas, distribuição e absorção de gases inalados, deposição e depuração de materiais, influência do fumo, poluentes do ar e doenças do trato respiratório. Este modelo é específico para diferentes faixas etárias (recém-nascido, 1 ano, 5 anos, 15 anos e indivíduo adulto) e sexo e é aplicável tanto para gases quanto para particulados.

O modelo divide o trato respiratório em duas regiões principais: extratorácica e torácica. A região extratorácica é composta pelas passagens respiratórias anteriores (nariz - ET1) e posteriores (laringe, faringe e boca – ET2). A região torácica é composta pelos brônquios (BB), bronquíolos (bb), interstícios alveolares (AI) e os nódulos linfáticos extratorácicos (LNET) e os torácicos (LNTH). Tal divisão baseia-se nas características fisiológicas, funcionais nos diversos componentes do sistema respiratório e nas propriedades físicas das partículas. A representação simplificada do sistema respiratório proposto pela publicação nº 66 da ICRP (ICRP 66, 1994) é apresentada na Figura 2.2.

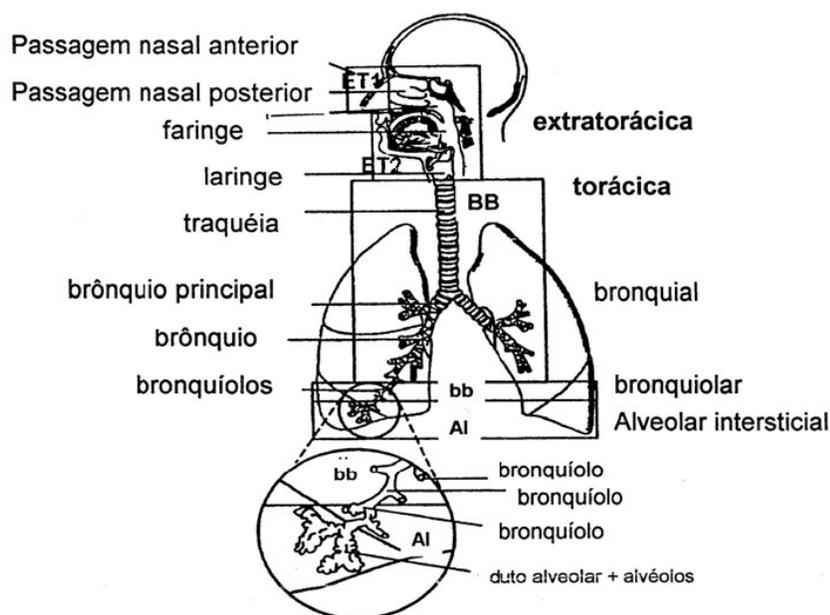


Figura 2.2 - Representação simplificada do sistema respiratório proposto pela publicação nº 66 da ICRP (1994).

No modelo de deposição de partículas, as regiões são tratadas como uma série de filtros durante a inalação e a exalação, e a eficiência é avaliada considerando que propriedades aerodinâmicas e termodinâmicas do aerossol atuam de maneira competitiva. As frações de deposição nas regiões do trato respiratório, são calculadas para partículas que possuem uma distribuição de tamanho do tipo log-normal, com desvio padrão geométrico (σ_g) obtido como uma função do diâmetro mediano do particulado, valendo 1,0 para diâmetros de 0,6 nm até 1 μm , e 2,5 para diâmetros de 1 μm ou superiores. Os parâmetros de deposição são estabelecidos para quatro níveis distintos de atividade: dormindo, sentado, exercício leve e exercício pesado.

O processo de absorção dos compostos pelo sangue é composto de dois estágios, dependentes do tempo. O primeiro estágio é a absorção das partículas que já estão dissolvidas (fase rápida) e o segundo é a absorção pelo sangue das partículas que são progressivamente dissociadas e dissolvidas. De acordo com o grau de absorção pelos fluidos corporais, os compostos podem ser classificados em:

Tipo F (rápido) – compostos que são prontamente absorvidos pelo sangue. Há

uma significativa absorção na região ET2, a parte mais interna da região extratoráxica, e na região BB. Parte do material inalado permanecerá no muco até ser deglutido e não será absorvido pelo epitélio. Para tais compostos a ICRP considera que, na ausência de dados experimentais específicos, a taxa de dissolução rápida é $Sr = 100 \text{ d}^{-1}$ ($t_{1/2} \approx 10$ minutos).

Tipo M (moderado) – compostos com taxa intermediária de absorção. Para tais compostos o percentual rapidamente absorvido é na ordem de 10%, e o tempo de retenção na fase lenta é da ordem de 100 dias. Isto é representado pela fração dissolvida rapidamente por $fr = 0,1$; $Sr = 100 \text{ d}^{-1}$; e a taxa de dissolução então é $Ss = 0,0005 \text{ d}^{-1}$.

Tipo S (lento) – compostos relativamente insolúveis. A ICRP assume que, para esse tipo de composto, a fração absorvida na fase rápida é igual a 0,1%. Para os 99,9% restantes a taxa de absorção para o sangue é $0,0001 \text{ d}^{-1}$. Isto é representado por $fr = 0,001$; $Sr = 100 \text{ d}^{-1}$; $Ss = 0,0001 \text{ d}^{-1}$.

A fase rápida é observada imediatamente após a inalação. Quando o composto é considerado insolúvel (tipo S), uma significativa fração é absorvida lentamente como resultado da ligação com componentes do trato respiratório (ICRP 66, 1994). A fração prontamente absorvida do composto é denominada fr e a taxa de dissolução na fase rápida é Sr . A fração remanescente $(1 - fr)$ dissolve mais lentamente com a taxa Ss .

2.3. Caracterização de aerossóis

Para a caracterização dos aerossóis presentes em um determinado ambiente é necessária a utilização de técnicas específicas para a coleta destas amostras, para este fim são utilizados amostradores de aerossóis.

Os princípios de funcionamento dos amostradores de aerossóis baseiam-se nas diferentes propriedades dos aerossóis e a escolha do amostrador dependerá do tipo de estudo e do aerossol a ser coletado. (Hinds, 1998; Lippmann, 1989).

Diversas técnicas de coleta de amostras de análise de aerossóis são aplicadas ao estudo das propriedades das partículas transportadas pelo ar visando, principalmente, avaliar a poluição atmosférica e seus efeitos sobre o clima global, os riscos à saúde dos seres vivos e os danos ao meio ambiente e patrimônios históricos da humanidade. (Dias da Cunha et al., 2001; 2002; Bowen, 1973).

Os amostradores de partículas transportadas pelo ar, disponíveis comercialmente, podem ser agrupados em duas categorias gerais:

Amostradores sem discriminação de tamanho de poeira total: Conhecidos como de amostradores de poeira total. Eles possuem um único estágio, sendo usado na maioria das coletas para determinação da concentração de partículas totais (Lippmann, 1969).

Amostradores com diferenciação de tamanho: Conhecidos como amostradores seletivos. Eles selecionam as partículas do aerossol segundo uma de suas propriedades, os principais amostradores baseiam-se nas propriedades inerciais das partículas, nas forças eletrostáticas e nas propriedades ópticas das partículas.

2.3.1 Amostradores Inerciais

Os amostradores inerciais baseiam-se na conservação da quantidade de movimento das partículas. No presente estudo utilizamos dois tipos de amostradores inerciais, o impactador em cascata e o amostrador individual com ciclone.

a) Impactador em cascata (IC)

Neste tipo de amostrador o fluxo de ar ao penetrar incide sobre uma superfície plana, perpendicular ao fluxo, provocando desvio das linhas de corrente do mesmo. As partículas com inércia suficiente para vencer a força exercida pelo fluido, abandonam as linhas de corrente do fluxo, impactando na superfície, enquanto que as outras seguem as linhas de corrente indo impactar nos estágios seguintes. Deste modo é possível a separação das partículas de diferentes faixas de tamanhos, pois cada estágio tem um diâmetro de corte diferente do outro.

Quando várias superfícies impactadoras são colocadas em série, o impactador recebe o nome de Impactador em Cascata (Hinds, 1998).

b) Amostrador Pessoal com Ciclone

Nos amostradores do tipo ciclone amostrador, as partículas ao penetrarem no amostrador são forçadas a uma trajetória circular. As partículas com massa suficiente para vencer a força da gravidade seguem a linha de fluxo. Nos amostradores com

ciclone as partículas que seguem as linhas de fluxo são coletadas em um filtro colocado na parte superior do mesmo e as demais são coletadas em um copo coletor. Os ciclones são geralmente utilizados como estágio inicial de outros tipos de amostradores. (Hinds, 1998, Lippmann, 1989).

c) Amostrador Grosso e Fino (AGF)

Este amostrador utiliza um pré-seletor de partículas que determina o valor mínimo do diâmetro de corte que irá penetrar no amostrador. As partículas são arrastadas pelas linha de corrente de fluxo para dentro do amostrador, sendo separadas subsequente em duas frações de tamanho que dependem da velocidade de fluxo e da eficiência de retenção do filtro coletor. (Dias da Cunha, 1997)

2.4. Técnicas Analíticas

2.4.1. Método PIXE (Particle Induced X Ray Emission)

Em 1970, Johansson e colaboradores introduziram a técnica de PIXE para análise multielementar de materiais. A técnica é não destrutiva, que permite analisar elementos com massa atômica maior que 11 e o limite de detecção é da ordem de 10^{-9} a 10^{-12} g. O Laboratório do acelerador Van de Graaff da PUC-RIO dispõe desta técnica desde 1975, e deste então vem sendo usado para análise de amostras biológicas e de aerossóis (Johansson & Johansson, 1976; Nelson et al.; 1977; De Pinho et al., 1979; Kiss et al., 1980; Artaxo et al., 1992; Dias da Cunha et al., 1998, Dias da Cunha et al., 2000).

A quantificação de cada elemento identificado na amostra é feita através da relação entre o número de raios X detectados e o número de átomos do elemento presente.

No cálculo do número de raios X emitidos por elemento presente na amostra deve ser considerado que o feixe de prótons incidente sobre a amostra é homogêneo e que sua área é maior que a amostra. O ângulo sólido do detector e a eficiência do detector de raios X são parâmetros importantes. Considerando que a amostra é fina o bastante para que a perda de energia do feixe de prótons seja desprezível ao atravessá-la, o número de raios X, N_x , emitido por um elemento presente na amostra é dado por:

$$N_x = \frac{\Omega}{4\pi} \times \varepsilon \times \sigma_x(E_0) \times \frac{Q \times M}{2,66 \times 10^{-9} \times S \times A} \quad \text{EQ. 2.1}$$

ε = eficiência do detector

A = massa atômica do elemento em g

S = área do colimador em mm²

M = massa da amostra em µg

Q = corrente integrada em µC

N_x = número de contagens do elemento

Ω = ângulo sólido visto pelo detector em sterradianos.

$\sigma_x(E_0)$ = seção de choque para produção raios X induzida por prótons com energia E0.

$2,66 \times 10^{-9}$ = fator de conversão de unidades.

a) Incertezas do método

As principais fontes de incerteza no método PIXE são a espessura do alvo, a não homogeneidade do feixe, o aquecimento da amostra e a superposição no espectro de picos de diferentes elementos (Montenegro, 1977; Montenegro *et al*, 1991).

Os prótons incidentes ao interagirem com os átomos da amostra perdem energia variando sua seção de choque para produção de raios X e conseqüentemente o número de raios X emitidos pela amostra variam. Amostras espessas, também, podem ocasionar a absorção dos raios X pela própria amostra levando a interpretações errôneas. Estes erros podem ser considerados desprezíveis se as amostras forem suficientemente finas para que não haja perda de energia das partículas incidentes ou se

forem determinados fatores de correção, no caso de amostras grossas. Assim, o efeito da espessura da amostra no cálculo da incerteza do método é desprezível (Johansson *et al*, 1976).

O número de raios-X emitidos é proporcional ao número de átomos do elemento presente e ao número de prótons que incidem sobre as amostras. A homogeneidade do feixe de partículas também deve ser considerada no estudo da incerteza do método PIXE. Um número maior de partículas incidindo sobre uma amostra poderá produzir o mesmo número de raios-X que um número menor de partículas incidentes sobre uma amostra com maior quantidade do elemento. Deste modo o feixe de partículas incidente deve ser homogêneo de modo que o número de raios-X produzidos seja proporcional ao número de átomos do elemento presente na amostra (De Pinho *et al*, 1979).

Ao analisar o espectro de raios-X de amostras multielementares se observa a superposição de linhas de raios-X dos elementos presentes. Para elementos com número atômico entre 20 e 50 é freqüente encontrar superposição da linha K_{β} de um elemento com número atômico Z com a linha K_{α} do elemento com número atômico $Z+1$. Para elementos com número atômico maior que 50 a superposição ocorre entre as linhas L_{α} e L_{β} (De Pinho *et al*, 1979).

Para identificar e quantificar os elementos presentes na amostra é preciso conhecer a contribuição de cada um deles ao espectro de raios-X total. A análise é feita com espectros padrões, estes são espectros obtidos a partir da irradiação de amostras monoelementares de elevado grau de pureza, nas mesmas condições que a amostra que desejamos analisar.

2.4.2. Espectrometria de massa por dessorção

Feixes de partículas rápidas ou fótons incidentes sobre a superfície de uma amostra induzem a *dessorção* de íons secundários que são acelerados por campos elétricos para uma região sem campo (tubo de tempo de voo). Os intervalos de tempo gastos pelos íons para percorrerem esta região são medidos com um conversor tempo amplitude (Macfarlene *et al.*, 1980).

Os feixes de íons mais usados nos processos de dessorção são Ar⁺, Xe⁺, Cs⁺ com energia entre 5 e 10 keV e os fragmentos de fissão do ²⁵²Cf com energia da ordem de centenas de MeV. Feixes de fótons gerados por lasers pulsados, na faixa do infravermelho, têm sido amplamente empregados no estudo de amostras biológicas.

A dessorção iônica produz, simultaneamente, ionização branda e fragmentação intensa. Deste modo, em um mesmo espectro de massa, é possível observar os íons moleculares e fragmentos que caracterizam a estrutura do composto. A principal vantagem da dessorção é produzir uma ionização branda que preserva as ligações químicas das moléculas.

A fissão espontânea do ²⁵²Cf fornece dois fragmentos que são emitidos, simultaneamente, em direções opostas. Um dos fragmentos colide com o alvo induzindo a dessorção de moléculas e/ou cluster de íons e o outro fragmento é detectado por um detector que gera o sinal (start) para iniciar a contagem de tempo de voo. Os íons secundários emitidos pelo alvo são acelerados na direção de um tubo de tempo de voo por um campo elétrico da ordem de 1 kV/mm, aplicado entre o alvo e a grade. Os íons com diferentes razões massa/carga atingem o conjunto de detectores micro-channel plate (MCP) localizado no final do tubo de tempo de voo, produzindo o sinal de parada para a medida de tempo de voo. O analisador TOF (Time of flight) baseia-se no fato de que íons de massas diferentes percorrem o tubo de tempo de voo em tempos diferentes.

A massa dos íons é relacionada ao tempo de voo pela expressão:

$$m = \frac{2Uq}{L^2} t_l^2$$

EQ 2.2

onde:

m = massa do íon;

U = voltagem aplicada à amostra;

q = carga;

L = comprimento do tubo de voo;

t = tempo de voo.

Esta aproximação é válida para íons secundários emitidos com energia inicial desprezível e para $d/L \ll 1$, onde d representa a distância entre a amostra e a grade.

A técnica ^{252}Cf -PDMS-TOF encontra-se descrita em detalhes na literatura (Ponciano, 1996; Macfarlane, 1999; Barofsky, 1994). Sua característica relevante entretanto é a capacidade de analisar íons moleculares desorvidos diretamente de amostras sólidas. O fenômeno básico empregado pelo método é o bombardeio da amostra por fragmentos de fissão provenientes da fonte de ^{252}Cf que causam uma erosão superficial denominada sputtering eletrônico: elétrons de valência e de camadas internas são removidos em femtossegundos pela passagem do projétil. O sólido relaxa localmente emitindo átomos, moléculas e agregados (neutros ou ionizados) que são característicos da amostra. Os íons positivos e negativos desorvidos dessa forma são analisados por tempo de voo e têm sua massa e abundância relativa determinadas.

Esta técnica consiste na exposição de uma amostra isolante a fragmentos de fissão produzidos por uma fonte radioativa de ^{252}Cf .

Na Figura 2.4 é apresentado um espectro de massa de um composto de urânio obtido com o espectrômetro de massa (PUC-RIO).

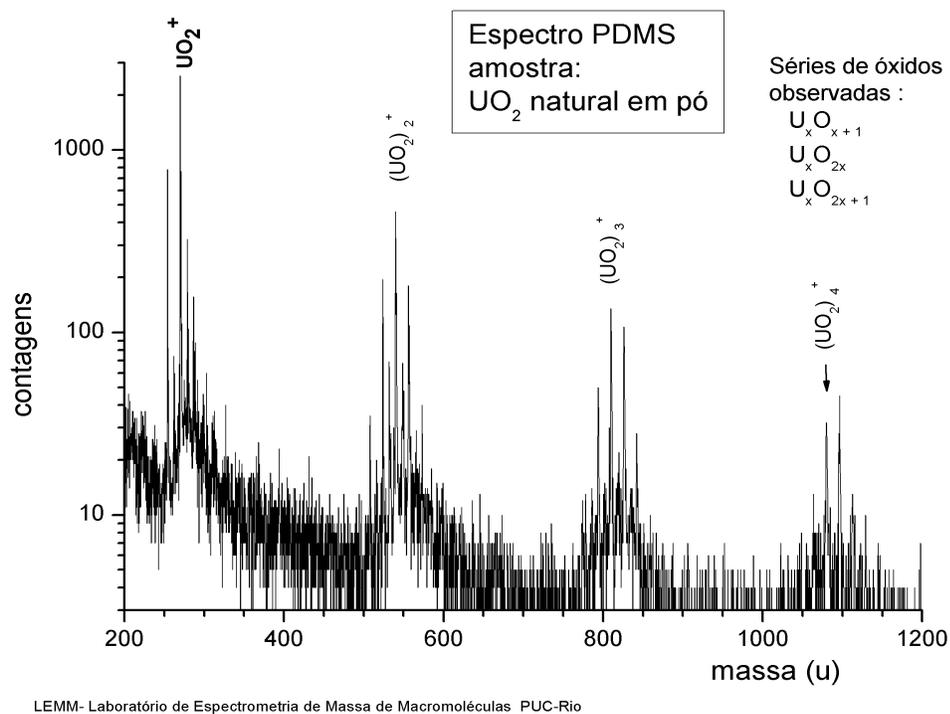


Figura 2.5 - Espectro de massa baseado na medida de tempo de voo de íons secundários dessorvidos da superfície de uma amostra contendo urânio.

É importante mencionar que a técnica ^{252}Cf -PDMS-TOF encontra-se disponível apenas em cerca de uma dezena de laboratórios em todo o mundo, sendo um deles localizado na PUC-Rio.

Capítulo III

DESCRIÇÃO DAS INSTALAÇÕES DE ESTUDO

3.1. Fábrica de Combustível Nuclear (FCN)

Ciclo do combustível nuclear (CCN) é o conjunto de processos que transformam o minério de urânio no combustível nuclear, incluindo sua utilização como fonte de alimentação de reatores e o reprocessamento do combustível nuclear. No Brasil, são realizadas as etapas de mineração, beneficiamento, reconversão, fabricação do combustível nuclear e produção de energia.

A mineração é a primeira etapa do CCN, a mina de urânio atualmente em exploração está localizada em Caetité, no estado da Bahia, e possui uma reserva estimada de 100.000 t. Nesta mina, o minério é extraído de uma cava a céu aberto e transportado para a unidade de beneficiamento. Nesta etapa, após a britagem, o minério é estocado em pilhas onde ocorre o processo de lixiviação ácida (lixiviação estática) com irrigação de ácido sulfúrico, obtendo-se um licor do urânio contido no minério. O concentrado de urânio é obtido através do processo de extração por solventes orgânicos, é precipitado, seco e acondicionado em tambores. Este precipitado é denominado de diuranato de amônia (DUA) ou *yellowcake*.

O DUA - ou *yellowcake* - é enviado ao exterior, onde é convertido em hexafluoreto de urânio (UF_6) e, posteriormente, enriquecido, através de processos aerodinâmicos, no isótopo ^{235}U , que é o isótopo de urânio mais adequado para a fissão em cadeia nos reatores de potência do tipo utilizado no Brasil.

Atualmente, as etapas de conversão do DUA em UF_6 e o posterior enriquecimento são realizadas no exterior pelo consórcio URENCO. Após o enriquecimento, o UF_6 é enviado ao Brasil, para a INB (Indústrias Nucleares do Brasil) Resende, onde são processadas as demais etapas do CCN.

A INB Resende está localizada na cidade de Resende, ao sul do estado do Rio de Janeiro e pertence à INB. Neste complexo industrial, atualmente, são realizadas as etapas de reconversão do UF_6 em UO_2 , a produção de pastilhas de

dióxido de urânio, a produção de componentes e a montagem do elemento combustível e a etapa de enriquecimento do urânio em escala industrial. A etapa de enriquecimento está para entrar em operação em escala industrial. Na Figura 3.1 é apresentada uma vista aérea da INB Resende.



Figura 3.1 – Vista aérea da INB Resende

A INB Resende é sub dividida em quatro fábricas, das quais apenas três estão em operação: Fábrica de Combustível Nuclear FCN – Reconversão; Fábrica de Combustível Nuclear (FCN) – Pastilhas; Fábrica de Combustível Nuclear (FCN) - Componentes e Montagem do Elemento Combustível. A quarta fábrica, Fábrica de Combustível Nuclear (FCN) – Enriquecimento, encontra-se em fase de implantação.

3.1.1. FCN - Reconversão

Nesta fábrica, o hexafluoreto de urânio (UF_6) é transformado no dióxido de urânio (UO_2). Na Figura 3.2 é apresentada uma vista aérea da FCN - Reconversão.



Figura 3.2 – Vista aérea da Fábrica de Combustível Nuclear - Reconversão

O UF₆ enriquecido em ²³⁵U (com teor máximo de 5%) é transportado em cilindros especiais de capacidade variada, sendo a carga máxima de 2.277 kg. Estes cilindros, ao chegarem à unidade, são estocados em um pátio a céu aberto. Na Figura 3.3 é apresentado um esquema simplificado do processo de reconversão.

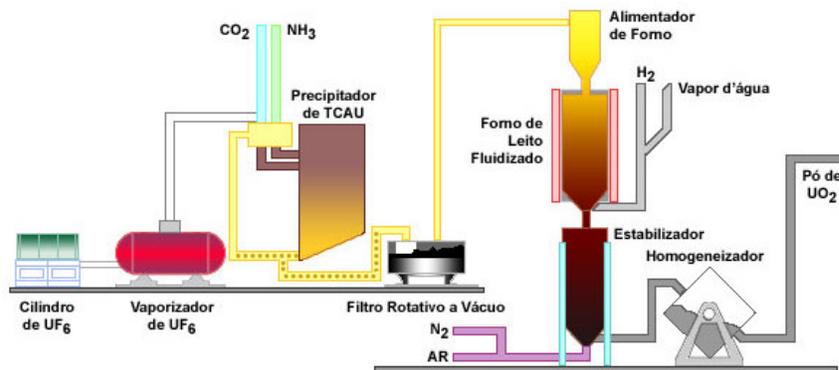
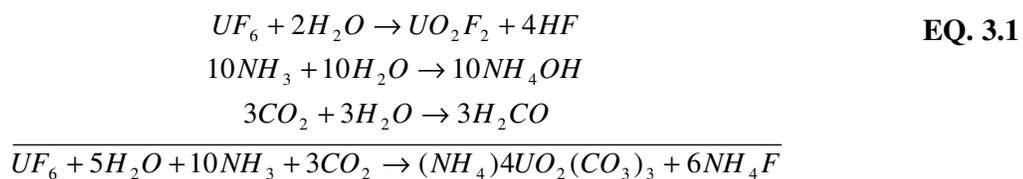


Figura 3.3 – Esquema da produção do dióxido de urânio

As principais etapas do processo de reconversão do UF₆ e produção do UO₂ são: vaporização, precipitação do TCAU (tricarbonato de amônio e uranila), filtração e produção de UO₂.

Na etapa de vaporização o cilindro de UF₆ é transportado para interior da autoclave, o cilindro é acoplado a uma mangueira no interior da autoclave, sendo o cilindro aquecido até 100°C. O UF₆ gasoso é misturado ao gás carbônico (CO₂), gás amônia (NH₃) e vapor d’água para produção do TCAU. Esta reação química ocorre em um reator despressurizado, com seção transversal retangular, de geometria tal que impede qualquer reação de criticalidade.

As reações químicas que ocorrem neste processo são representadas na equação 3.1.



A suspensão de TCAU é bombeada do precipitador para os filtros rotativos a vácuo. Durante este processo, o sobrenadante é enviado para o tratamento de efluentes onde é feita a recuperação do urânio enquanto o TCAU é transportado para o forno de leito fluidizado onde ocorre a redução química.

No forno de leito fluidizado, o TCAU, juntamente com o hidrogênio e vapor d'água, é aquecido a 600°C, onde ocorre uma reação química de redução. Sendo obtido nesta etapa o UO_2 , ainda na forma instável.

O produto da redução, o UO_2 instável, é transportado para o estabilizador, onde é adicionado N_2 gasoso e ar para obtenção de um composto estável.

Após a estabilização, o UO_2 é transportado para grandes caixas giratórias misturadoras, os homogeneizadores, onde ao UO_2 (na forma de pó) é adicionado outro composto de urânio, o U_3O_8 . A mistura de compostos de urânio resultante será utilizada na fabricação das pastilhas de urânio.

3.1.2. Pastilhas

Nesta fábrica são produzidas as pastilhas de UO_2 . Na Figura 3.4 é apresentado um esquema simplificado do processo de fabricação de pastilhas.

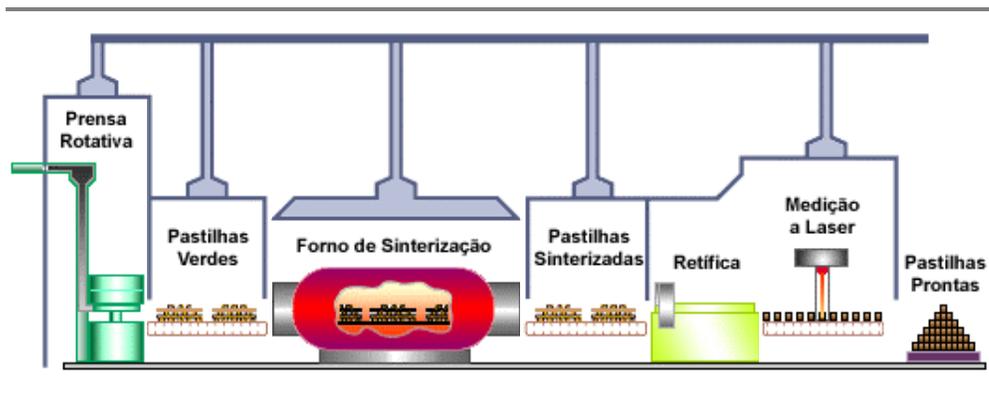


Figura 3.4 – Esquema simplificado da fabricação de pastilhas de UO_2

A mistura homogeneizada de UO_2 e U_3O_8 é transportada pneumáticamente para a peneira, onde o pó é separado do ar de transporte por um ciclone e direcionado até a peneira vibratória que leva a fração com diâmetro menor que 100 μm até a prensa. A fração com diâmetro acima deste valor passa por um processo de maceração e

é reintroduzida no homogeneizador. A fabricação da pastilha é feita em uma prensa rotativa automática. As pastilhas recém produzidas são, devido à sua fragilidade, denominadas “pastilhas verdes” e possuem forma cilíndrica.

As “pastilhas verdes” passam pelo processo de sinterização que ocorre em um forno denominado na instalação de *forno de sinterização*. Neste forno, as pastilhas são sinterizadas a 1 750 °C, adquirindo a resistência necessária de modo a satisfazer as especificações técnicas.

As pastilhas sinterizadas são enviadas a etapa de retificação para o ajuste fino de suas dimensões. As dimensões de todas as pastilhas sinterizadas são verificadas através de medição a laser que rejeita aquelas cujas dimensões estiverem fora dos padrões adequados.

3.1.3. FCN - Componentes e Montagem do Elemento Combustível

A montagem do elemento combustível é, atualmente, a última etapa do CCN realizada em Resende. Nesta etapa são montados os conjuntos de elemento combustível.

O elemento combustível é composto pelas pastilhas de UO_2 montadas em tubos de uma liga metálica especial conhecida como zircaloy formando um conjunto de varetas, cuja estrutura é mantida rígida por reticulados chamados grades espaçadoras.

3.2. Instituto de Engenharia Nuclear (IEN)

A Comissão de Energia Nuclear (CNEN) é uma autarquia federal responsável pela orientação, supervisão e fiscalização, estabelecimento de normas e regulamentos em radioproteção e licenciamento, fiscalização e controle da atividade nuclear no Brasil. Ela é vinculada ao Ministério da Ciência e Tecnologia e, para executar suas atividades, possui 14 unidades localizadas em nove estados.

O Instituto de Engenharia Nuclear (IEN) é uma das unidades da CNEN localizadas no estado do Rio de Janeiro. Este instituto está situado na Ilha do Fundão, nas margens da Baía de Guanabara, e, além do IEN, concentra a Universidade Federal do Rio de Janeiro (UFRJ) com seus diversos institutos de pesquisa, um estaleiro e uma refinaria de petróleo. Duas das principais vias de acesso à cidade do Rio de Janeiro, a via expressa “Linha Vermelha” e a Av. Brasil, estão próximas ao IEN. Por estas vias

trafegam veículos de carga e passageiros que entram e saem da cidade e que podem gerar partículas contendo metais provenientes da queima de combustível. Na Figura 3.5 é apresentada uma vista aérea do IEN e a Figura 3.6 apresenta um mapa da Ilha do Fundão com a localização do instituto.



Figura 3.5 – Vista aérea do Instituto de Engenharia Nuclear.



Figura 3.6 – Mapa da Ilha do Fundão com a localização do Instituto de Engenharia Nuclear

No IEN são realizadas diversas atividades, incluindo na área de química onde são desenvolvidos projetos para obtenção de materiais estratégicos de elevada pureza e alto valor agregado, visando atender a indústrias e empresas.

No Laboratório de Processos do Departamento de Química do IEN são desenvolvidos processos químicos para beneficiamento de minérios para obtenção de produtos (concentrados) com alto grau de pureza. Dentre estes projetos podemos destacar os projetos para beneficiamento do anatásio para obtenção do Titânio com alto grau de pureza.

3.3. Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD)

O Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD) é um dos institutos da CNEN e está localizado na Zona Oeste do Rio de Janeiro. Esta é uma área residencial próxima aos 18 Km de praia da Barra da Tijuca e das três grandes lagoas que formam o Complexo Lagunar de Jacarepaguá. Na Figura 3.7 é apresentada uma vista aérea do IRD.



Figura 3.7 – Vista aérea do Instituto de Radioproteção e Dosimetria com uma vista ao fundo da praia do Recreio dos Bandeirantes

O IRD foi criado há mais de 30 anos. Ao longo deste período o IRD tem se firmado cada vez mais como um instituto de pesquisa científica, através da realização de pesquisas e de grandes projetos visando o desenvolvimento técnico-científico do país, sempre buscando a consolidação do instituto como um Centro de Excelência nas áreas de radioproteção e de metrologia das radiações ionizantes. Atualmente as principais áreas de atuação do IRD são: proteção radiológica ambiental; proteção radiológica de trabalhadores ocupacionalmente expostos; proteção radiológica de pacientes submetidos a procedimentos de medicina nuclear, radiodiagnóstico e radioterapia; metrologia das radiações ionizantes; resposta a situações de emergência radiológica e nuclear.

Capítulo IV

METODOLOGIA

4.1. Caracterização de Aerossóis

A caracterização dos aerossóis foi realizada identificando os elementos presentes, determinando a concentração destes nas frações respirável e inalável do aerossol e o tamanho das partículas. As amostras de aerossóis foram coletadas utilizando amostradores seletivos: impactador em cascata (IC), para determinação das concentrações dos metais e para a determinação da distribuição de tamanho das partículas; amostradores do tipo Grosso e Fino (AGF), para determinação da concentração dos metais e radionuclídeos contidos nas partículas; e amostradores pessoais com ciclone (APC) para determinação da concentração dos metais na fração respirável.

Amostradores de área do tipo AGF e IC foram colocados em locais previamente selecionados de modo a caracterizar a exposição do trabalhador. Todos os amostradores foram colocados a uma altura de 1,5 m do solo. O volume amostrado foi medido através de um integrador de volume conectado ao amostrador. O ar era forçado para o interior dos amostradores usando bombas de vácuo previamente calibradas. A calibração foi realizada utilizando um calibrador primário de vazão da Gillian®.

Na FCN Resende, foi solicitado a dois trabalhadores que realizavam suas funções na etapa de precipitação do TCAU e a um trabalhador na etapa de retificação que usassem amostradores pessoais com ciclone. O volume amostrado foi estimado através da medida de vazão e do tempo de amostragem. Assim como os amostradores de área, os amostradores pessoais com ciclone também foram previamente calibrados usando um calibrador de vazão primário da Gillian®.

A dois trabalhadores, que usaram amostradores pessoais com ciclone, foi solicitado que fornecessem amostras de excreta (urina).

As amostras de aerossóis foram coletadas na INB Resende (FCN - Reconversão, FCN – Pastilha), no Laboratório de Processo do Instituto de Engenharia Nuclear (Lab-IEN) e no Instituto de Radioproteção e Dosimetria junto ao prédio do SEMIN (IRD-SEMIN).

As amostras de aerossóis coletadas com impactador em cascata, com amostrador AGF, com amostradores pessoais com ciclone e as amostras de excreta foram analisadas pela técnica de PIXE (Particle Induced X rays Emission) para identificação e quantificação dos elementos presentes. Foram selecionadas amostras de aerossóis coletadas com amostrador AGF e com amostradores pessoais com ciclone para análise por espectrometria alfa para determinação da concentração de ^{238}U e ^{234}U . A amostra de aerossol coletada no primeiro estágio do IC, que foi localizado junto ao filtro na etapa de precipitação do TCAU (FCN - Reconversão), foi analisada pela técnica de ^{252}Cf -PDMS para identificação dos compostos químicos presentes.

4.1.1. Coleta de amostras de aerossóis

As amostras de aerossóis foram coletadas na Fábrica de Combustível Nuclear nas FCN-Reconversão e FCN-Pastilhas nos meses de março, abril e maio de 2007, utilizando os amostradores AGF e IC. Foram selecionados três trabalhadores para utilizarem amostradores pessoais com ciclone. Na Tabela 4.1 são apresentados os locais, períodos coleta, assim como os amostradores utilizados.

Tabela 4.1. Relação dos locais e pontos de coleta na FCN indicando os períodos de amostragem e os amostradores utilizados para cada.

Instalação	Local de Coleta	Período	Amostrador
FCN – Unidade de Reconversão	Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo	23/04 – 04/05	APC
	Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo	23/04 – 04/05	APC
	Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo	30/03 - 04/05	IC
	Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo	30/03 – 04/05	AGF
FCN – Unidade de Fabricação de Pastilhas	Móvel (Filtro Rotativo + Forno de Leito Fluidizado)	25/04 – 19/05	IC
	Retífica	04/05*	APC
	Retífica	04/05 – 19/05	AGF
	Retífica	04/05 – 19/05	IC

* Coleta realizada apenas nesta data

As amostras de aerossóis foram coletadas no Instituto de Engenharia Nuclear (IEN) de 01 a 07 de fevereiro de 2007. O local selecionado para coleta foi o Laboratório de Processos do Departamento de química. Na Tabela 4.2 são apresentados os locais de coleta e os amostradores utilizados.

Tabela 4.2. Relação dos locais de coleta no IEN, identificando sua localização e os amostradores utilizados em cada ponto.

Local	Amostrador	Observações
Balança	AGF	Próximo ao moinho de bola, peneiradores e separador
Capela	AGF	Próximo ao Spray Dry e à Bancada
Reator	IC	Próximo ao forno

No Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD) foram coletadas amostras utilizando amostradores AGF e IC. O local de coleta selecionado foi o exterior do prédio do Serviço de Monitoração Individual. Na Tabela 4.3 são apresentados os períodos de coleta e o amostrador utilizado.

Tabela 4.3. Relação dos períodos de coleta no IRD indicando o amostrador utilizado em cada período.

Período	Amostrador
15/12 – 28/12/2006	IC
05/03 – 09/03/2007	AGF
29/11 – 06/12/2007	AGF

a) Amostradores portáteis com ciclone

Como os trabalhadores movimentam-se dentro da instalação, os amostradores IC e AGF podem não representar adequadamente a incorporação de partículas. Para determinar as concentrações dos metais de interesse respirados pelos trabalhadores

durante sua rotina de trabalho, eles utilizaram amostradores portáteis com ciclone, que selecionam as partículas na fração respirável do aerossol. Na Figura 4.1 é apresentada uma fotografia do amostrador portátil com ciclone utilizado neste estudo.



Figura 4.1. Fotografia mostrando o amostrador portátil com ciclone utilizado neste estudo para coleta de aerossóis na fração respirável.

Estes amostradores constituem-se de um conjunto de bomba de aspiração e medidor de fluxo (rotâmetro), que é colocado à altura da cintura do trabalhador, e de um coletor de poeira que é preso junto à lapela do uniforme (Lippmann, 1974). O princípio de funcionamento destes amostradores baseia-se nas propriedades aerodinâmicas das partículas (Hinds, 1998). Partículas finas ($< 2,5 \mu\text{m}$) foram depositadas sobre filtros Nuclepore com porosidade de $0,4 \mu\text{m}$ com 37 mm de diâmetro e filtros (Whatman GF/A) de fibra de vidro com 37 mm de diâmetro. O diâmetro de corte do ciclone é de $2,4 \mu\text{m}$ e a vazão de operação foi de 2 L/min. Estes valores foram mantidos constantes, pois uma variação de 10% na vazão acarreta uma diferença de 1% no valor do diâmetro de corte (Dias da Cunha, 1997).

As amostras coletadas em filtros de fibra de vidro foram analisadas para determinação da concentração dos radionuclídeos ^{238}U e ^{234}U , emissores de partículas α , e aquelas coletadas em filtros Nuclepore foram analisadas por PIXE para identificação e quantificação dos elementos presentes na fração respirável do aerossol.

b) Amostrador Grosso e Fino (AGF)

O princípio de funcionamento dos amostradores grosso e fino – AGF baseia-se nas propriedades aerodinâmicas das partículas. Como os poros dos filtros podem ser considerados como orifícios perfeitos, a eficiência de retenção depende do tamanho da partícula e da vazão, sendo determinado um diâmetro de corte para cada filtro (John *et al*, 1983a e 1983b).

As amostras de aerossóis foram coletadas sobre filtros de policarbonato, Nuclepore, com diâmetro de 47 mm e porosidade de 8,0 (fração inalável) e 0,4 μm (fração respirável). A vazão de operação foi mantida constante em 17 L/min, e o volume amostrado foi medido utilizando-se um integrador de volume. Na Figura 4.2 é apresentada uma fotografia do arranjo experimental utilizado na coleta de aerossóis.



Figura 4.2. Fotografia do arranjo experimental na coleta de aerossóis usando o amostrador grosso e fino (AGF).

c) Impactador em Cascata (IC)

Os IC são amostradores inerciais que coletam partículas em diferentes faixas de tamanho. O amostrador possui seis estágios com os seguintes diâmetro de corte: 0,64; 1,0; 2,4; 4,7; 9,9 e 19,9 μm e a vazão operacional de 12 L/min (Dias da Cunha *et*

al., 1998). O tempo de amostragem varia para cada coleta, de modo a garantir que não haja saturação dos estágios do impactador. O volume de ar amostrado é determinado por um integrador de volume colocado entre o impactador e a bomba de vácuo. A superfície de impactação é um filme de *Mylar*. Para melhorar a eficiência de coleta de partículas sólidas a superfície é coberta com uma fina película de vaselina diluída em tolueno 2%. O arranjo experimental do impactador em cascata, com o integrador de volume e a bomba de vácuo é apresentado na Figura 4.3 (Dias da Cunha, 1997).



Figura 4.3. Fotografia mostrando o arranjo experimental para coleta de aerossóis usando o amostrador do tipo impactador em cascata (IC).

A quantificação dos elementos presentes nas partículas impactadas em cada estágio do impactador foi determinada pela técnica de PIXE. A determinação do tamanho das partículas (MMAD – *Mass Median Aerodynamic Diameter*) foi feita com base na distribuição de massa dos elementos nos estágios do IC (Dias da Cunha, 1997).

4.2. Amostras de Urina

Na FCN-Resende, foi solicitado a dois trabalhadores que desempenhavam suas funções na etapa de precipitação do TCAU e que se dispusessem a colaborar com o projeto fornecendo amostras de excreta (urina).

As amostras foram coletadas durante 24 h, em recipientes de polietileno com capacidade de 1 L previamente lavados com água destilada e uma solução de ácido nítrico 0,1 M, lacradas e mantidas sob refrigeração até o processamento no laboratório.

No Laboratório de Caracterização de Aerossóis do SEMIN – IRD, as amostras de urina foram homogeneizadas e, em seguida, evaporadas em chapa aquecedora a uma temperatura de 100°C até atingirem um volume de aproximadamente 500 mL. A este volume foram adicionados 20 mL de HNO₃ concentrado para a eliminação de compostos orgânicos (digestão química).

Após a digestão química, as amostras foram novamente evaporadas e concentradas a um volume aproximado de 50 mL, neste volume foi feita uma dissolução do precipitado com o acréscimo de HNO₃ 1M. Após a dissolução do precipitado, as amostras foram levadas a um volume final de 10 mL.

Foi retirada uma alíquota de cada amostra e uma gota de 3 µL foi depositada sobre um filme de *Mylar* para análise pela técnica de PIXE.

4.3. Técnicas Analíticas

4.3.1. Técnica de PIXE

As amostras de aerossóis e de excreta (urina) dos trabalhadores foram analisadas pelo método PIXE (Particle Induced X Ray Emission) para determinação da concentração elementar.

As amostras foram irradiadas na câmara de espalhamento localizada na linha a 15° do acelerador eletrostático Van de Graaff, de 4 MV, do Departamento de Física da Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro (PUC-RIO). Foi usado um feixe de prótons de 2,0 MeV e uma corrente média no alvo de 20 nA.

Na Figura 4.4 é mostrado um esquema simplificado do arranjo experimental da técnica e na Figura 4.5 é mostrada uma vista parcial do arranjo usado na linha de PIXE do acelerador van de Graaff. No primeiro plano pode ser visto o copo de Faraday usado para medir a carga, o visor usado para posicionar a amostra, a câmara em azul e a torre suporte de alvos (amostras).

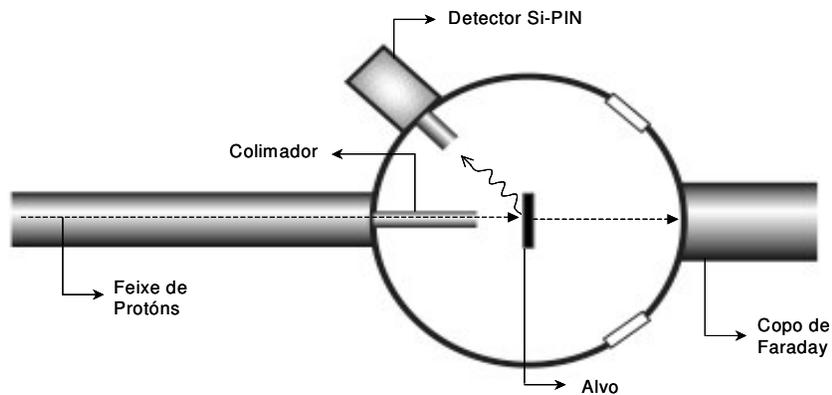


Figura 4.4. Esquema simplificado do arranjo experimental utilizado.

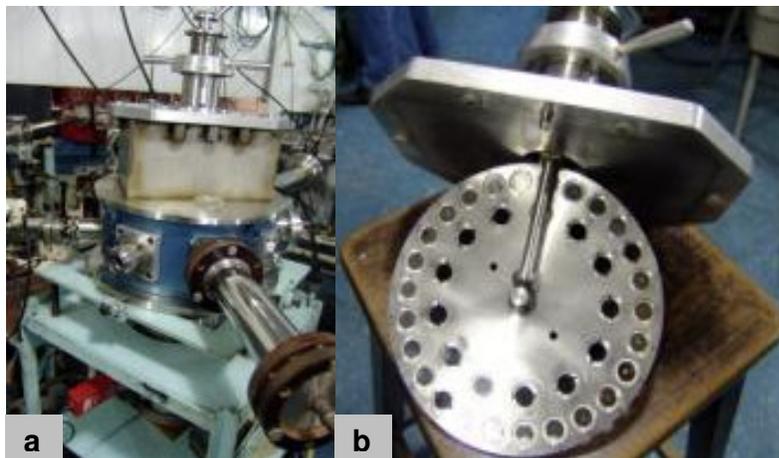


Figura 4.5. (a) Arranjo experimental da linha de PIXE no acelerador Van der Graaff da PUC-RIO. (b) Detalhe da torre suporte de amostra.

As amostras foram colocadas na torre de suporte da câmara, que permite colocar 39 alvos em seu interior (câmara) simultaneamente, ela foi disposta

perpendicularmente à direção do feixe de prótons. A pressão interna na câmara de espalhamento é inferior a 2×10^{-6} torr.

Na entrada da câmara estão localizados dois colimadores de 4 e 5 mm de diâmetro cada um. O copo de Faraday, utilizado para determinação da corrente de que passa pelo alvo, colocado diametralmente oposto à entrada do feixe na câmara e o detector de raios X colocado a 135° em relação à direção do feixe incidente sobre as amostras. Os raios X característicos emitidos pelos elementos presentes nas amostras são detectados por um detector do tipo Si-PIN, com janela de berílio, modelo Amptex XRT-100. Os espectros de raios X são analisados em um analisador multicanal (marca NORLAND) e armazenados em um computador conectado à saída do multicanal situado após o alvo. A carga e o tempo de irradiação são contados utilizando um Timer Counter, modelo Ortec EG7G 994.

a) Calibração

A curva de eficiência absoluta é determinada irradiando-se alvos padrões conhecidos nas mesmas condições experimentais das amostras e determinando as relações K_α/K_β para cada elemento. A curva foi obtida normalizando a razão K_α/K_β do elemento Z+1 em relação à razão K_α/K_β do elemento Z. Este procedimento, descrito em detalhes na literatura, evita a necessidade de correções devido à geometria do arranjo experimental (Paschoa, A.S. et al., 1977; Dias da Cunha, 1988). A curva de eficiência absoluta está representada na Figura 4.6.

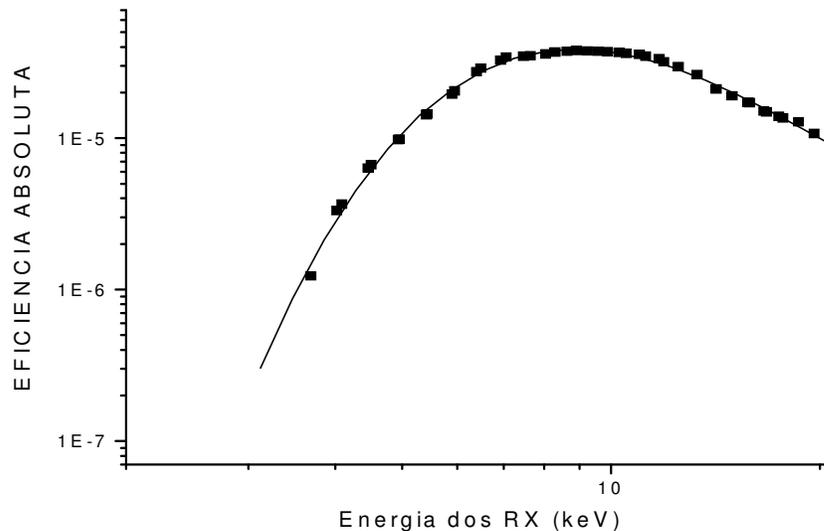


Figura 4.6. Curva de eficiência absoluta do detector de Raios-X.

Como absorvedor, foi utilizada uma folha de Al com 0,2 mm de espessura na janela do detector de raios X. O uso de absorvedores sobre a janela do detector tem por objetivo atenuar os raios X das linhas L, M, N,... de baixa energia, possibilitando obter-se um espectro com baixo ruído de fundo e, portanto, mais fácil de analisar. Uma desvantagem no uso de absorvedores é a atenuação dos raios X de elementos leves como S, Si e K.

b) Limite de detecção

O limite de detecção do método PIXE foi determinado pela seguinte equação:

$$LMD = 3\sqrt{N_{XBg}} \tag{EQ. 4.1}$$

onde:

N_{XBg} - número de contagem da radiação de fundo na região de interesse.

O limite de detecção da técnica de PIXE para cada elemento depende da energia das partículas incidentes, da seção de choque dos elementos irradiados e do arranjo experimental. Devido à variação da seção de choque, foram determinadas duas curvas de limite de detecção, uma para os elementos leves ($Z \leq 42$), identificados pelas linhas K_{α} e outra para os elementos pesados ($Z \geq 43$), identificados pelas linhas L_{α} . Nas Figuras 4.7 e 4.8, são apresentadas as curvas dos limites de detecção para os elementos de linhas de energia K_{α} e L_{α} , respectivamente. Estas curvas foram ajustadas aos pontos experimentais, com auxílio do programa Origin® 6.0 (Microcal Software Inc.).

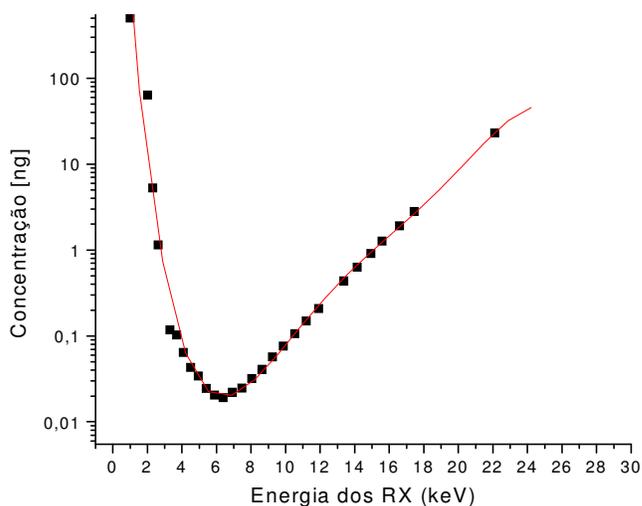


Figura 4.7. Curva do limite de detecção do método PIXE, para os elementos leves ($Z \leq 42$), identificados pelas linhas de energia K_{α} .

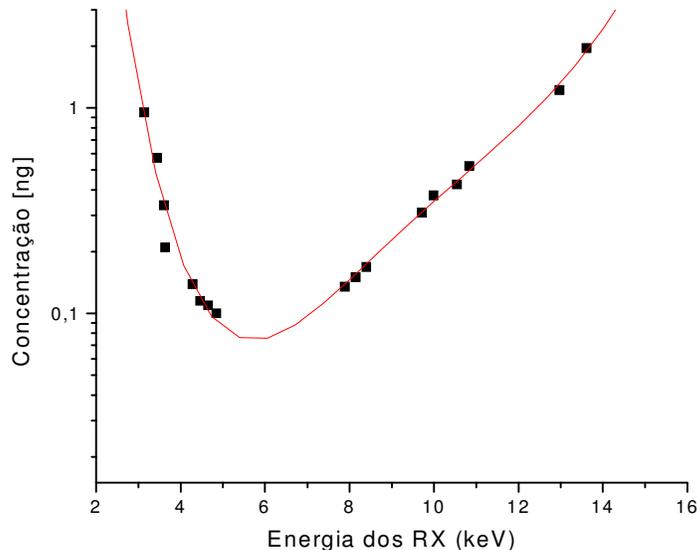


Figura 4.8. Curva do limite de detecção do método PIXE, para os elementos pesados $Z \geq 43$), identificados pelas linhas de energia $L\alpha$.

O limite de detecção (LD) da técnica varia para cada elemento, estando na faixa de 0,018 a 500 ng para todos os elementos da Tabela Periódica. O limite de detecção em massa depositada no alvo para o U é 1,96 ng.

A uniformidade do feixe foi obtida com o sistema de colimadores utilizados. Assim, ao garantirmos que toda amostra estava dentro da área do feixe, foram eliminadas as incertezas associadas à não uniformidade do feixe e não homogeneidade da amostra.

A distribuição da massa depositada em cada estágio do impactador em cascata não foi homogênea. O primeiro estágio do impactador possui área maior que a do feixe, assim, não foi considerada a massa coletada neste estágio para os cálculos de MMAD e da concentração (Dias da Cunha, 1988).

c) Análise de espectros

Os espectros multielementares obtidos das amostras foram analisados através do programa de computador FITU, desenvolvido para este fim no laboratório

Van de Graaff (Barros Leite et al, 1978). A contribuição de cada elemento presente na amostra foi determinada comparando-se ao espectro padrão. O espectro padrão é obtido irradiando-se, nas mesmas condições experimentais das amostras, um alvo do elemento de interesse. O espectro padrão (espectro monoelementar) é sobreposto ao espectro da amostra (espectro multielementar). O alvo padrão é normalizado em relação à contribuição do elemento no espectro da amostra e em seguida é subtraída a contribuição do elemento no espectro da amostra. Os espectros dos elementos com $Z \leq 42$ (Mo) são normalizados em relação às linhas K_{α} e K_{β} e os espectros dos elementos mais pesados $Z \geq 42$ são normalizados em relação às linhas L_{α} e L_{β} .

4.4. Técnica de PDMS

O primeiro estágio do IC coletado próximo ao filtro rotativo na FCN – unidade de reconversão foi enviado ao laboratório van de Graaff da PUC-RIO para análise pela técnica de ^{252}Cf -PDMS. Na Figura 4.9 é apresentado um esquema simplificado do arranjo experimental da técnica.

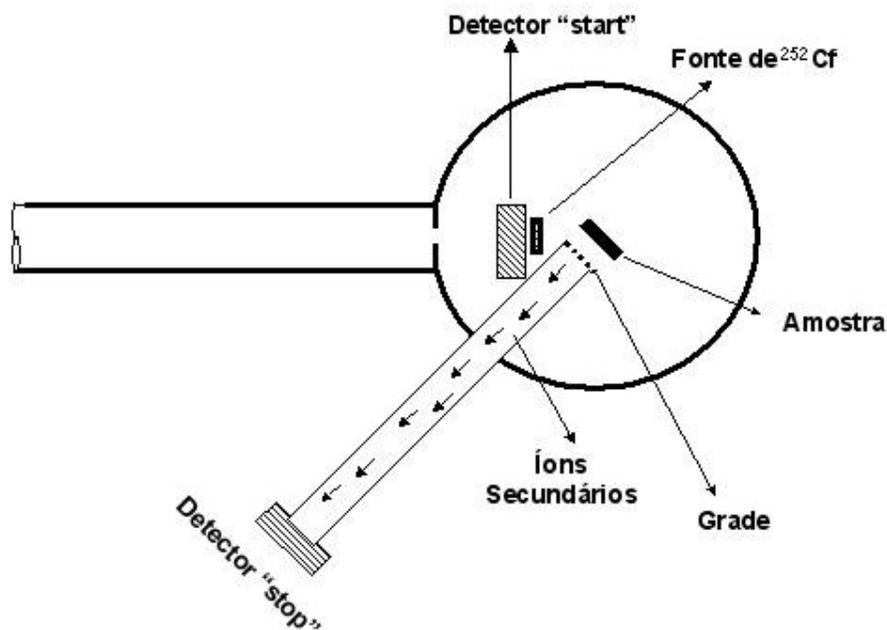


Figura 4.9. Esquema simplificado do arranjo experimental utilizado para a análise de PDMS.

A tensão aplicada na amostra foi de + 1kV. A grade da entrada do tubo de vôo (região livre de campo) dista 0,5 cm da superfície da amostra. A dessorção dos íons foi induzida por uma fonte de ^{252}Cf pontual de 50 nCi. Como detector do sinal de start e stop foram utilizados dois detectores Micro Channel Plate (MCP).

4.5. Espectrometria Alfa (α)

Além da aplicação das técnicas de PIXE e ^{252}Cf -PDMS algumas amostras foram analisadas por espectrometria alfa para a determinação de ^{238}U e ^{234}U . Na Tabela 4.4 estão relacionadas as amostras analisadas por espectrometria α .

Tabela 4.4. Relação das amostras analisadas por espectrometria α

Local	Ponto de Coleta	Amostrador
IEN	Balança	AGF
IEN	Capela	AGF
IEN	Reator	IC – filtro final
IRD	Fundos Semin	AGF
FCN	Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo	AGF
FCN	Retífica	AGF
FCN	Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo	APC
FCN	Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo	APC
FCN	Retífica	APC
FCN	Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo	IC – Filtro Final
FCN	Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo	IC – Filtro Final

Esta técnica analítica requer que os radionuclídeos de interesse sejam pré-concentrados antes da contagem dos emissores alfa. O processo de pré-concentração

inclui 2 etapas: abertura das amostras por via úmida e separação radioquímica dos radionuclídeos de interesse (separação cromatográfica). Após a separação as amostras são analisadas por espectrometria α para determinação da concentração de ^{238}U e ^{234}U

4.5.1. Abertura das amostras e separação cromatográfica

A abertura das amostras consiste na eliminação de compostos orgânicos adicionando soluções ácidas e calor à amostra.

Cada filtro contendo a amostra de aerossol coletada é colocado em um béquer de Teflon de capacidade de 250 mL, sendo adicionado o padrão interno (traçador) de urânio (^{232}U) e aproximadamente 20 mL de ácido nítrico (HNO_3) concentrado, esta mistura é mantida em refluxo a 200°C durante aproximadamente 72 horas.

Após a abertura, a amostra é avolumada para 1000 mL e eluída em uma coluna de vidro contendo 1,5 g (correspondente a aproximadamente 2,5 cm de altura) de uma mistura de TOPO (óxido de tri-n-octil fosfina) e Sílica gel diluída em HNO_3 . Este processo é conhecido como separação cromatográfica. Na Figura 4.10 é apresentada a fotografia do arranjo experimental usado para a extração dos radionuclídeos usando a coluna de separação cromatográfica (extração seqüencial) (Julião et al., 2003).

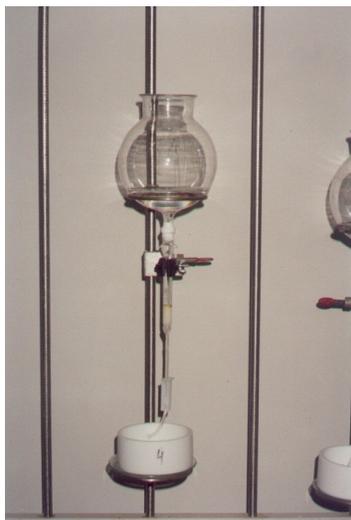


Figura 4.10. Arranjo experimental da coluna de separação cromatográfica.

O processamento inicial ocorre a uma velocidade de extração de 10 mL/min, e o urânio é retido na coluna para posterior eluição. O urânio é eluído com 130 mL de

fluoreto de amônio (NH_4F) 1 M, a uma vazão de 1 mL/min, sendo acondicionado em recipientes de Teflon adequados.

a) Pré-concentração do urânio

Após a eluição, a solução de NH_4F (1 mol/L) contendo urânio é pré-concentrada. A solução é evaporada até quase secura sendo adicionadas gotas de H_2O_2 e 5 ml de HNO_3 concentrado, tratada e levada para a célula de deposição.

Na célula de deposição, o urânio é adsorvido em uma plaqueta de aço inoxidável com 2,5 cm de diâmetro, revestida com um filme de TOPO com agitação mecânica durante 4 horas, em uma velocidade de rotação de cerca de 500 rpm. Após a deposição a plaqueta é calcinada a 400°C por 4 horas. A amostra é contada no sistema de espectrometria alfa por 60 000 segundos. Na Figura 4.11 é apresentado um esquema simplificado da célula de deposição de urânio.

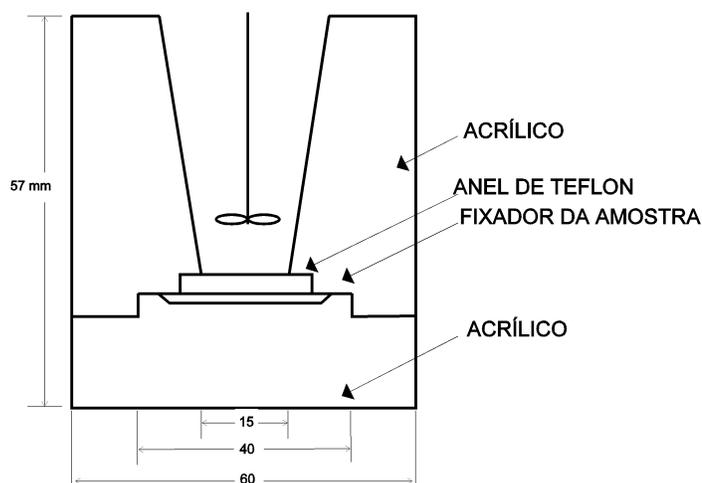


Figura 4.11. Esquema simplificado da célula de deposição de urânio.

4.5.2. Sistema de Espectrometria α

As amostras são analisadas no sistema de Espectrometria Alfa do Laboratório de Bioanálises *In Vitro* do Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD).

As amostras de U são contadas utilizando um sistema de espectrometria alfa da marca

ORTEC modelo 576 (EC&87 ORTEC) com detector semicondutor de Si do tipo barreira de superfície. O programa computacional Maestro II ORTEC (versão 3.0) é utilizado para analisar os espectros de emissões alfa.

a) Cálculo da concentração de isótopos de interesse

A concentração dos isótopos de interesse (^{238}U e ^{234}U) é determinada em relação ao padrão interno, considerando a eficiência do arranjo experimental.

A eficiência do arranjo experimental é determinada considerando o padrão interno de cada amostra. Essa eficiência é calculada através da EQ. 4.2:

$$\varepsilon = \frac{N_T}{t \times m_g \times A_{\text{esp}}} \quad \text{EQ. 4.2}$$

onde:

ε – eficiência

N_T - contagens na região de energia do isótopo de interesse;

t – tempo de contagem [segundo]

m_g - Massa da gota do traçador [g]

A_{esp} - Atividade específica da gota do traçador [Bq/g] ou [dps/g] ou [dpm/g].

O rendimento químico do processo é calculado através da EQ. 4.3:

$$RQ = \frac{R_i}{T_c \times A_T \times \varepsilon_{\text{DETECTOR}}} \quad \text{EQ. 4.3}$$

onde:

R_1 – Contagem total do traçador;

T_c – Tempo de contagem [minuto];

A_t – Atividade adicionada do traçador [dpm];

$\varepsilon_{\text{detector}}$ – eficiência do detector.

A atividade correspondente a cada radionuclídeo presente na amostra é determinada pela EQ. 4.4.:

$$A(i) = \frac{N_{xi}}{\varepsilon \times t} \text{ [Bq]} \quad \text{EQ. 4.4}$$

onde:

$A(i)$ = atividade do isótopo i na amostra [Bq]

N_{xi} = área na região do isótopo i

t = tempo de contagem [segundo]

ε = eficiência do arranjo experimental

A concentração do isótopo de interesse é calculada pela EQ. 4.5:

$$C = \frac{A}{V} \text{ Bq.m}^{-3} \quad \text{EQ. 4.5}$$

onde:

C – concentração do isótopo de interesse (Bq/m^3)

A – atividade presente na amostra devido ao isótopo de interesse (Bq)

V – volume de ar amostrado (m^3)

4.5.2 Limite de detecção da técnica de espectrometria alfa

O arranjo experimental usado para contagem alfa apresentou baixo ruído de fundo na região de interesse. Os limites de detecção, para cada isótopo de interesse, são apresentados na Tabela 4.5.

Tabela 4.5. Limite de detecção do urânio, na análise por espectrometria α .

Atividade mBq	
^{238}U	^{234}U
0,9	1,0

Os limites de concentração dos radionuclídeos e dos elementos analisados nas amostras coletadas foram calculados para cada tipo de amostra e método de amostragem utilizado. Foram calculados dividindo-se o limite de detecção da técnica analítica utilizada, pelo volume médio amostrado.

Nas Tabelas 4.6 e 4.7 são apresentados os limites de concentração dos elementos de interesse, calculados para os diferentes tipos de amostras analisadas pelo método PIXE e espectrometria alfa, respectivamente.

Tabela 4.6. Limites de concentração de U em massa e o equivalente em atividade, calculados para cada tipo de amostra analisada pelo método PIXE.

Elemento	Amostras			
	Ar			Urina
	Limite de concentração $\mu\text{g}/\text{m}^3$			Limite de concentração $\mu\text{g}/\text{L}$
IC	AGF	APC		
U	$3,34 \times 10^{-4}$	$3,00 \times 10^{-4}$	$1,92 \times 10^{-3}$	$3,92 \times 10^{-3}$
	Limite de concentração Bq/ m^3			Limite de concentração Bq/L
^{238}U	$0,4 \times 10^{-5}$	$0,4 \times 10^{-5}$	$0,24 \times 10^{-4}$	$4,8 \times 10^{-5}$

Tabela 4.7. Limites de concentração dos isótopos de U calculados para cada tipo de amostra analisada por espectrometria alfa.

Radionuclídeo	Amostras de ar	
	Limite de concentração mBq/m ³	
	AGF	APC
²³⁸ U	1,38 x10 ⁻¹	1,08 x10 ⁻¹
²³⁴ U	1,53 x10 ⁻¹	1,23 x10 ⁻¹

Capítulo V

RESULTADOS E DISCUSSÃO

As amostras de aerossóis coletadas com o IC nas instalações foram analisadas pela técnica de PIXE para determinar as concentrações dos elementos contidos nas partículas que impactaram nas superfícies de impactação de cada estágio. Os MMAD's (MMAD - Diâmetro Aerodinâmico Mediano de Massa) das partículas contendo os elementos identificados foram determinados com base na distribuição de massa nos estágios do IC.

Na FCN foram coletadas amostras de aerossóis com IC em três etapas: Precipitação e Filtração do TCAU; Redução do UO_2 no forno de Leito fluidizado; e Retífica das Pastilhas. Os resultados da análise das amostras de aerossóis indicam que os trabalhadores estão expostos a partículas contendo urânio na fração respirável do aerossol. Os valores de concentração de urânio variaram de $1,31 \times 10^{-4} \mu\text{g}/\text{m}^3$ a $4,04 \times 10^{-4} \mu\text{g}/\text{m}^3$, sendo a menor concentração determinada na etapa de retificação da pastilha. As concentrações determinadas nas amostras de aerossóis coletadas em cada etapa são apresentadas na Tabela 5.1.

Partículas contendo Cr, Fe, e U foram identificadas nas três etapas amostradas. As contendo Cr e Fe podem ter sido geradas por processo mecânico de desgaste das peças usadas no processo, pois a maioria é confeccionada em aço inoxidável. Partículas contendo Ca, Ti e Mn foram identificadas apenas nas amostras coletadas com o amostrador que foi usado para amostrar tanto a etapa de filtração como a etapa de secagem do UO_2 no Forno de Leito Fluidizado. As partículas contendo Ca, Ti e Mn podem ter sido geradas no processo que envolve fluxo gasoso em contra corrente com a alimentação de TCAU e calor. Este fluxo gasoso em contato com a superfície interior do forno pode gerar partículas contendo metais que compõe a liga ou que estão presentes nos gases e/ou reagentes injetados no processo.

Tabela 5.1. Concentração elementar nas amostras coletadas nas três etapas da FCN.

Amostras coletadas com o impactador em cascata.

Etapa do processo	Concentrações $\mu\text{g}/\text{m}^3$					
	Ca	Ti	Cr	Mn	Fe	U
TCAU	< LD*	< LD**	$1,68 \times 10^{-4}$	< LD***	$3,97 \times 10^{-4}$	$1,47 \times 10^{-5}$
TCAU + UO ₂	$4,04 \times 10^{-4}$	$1,36 \times 10^{-4}$	$1,92 \times 10^{-4}$	$4,97 \times 10^{-5}$	$2,31 \times 10^{-3}$	$5,85 \times 10^{-4}$
Retífica	< LD*	< LD**	$1,31 \times 10^{-4}$	< LD***	$3,08 \times 10^{-4}$	$1,16 \times 10^{-4}$

*Limite de detecção da massa de Ca = 0,17 ng

**Limite de detecção da massa de Ti = 0,01 ng

***Limite de detecção da massa de Mn = 0,04 ng

Os valores de MMAD das partículas contendo U, nas três etapas do processo, variaram de 0,64 a 1,3 μm indicando que os trabalhadores estão expostos a partículas contendo U na fração respirável do aerossol (2,5 μm). Na Tabela 5.2 são apresentados os valores de MMAD das partículas coletadas nas três etapas do processo. As distribuições de tamanho com o desvio padrão geométrico (σ_g) maior que 1,2 indicam distribuições com mais de uma moda, porém não foi possível identificar as modas na distribuição de massa do impactador em cascata (Hinds, 1998).

O tamanho das partículas contendo Cr variou de 2,6 a 3,2 μm indicando que estas partículas foram geradas durante o processo de secagem do TCAU, pois este processo inclui vapor d'água que propicia a formação de aglomerados, e portanto, partículas com diâmetros maiores. Na etapa de filtração do TCAU o tamanho das partículas contendo U são menores que 1 μm , indicando que estas partículas são geradas por processo de ressuspensão do material filtrado (TCAU) durante a abertura da tampa do sistema de filtração para o controle do processo.

Tabela 5.2. Valores de MMAD determinado para partículas coletadas nas três etapas do processo na FCN.

Amostras coletadas com o impactador em cascata.

Elementos	Etapa					
	TCAU		TCAU + UO ₂		Retífica	
	MMAD (μm)	σ_g	MMAD (μm)	σ_g	MMAD (μm)	σ_g
Ca	-	-	1,0	2,3	-	-
Ti	-	-	0,7	2,9	-	-
Cr	3,2	2,0	0,64	-	2,6	1,2
Mn	-	-	0,74	3,4	-	-
Fe	2,2	2,6	1,2	2,0	2,0	1,3
Zn	-	-	0,6	3,2	-	-
U	0,64*	-	1,3	2,5	0,64*	-

* Partículas contendo U coletadas apenas no sexto estágio do impactador.

No Laboratório de Processos de Minérios do Instituto de Engenharia Nuclear (IEN) também foram coletadas amostras usando o impactador em cascata. No espectro de raios X destas amostras não foram identificadas as linhas do tório e urânio, contudo foram identificadas as linhas do chumbo (Pb). As partículas contendo Pb podem ser devidas a partículas de minérios em suspensão geradas em processos anteriores, ou terem sido geradas fora do Laboratório de Processos Químicos e transportadas (água da Baía de Guanabara) para o interior do mesmo através de corrente de ar. As concentrações determinadas nas amostras coletadas no Laboratório de Processos Mineraiis são apresentadas na Tabela 5.3.

Tabela 5.3 Concentração elementar nas amostras coletadas no IEN e no IRD.

Amostras coletadas com o impactador em cascata.

Elementos	Concentrações $\mu\text{g}/\text{m}^3$	
	Instalação	
	IEN	IRD
Cl	< LD*	$1,30 \times 10^{-3}$
K	< LD**	$1,74 \times 10^{-3}$
Ca	$8,01 \times 10^{-2}$	$1,29 \times 10^{-2}$
Sc	< LD***	$6,67 \times 10^{-5}$
Ti	$5,57 \times 10^{-2}$	$5,19 \times 10^{-4}$
V	< LD****	$4,49 \times 10^{-5}$
Cr	$1,22 \times 10^{-2}$	$1,86 \times 10^{-3}$
Mn	$3,17 \times 10^{-3}$	$2,24 \times 10^{-4}$
Fe	$1,61 \times 10^{-1}$	$6,09 \times 10^{-3}$
Co	< LD*****	$7,59 \times 10^{-5}$
Ni	$2,23 \times 10^{-3}$	$3,32 \times 10^{-4}$
Cu	$2,20 \times 10^{-3}$	$1,04 \times 10^{-4}$
Zn	$5,01 \times 10^{-3}$	$3,62 \times 10^{-4}$
Pb	$1,13 \times 10^{-3}$	< LD

*Limite de detecção da massa de Cl = 1,88 ng

**Limite de detecção da massa de K = 0,49 ng

***Limite de detecção da massa de Sc = 0,1 ng

****Limite de detecção da massa de V = 0,05 ng

*****Limite de detecção da massa de Co = 0,05 ng

As partículas contendo Fe e Ti podem ter sido geradas durante o beneficiamento do mineral anatásio, mineral de titânio (TiO_2) que pode conter de 0,2 a 0,6 % de impurezas. As partículas contendo Ca, Cr, Mn, Ni, Cu e Zn podem ser devidas a resíduo de partículas geradas durante o beneficiamento de outros minerais no laboratório ou terem sido geradas por uma fonte externa ao laboratório.

Estes resultados foram comparados a concentrações determinadas por Dias da Cunha *et* Barros Leite (2002) no estudo para caracterização de aerossóis. Em 2002 as amostras foram coletadas em uma área externa do Instituto de Engenharia Nuclear próxima a Baía de Guanabara, sendo identificadas partículas contendo Cl, K, Sc, V e Co, porém não foram identificadas partículas contendo Pb.

O aerossol no interior do laboratório não apresenta partículas contendo Sc, Co e V que caracterizam partículas provenientes da queima de combustível fóssil, assim como, partículas de origem marinha (partículas contendo Cl).

Os valores de MMAD nas amostras coletadas no Laboratório de Processos Químicos variaram de 0,64 a 1,7 μm indicando que os trabalhadores estão expostos a partículas contendo urânio na fração respirável do aerossol. Na Tabela 5.4 são apresentados os valores de MMAD das partículas coletadas no Laboratório de Processos Químicos. As partículas contendo Pb foram identificadas apenas no sexto estágio do impactador e apresentaram o menor tamanho 0,64 μm indicando que estas partículas podem ser de resíduo de aerossol gerado que permaneceu em suspensão. As distribuições de tamanho com o desvio padrão geométrico (σ_g) maior que 1,2 são distribuições com mais de uma moda, porém não foi possível identificar as modas na distribuição de massa do impactador em cascata.

Tabela 5.4 Valores de MMAD determinado para partículas coletadas no Laboratório de processos químicos do IEN.

Amostras coletadas com o impactador em cascata.

Elementos	Etapa	
	Laboratório de Processos Químicos	
	MMAD (μm)	σ_g
Ca	1,7	2,1
Ti	1,6	1,7
Cr	1,5	3,0
Mn	1,3	2,3
Fe	1,5	1,8
Ni	1,6	3,2
Cu	1,3	2,1
Zn	1,0	2,5
Pb	0,64	-

Estes resultados mostram que a exposição no Laboratório de Processos Químicos é predominantemente ocupacional.

O terceiro grupo de amostras foi coletado no Instituto de Radioproteção e

Dosimetria (IRD). As amostras foram coletadas junto à entrada do Serviço de Dosimetria Interna, no jardim. Estas amostras também foram coletadas usando o impactador em cascata.

No espectro de raios X das amostras de aerossóis impactadas em cada superfície de impactação não foram identificadas as linhas do urânio e do tório.

O IRD está localizado próximo a Praia do Recreio dos Bandeirantes (distanto cerca de 2 km) e a lagoa de Jacarepaguá. No IRD, as edificações são, em sua maioria de 1 pavimento, apenas uma edificação é de dois pavimentos, com áreas sem calçamento e os jardins com espécies nativas da mata Atlântica. Este instituto está localizado entre duas vias expressas a av. Salvador Allende e a av. das Américas.

As partículas contendo Cl, K e Ca caracterizam o aerossol marinho e podem ter sido transportadas por correntes de ar da praia para o IRD. As partículas contendo Fe, Zn e Ti caracterizam partículas de solo em suspensão, já as partículas contendo escândio (Sc), vanádio (V), cobalto (Co) e cromo (Cr) caracterizam partículas de origem antropogênica. Partículas contendo V são devidas à queima de combustível fóssil.

As amostras coletadas no Instituto de Radioproteção e Dosimetria apresentaram MMAD variando de 0,6 a 2,5 μm . Esta variação nos valores de MMAD indica que as partículas foram geradas por diferentes fontes de aerossóis. As distribuições de tamanho com o desvio padrão geométrico (σ_g) maior que 1,2 são distribuições com mais de uma moda, porém não foi possível identificar as modas na distribuição de massa do impactador em cascata. Os valores de MMAD para cada elemento são apresentados na Tabela 5.5

Tabela 5.5. Valores de MMAD determinado para partículas coletadas no Instituto de Radioproteção e Dosimetria. Amostras coletadas com o impactador em cascata.

Elementos	Etapa	
	Área Externa	
	MMAD (μm)	σ_g
Cl	1,2	2,1
K	2,5	1,9
Ca	1,1	2,0
Sc	1,2	2,07
Ti	0,6	0,3
V	1,5	2,1
Cr	1,1	2,1
Mn	1,6	1,8
Fe	1,0	2,1
Co	1,8	1,9
Ni	1,1	0,3
Cu	1,0	2,9
Zn	1,2	0,6

Nas três instalações foram coletadas amostras com amostrador do tipo Amostrador Grosso e Fino (AGF). Estas amostras foram analisadas para determinar a concentração de ^{234}U e ^{238}U . Nas amostras coletadas no Laboratório de Processos Químicos e no IRD as concentrações destes radionuclídeos estavam abaixo do limite de detecção da técnica (0,9 mBq). Na Tabela 5.6 são apresentadas as concentrações de ^{238}U e ^{234}U determinadas nas amostras de aerossol coletadas com o amostrador tipo AGF nas três instalações.

Tabela 5.6. Concentração em mBq/m³ de ²³⁸U e ²³⁴U no ar.

Amostra	Local	Etapa do Processo	Fração do aerossol	Concentração (mBq/m ³)			Razão
				²³⁸ U	²³⁴ U	²³⁴ U/ ²³⁸ U	
1		TCAU	Respirável	< LD***	< LD****	-	
2		TCAU	Respirável	1,34	5,80	4,3	
3		TCAU	Respirável	1,15	4,16	3,6	
4		TCAU	Inalável	0,01	0,02	1,6	
5	FCN	TCAU + UO2	Inalável	< LD***	< LD****	-	
6		TCAU	Inalável	< LD***	< LD****	-	
7		Retífica	Respirável	< LD***	< LD****	-	
8		Retífica	Inalável	< LD***	< LD****	-	
9		Retífica	Inalável	0,05	0,26	5,7	
10			Respirável	< LD***	< LD****	-	
11		Laboratório de	Respirável	< LD***	< LD****	-	
12	IEN	Processos	Respirável	< LD***	< LD****	-	
13		Químicos	Inalável	< LD***	< LD****	-	
14			Inalável	< LD***	< LD****	-	
15			Inalável	< LD***	< LD****	-	
16	IRD	Área externa	Inalável	< LD***	< LD****	-	
17			Respirável	< LD***	< LD****	-	

***Limite de detecção de ²³⁸U = 0,9 mBq.

****Limite de detecção de ²³⁴U = 1,0 mBq.

AVALIAÇÃO DA EXPOSIÇÃO OCUPACIONAL A PARTÍCULAS CONTENDO URÂNIO.

Para avaliar a exposição ocupacional a partículas contendo urânio foi solicitado a dois trabalhadores da FEC que cada um fornecesse uma amostra de excreta completa (urina de 24 h).

As amostras de urina foram analisadas pela técnica de PIXE. A concentração de cada uma das amostras é apresentada na Tabela 5.7.

Tabela 5.7. Concentração em Bq/L na urina coletada em trabalhadores da FCN.

Amostra	Concentração	
	Massa (g/L)	Atividade (Bq/L)
Urina 1	$4,86 \times 10^{-10}$	$6,0 \times 10^{-6}$
Urina 2	$7,82 \times 10^{-10}$	$9,7 \times 10^{-6}$

O código computacional para o cálculo de dose AIDE (*Activities and Internal Dose Estimations*) versão 2E desenvolvido por Luiz Bertelli Neto, que gentilmente permitiu a utilização deste código, (Bertelli,2004), foi usado para estimar a concentração de urânio esperada na urina de cada indivíduo considerando diferentes hipóteses para avaliar a influencia dos parâmetros de caracterização do aerossol na concentração de urânio na urina. Nesta simulação foram utilizados os fatores de transferências adotados pela ICRP 66 (ICRP,1979), considerando: i –as classes de solubilidade dos compostos de urânio como M (moderado) e S (lento, insolúvel), partículas com diâmetro igual a 1 e a 5 μm e incorporação única de 1 Bq; ii - as classes de solubilidade dos compostos de urânio como M (moderado) e S (lento, insolúvel), partículas com diâmetro igual a 1 μm e incorporação única de 1 e 0,1 Bq por dia. Na Figura 5.1 são apresentadas as curvas de variação de concentração de urânio na urina para compostos classificados como S e como M variando o tamanho da partícula inalada (1 e 5 μm) e considerando uma incorporação única de 1 Bq. A curvas de variação da concentração de urânio na urina mostram que para inalação de partículas de um mesmo tipo de composto (mesma classe), mas com tamanho de partículas diferentes, a variação observada na concentração de urânio na urina é da ordem de 2 vezes a concentração. Este resultado mostra que a variação do tamanho da partícula não é um fator significativo na incorporação de partículas.

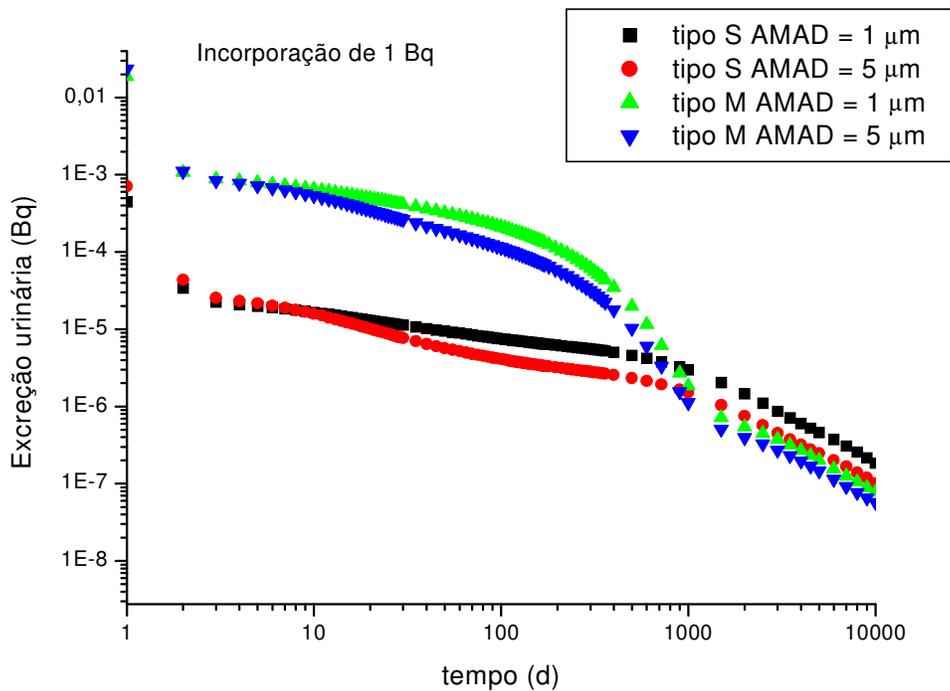


Figura 5.1. Curvas da variação da concentração de urânio na urina considerando uma única incorporação de 1Bq e os parâmetros de incorporação do ICRP 66.

Na Figura 5.2 são apresentadas as curvas de variação de concentração de urânio na urina para compostos classificados como S e como M considerando uma incorporação única e o tamanho da partícula inalada igual a 1,0 μm e incorporação de 1 e 0,1 Bq. As curvas de variação da concentração de urânio na urina mostram que para inalação de partículas de um mesmo tipo de composto (mesma classe) e com o mesmo tamanho, as concentrações esperadas na urina variam de ordem de grandeza. Estes resultados indicam que a estimativa da incorporação é um fator importante na determinação da concentração de urânio na urina e conseqüentemente no calculo da dose efetiva do trabalhador devido à inalação.

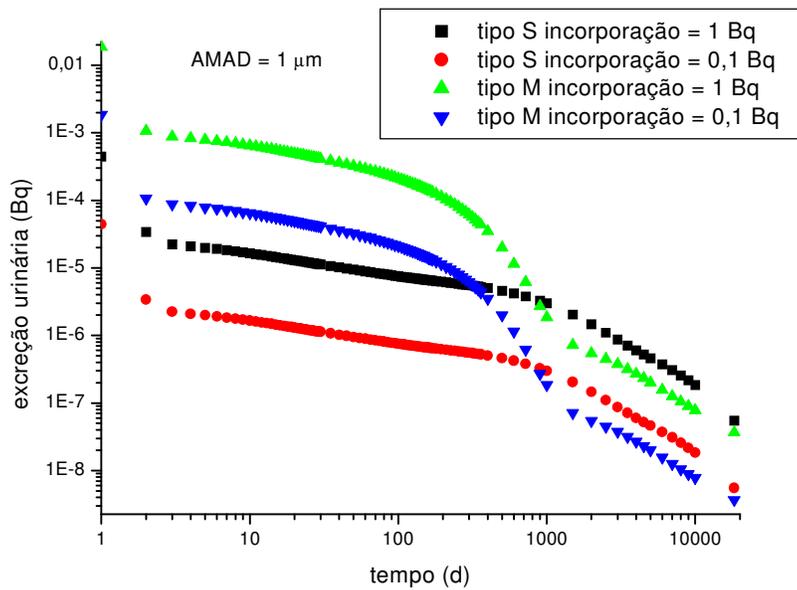


Figura 5.2. Curvas da variação da concentração de urânio na urina considerando uma única incorporação de 1Bq e os parâmetros de incorporação do ICRP 66.

Em ambos os gráficos apresentados é observada a influencia da composição da partícula inalada na taxa de eliminação diária de urânio pelo indivíduo exposto para ambas as hipóteses; variando o tamanho da partícula inalada ou a atividade inalada. A identificação do composto inalado é uma característica importante da partícula inalada.

As concentrações de urânio nas amostras de urina fornecidas pelos trabalhadores da FCN foram comparadas aos valores de concentração esperados considerando os parâmetros de transferência determinados para os compostos da FCN (Lima a publicar), a condição de incorporação como contínua. A atividade incorporada foi determinada considerando a concentração de urânio na fração respirável determinada nas amostras coletadas usando o amostrador de IC, que o trabalhador permanece na área durante 8 h e o MMAD igual a 1 μm.

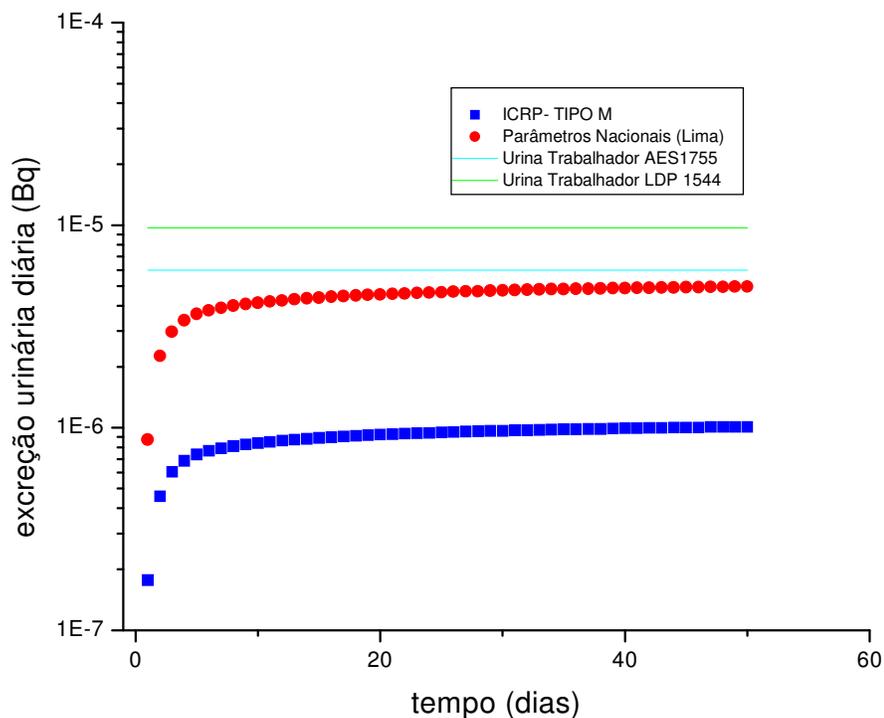


Figura 5.3. Curvas da concentração de urânio na urina considerando incorporação contínua de 0,000064 Bq e os parâmetros de incorporação específicos da FCN.

Como a identificação dos compostos é um fator importante na estimativa da incorporação o primeiro estágio do impactador em cascata que coletou amostras de aerossol nas etapas de filtração do TCAU e produção do UO_2 (forno de leito fluidizado) foi analisada pela técnica de ^{252}Cf -PDMS para identificação dos compostos.

Na Figura 5.4 a é apresentado o espectro de massa das partículas impactadas no primeiro estágio do IC baseado nos íons secundários dessorvidos da superfície da amostra. Na figura 5.4 b é apresentada uma região do espectro ampliada.

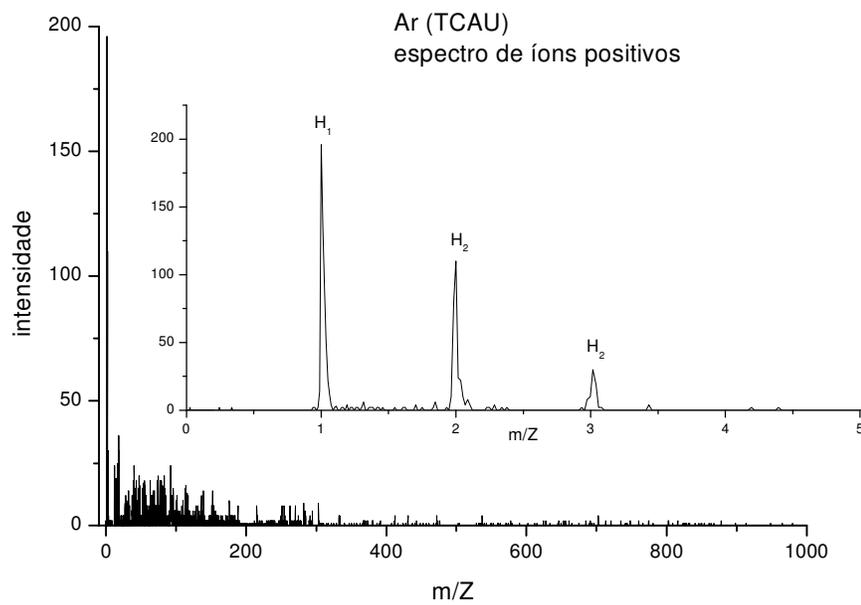


Figura 5.4. a - Espectro de massa das partículas impactadas no primeiro estágio do IC baseado nos íons secundários dessorvidos da superfície da amostra.

No espectro de massa baseado na medida do tempo de voo foram identificadas as linhas que correspondem ao *cluster* das moléculas de hidrogênio (H, 2H e 3H).

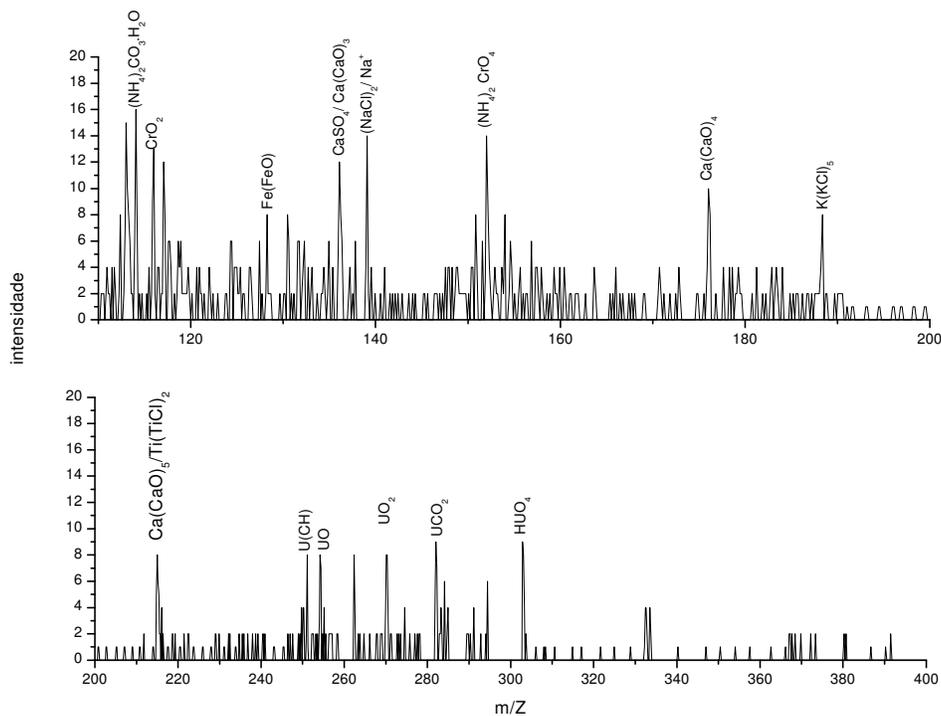


Figura 5.4. b-Região do espectro do espectro de massa ampliada.

O espectro demonstra que os compostos reagem formando aglomerados como a moléculas de $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$, moléculas de óxidos, como $\text{Ca}(\text{CaO})$, indicam a contribuição do processo de redução no forno de leito fluidizado. Os compostos de urânio identificados no espectro de massa indicam que nesta etapa do processo o trabalhador está exposto a mais de um tipo de composto de urânio; tanto a óxidos de urânio que são considerados compostos insolúveis como a compostos contendo C e H.

Capítulo VI

CONCLUSÃO

Os trabalhadores da FCN estão expostos a partículas transportadas pelo ar contendo U na fração respirável do aerossol.

No Laboratório de Processos Químico localizado no IEN, na fração respirável, não foram identificadas partículas transportadas pelo ar contendo U, porém os trabalhadores estão expostos a partículas contendo metais que podem ser devidas a resíduo de aerossol gerado pelo beneficiamento de minérios diferentes.

No IRD, na fração respirável não foram identificadas partículas transportadas pelo ar contendo U, porém foram identificadas partículas de origem marinha e devidas a queima de combustível fóssil.

O método de análise de amostras de excreta (urina) com uma pré-concentração (redução do volume) e posterior análise pela técnica de PIXE para determinação da concentração de urânio apresentou um limite de concentração de 0,54 ng/L que corresponde a 6,9 $\mu\text{Bq/L}$. Foram analisadas 3 amostras padrão e a eficiência variou de 80,2 a 80,48 %. Estes resultados indicam que o método de análise é adequado para determinação de urânio em amostras de urina.

Os resultados da simulação teórica para estimar a concentração de urânio em amostras de urina de indivíduos expostos a partículas contendo urânio, via inalação, mostram que a variação do tamanho da partícula inalada não é um fator determinante na estimativa da atividade de urânio excretada pelo indivíduo.

Os resultados da simulação teórica para estimar a concentração de urânio em amostras de urina de indivíduos expostos a partículas contendo urânio, via inalação, mostram que a variação da concentração incorporada é um fator determinante na estimativa da atividade de urânio excretada pelo indivíduo, indicando que é necessário determinar o volume inalado por cada indivíduo exposto.

Os resultados da simulação teórica para estimar a concentração de urânio em amostras de urina de indivíduos expostos a partículas contendo urânio, via inalação, mostram que a variação da composição da partícula inalada é um fator determinante na estimativa da atividade de urânio excretada pelo indivíduo.

Os resultados da simulação teórica para estimar a concentração de urânio em amostras de urina de indivíduos expostos a partículas contendo urânio, via inalação, mostram que os resultados da simulação com fatores de transferência específicos para a instalação possibilita uma melhor aproximação dos dados experimentais.

RECOMENDAÇÕES

1 – Determinar os valores de solubilidade para os demais compostos de U no Ciclo do Elemento Combustível.

2 – Estimar as doses para os trabalhadores utilizando os parâmetros específicos para o TCAU na FCN.

3 – Realizar estudos de solubilidade *in vivo*.

APÊNDICE A

CARACTERIZAÇÃO DAS AMOSTRAS DE AEROSSÓIS COLETADAS NA FÁBRICA DE COMBUSTÍVEL NUCLEAR

1 - Amostradores Portáteis com ciclone (APC)

Tabela A.1- Condições de coleta de amostras com APC na FCN – Unidade de Reconversão
(Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo) – Trabalhador 1

Data	Hora		Tempo (min)	Vazão (L/min)
	Inicial	Final		
23/04/2007	09:00	15:40	400	2
24/04/2007	08:30	15:45	435	2
03/05/2007	08:30	4:00	1229	2
04/05/2007	09:30	15:40	430	2

Tabela A.2- Condições de coleta de amostras com APC na FCN – Unidade de Reconversão
(Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo) – Trabalhador 2.

Data	Hora		Tempo (min)	Vazão (L/min)
	Inicial	Final		
23/04/2007	09:00	15:40	400	2
24/04/2007	08:30	15:45	435	2
03/05/2007	08:30	4:00	1229	2
04/05/2007	09:30	15:40	430	2

Tabela A.3- Condições de coleta de amostras com APC na FCN – Unidade de Fabricação de
Pastilhas (Retífica) – Trabalhador 3.

Data	Hora		Tempo (min)	Vazão (L/min)
	Inicial	Final		
04/05/2007	14:00	23:00	540	2

2 - Impactador em Cascata (IC)

Tabela A.4- Condições de coleta de amostras com IC na FCN – Unidade de Reconversão (Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo).

Data	Hora		Tempo (min)	Volume (m ³)
	Inicial	Final		
30/03/2007	11:20	16:36	316	4,71
02/04/2007	8:28	16:40	492	7,08
03/04/2007	8:15	16:44	509	6,17
04/04/2007	8:30	16:45	495	6,66
05/04/2007	8:28	16:07	459	6,11
18/04/2007	10:30	19:30	536	7,13
19/04/2007	07:02	16:32	536	7,13
20/04/2007	09:03	16:43	460	5,84
23/04/2007	08:31	16:40	489	6,07
24/04/2007	08:50	16:45	475	5,85
25/04/2007	09:30	23:00	810	9,92
26/04/2007	08:25	23:07	882	10,4
27/04/2007	09:00	23:04	844	9,77
28/04/2007	09:30	23:34	844	9,84
29/04/2007	09:20	23:22	842	9,44
30/04/2007	09:05	23:00	835	9,00
01/05/2007	09:00	23:00	840	9,35
02/05/2007	09:20	23:00	820	9,03
03/05/2007	08:40	23:00	860	8,95
04/05/2007	09:00	10:30	90	0,76

Tabela A.5- Condições de coleta de amostras com IC na FCN – Unidade de Reconversão (Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo + Forno de Leito Fluidizado).

Data	Hora		Tempo (min)	Volume (m ³)
	Inicial	Final		
25/04/2007	09:30	23:00	810	11,96
26/04/2007	08:25	23:06	881	13,28
27/04/2007	09:00	23:06	846	12,75
28/04/2007	09:30	23:32	842	12,61
29/04/2007	09:20	23:18	838	12,58
30/04/2007	09:05	23:00	835	12,66
01/05/2007	09:00	23:00	840	13,05
02/02/2007	09:20	23:00	820	12,96
03/05/2007	08:40	23:00	860	13,47
04/05/2007	09:00	23:00	840	12,96

07/05/2007	09:00	23:03	843	13,04
08/05/2007	09:00	23:10	850	13,37
09/05/2007	09:00	23:07	847	12,95
10/05/2007	09:00	23:00	840	12,50
11/05/2007	08:40	23:00	860	12,92
12/05/2007	09:00	23:00	840	12,82
14/05/2007	08:30	23:00	870	13,06
15/05/2007	08:30	23:00	870	13,43
16/05/2007	09:35	23:00	805	12,07
17/05/2007	09:00	23:00	840	12,21
18/05/2007	08:30	16:00	450	6,26
19/05/2007	09:30	17:00	450	7,08

Tabela A.6- Condições de coleta de amostras com IC na FCN – Unidade de Fabricação de Pastilhas (Retífica).

Data	Hora		Tempo (min)	Volume (m ³)
	Inicial	Final		
04/05/2007	14:00	23:00	540	6,32
07/05/2007	09:00	23:08	848	8,18
08/05/2007	09:00	23:07	847	8,67
09/05/2007	09:00	23:02	842	12,49
10/05/2007	09:00	23:00	840	12,78
11/05/2007	08:40	23:00	860	12,63
12/05/2007	09:00	23:00	840	12,28
14/05/2007	08:30	23:00	870	12,17
15/05/2007	08:30	23:00	870	11,96
16/05/2007	09:30	23:00	810	10,44
17/05/2007	09:30	23:00	810	10,02
18/05/2007	08:30	16:00	19	5,16
19/05/2007	09:15	17:05	20	5,58

3 - Amostrador Grosso e Fino (AGF)

Tabela A.7- Condições de coleta de amostras com AGF na FCN – Unidade de Reconversão (Precipitação do TCAU e Filtro Rotativo)

Data	Hora		Tempo (min)	Volume (m ³)
	Inicial	Final		
30/03/2007	11:25	16:35	310	5,71
02/04/2007	08:32	16:42	490	9,52
03/04/2007	08:18	16:42	476	8,83
04/04/2007	08:32	16:43	491	9,49

05/04/2007	08:30	16:30	480	8,77
18/04/2007	10:05	21:35	659	12,04
19/04/2007	05:03	16:33	659	12,04
20/04/2007	09:00	16:40	460	8,98
23/04/2007	08:30	16:45	495	9,34
24/04/2007	08:50	16:45	475	9,11
25/04/2007	09:30	23:00	870	15,69
26/04/2007	08:24	23:02	922	16,98
27/04/2007	09:00	23:05	845	16,34
28/04/2007	09:30	23:33	843	15,75
29/04/2007	09:20	23:24	844	15,61
30/04/2007	09:05	23:00	845	17,38
01/05/2007	09:00	23:00	840	16,07
02/05/2007	09:20	23:00	820	15,78
03/05/2007	08:40	23:00	920	15,85
04/05/2007	09:00	10:30	90	1,35

Tabela A.8- - Condições de coleta de amostras com AGF na FCN – Unidade de Fabricação de Pastilhas (Retífica).

Data	Hora		Tempo (min)	Volume (m ³)
	Inicial	Final		
04/05/2007	14:00	23:00	540	10,31
07/05/2007	09:00	23:10	890	16,33
08/05/2007	09:00	23:05	885	16,20
09/05/2007	09:00	23:00	840	15,49
10/05/2007	09:00	23:00	840	15,56
11/05/2007	08:40	23:00	880	15,59
12/05/2007	09:00	23:00	840	15,28
14/05/2007	08:30	23:00	870	15,11
15/05/2007	08:30	23:00	870	15,01
16/05/2007	09:31	23:00	810	13,01
17/05/2007	09:30	23:00	810	12,61
18/05/2007	08:30	16:00	870	6,55
19/05/2007	09:15	17:05	525	7,11

APÊNDICE B

CARACTERIZAÇÃO DAS AMOSTRAS DE AEROSSÓIS COLETADAS NO INSTITUTO DE ENGENHARIA NUCLEAR (IEN)

1 - Impactador em Cascata (IC)

Tabela B.1- Condições de coleta de amostras com IC no Laboratório de Processos Químicos do Instituto de Engenharia Nuclear

Data	Hora		Tempo (min)	Volume (m3)
	Inicial	Final		
02/02/2007	13:10	16:03	173	1,7
05/02/2007	08:15	16:00	465	4,9
06/02/2007	07:55	15:58	483	5,3
07/02/2007	07:45	15:57	492	5,3

2 - Amostrador Grosso e Fino (AGF)

Tabela B.2 - Condições de da coleta realizada com AGF no Laboratório de Processos Químicos do Instituto de Engenharia Nuclear

Data	Hora		Tempo (min)	Volume (m3)
	Inicial	Final		
01/02/2007	12:50	15:53	183	3,4
02/02/2007	08:00	16:00	480	7,2
05/02/2007	08:03	15:57	472	7,8
06/02/2007	07:58	15:55	477	7,8
07/02/2007	07:50	15:54	484	10,4

Tabela B.3 - Condições de da coleta realizada com AGF no Laboratório de Processos Químicos do Instituto de Engenharia Nuclear

Data	Hora		Tempo (min)	Volume (m³)
	Inicial	Final		
01/02/2007	14:50	15:52	62	1,2
02/02/2007	08:10	16:04	470	7,5
05/02/2007	08:07	15:58	355	7,1
06/02/2007	07:56	15:56	480	7,2
07/02/2007	07:47	15:55	488	7,2

APÊNDICE C

CARACTERIZAÇÃO DAS AMOSTRAS DE AEROSSÓIS COLETADAS NO INSTITUTO DE RADIOPROTEÇÃO E DOSIMETRIA (IRD)

1 - Impactador em Cascata (IC)

Tabela C. 1 - Condições de coleta de amostras com IC no Instituto de Radioproteção e Dosimetria

Data	Hora		Tempo (min)	Volume (m ³)
	Inicial	Final		
15/12/2006	12:15	16:18	243	2,79
18/12/2006	09:15	16:11	416	5,03
19/12/2006	09:52	16:12	380	5,37
22/12/2006	09:05	13:55	290	5,16
27/12/2006	11:08	16:37	329	3,09
28/12/2006	09:35	17:35	480	5,67

2 - Amostrador Grosso e Fino (AGF)

Tabela C.2- Condições de coleta de amostras com AGF no Instituto de Radioproteção e Dosimetria

Data	Hora		Tempo (min)	Volume (m ³)
	Inicial	Final		
05/03/2007	09:40	16:00	380	6,5
06/03/2007	09:50	16:10	380	6,3
07/03/2007	09:00	16:10	430	6,6
08/03/2007	09:25	16:15	385	6,1
09/03/2007	10:10	16:15	335	2,6

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ACGIH, 2000, "Threshold limiting values for chemical substances and physical agents and biological exposure indices." In: *American Conference of Government Industrial Hygienists*. Cincinnati, Ohio, USA, Technical Affairs Office.
- ALMEIDA Neto, J. X. Et al, 2005, "Avaliação do efeito mutagênico da palma forrageira (*Opuntia ficus-indica* mill) através do teste de micronúcleos em medula óssea de ratos (*Ratus norvegicus*, linhagem Wistar) in-vivo." *Revista de Biologia e Ciências da Terra*, v. 5.
- ANJOS, R. M., 2004a, "Radioecology teaching: evaluation of the background radiation levels from areas with high concentrations of radionuclides in soil". *European Journal of Physics* v.25,p.133 - 144.
- ANKE, M., Ihnat, M. E Stoepler, M., 2004, "Metal and their compounds." *Elements and their compounds in the environment*. v.1.
- ANSOBORLO, E; Hodgson, A.;Stradling, G.N.; Hodgson, S.; Métivier, H.; Hengé-Napoli,M.H.; Jarvis, N.S.; Biirchal, A., 1998., "Exposure implications for uranium aerosols formed at a new laser enrichment facility: application of the ICRP respiratory tract and systemic model." *Radiation Protection Dosimetry*, v. 79, pp 23-27.
- APOSTOLLI, P.,1992, "Apostila do curso: "Riscos Associados á Exposição de Metais"." edited by Fundação Osvlado Cruz Escola Nacional de Saúde Pública/ ENSP. Rio de Janeiro, FIOCRUZ.
- ARTAXO, P.; Rabello, M.L.C.; Maenhaut, W.; Van Grieken, R.,1992, Trace Aerosols from Antartic Peninsula. *Tellus* 44B: 318-334, Element and Individual Analysis of Atmospheric.
- ARTAXO, P.; Rabello, M.L.C.; Maenhaut, W.; Van Grieken R., 1992, "Trace Aerosols from Antartic Peninsula." *Element and Individual Analysis of Atmospheric*, *Tellus* ,v. 44B, pp 318-334.

- ARTAXO, P.; RABELLO, M. L.C.; WATT, F.; et al.,1993, "Nuclear Microprobe analysis and Source Apportionment of Individual Atmospheric Aerosol Particles." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, Section 75B, pp 521-525.
- AZEREDO, A.M.F.G, 1998, "Avaliação da exposição a níquel, nióbio, urânio e tório em áreas de mineração através de bioanálise in vitro". Tese de Doutorado,CCS - Centro de Ciências da Saúde,Universidade Federal do Rio de Janeiro(UFRJ), Rio de Janeiro, Brasil.
- BAROFSKY,D.F. et al.,1994, "Time-of-Flight Mass Spectrometry and its applications." *Int. J. Mass Spectrom*, p. 131.
- BERTELLI, L. , 2004, *Programa Computacional AIDE (Activity and Internal doses estimates)*, Versão 2.0 E, Setembro.
- BOWEN, D H M. 1973. "Air Pollution". *American Chemical Society, D.C*,pp 130-155.
- CARVALHO, S. M. M.;Dias da Cunha, S.S.; Baptista, B.G.; Barros Leite C. V.; Paschoa A. S., 1988., "Particle size distribution of yellowcake in a brazilian uranium mill." *Anais do Occupational Hygiene*, v.32, pp 865-870.
- CASTRO, M. X., 2005, "Interpretação de Resultados de Monitoração Individual Interna de Trabalhadores da Fábrica de Combustível Nuclear - FCN". Dissertação de Mestrado, IRD/CNEN, Rio de Janeiro, Brasil.
- CAWSE, P.A, Peirson, D.H., 1972, "An analytical study of trace elements in the atmospheric environment". *AERE report R*, London, nº 8038
- CAWSE, P.A., 1974, "A survey of atmospheric trace elements in the UK". *AERE report R*, HMSO, London, nº 7669, pp 1972-1973 .
- CHEN, XING-AN; Xiao, Hui-juan; Chen,Yong-e; Dong, Zhi-hua; Yang,Ying-jie; Chen, Lian; Hao, Jing-fang; He, Qui-Chen; Feng, Guo-long; Yun-hui., 1993, "A follow-up study (1982-1991) on the relationship between thorium lung burden and health effects in miners at Baiyan OBO rare earth and iron mine." *Radiation Protection in Australia*, v.11, pp 147-157.

- CNEN NN – 3.01, Diretrizes Básicas de Proteção Radiológica, Comissão Nacional de Energia Nuclear, 2005.
- COOPER, J. R.,1985, "National Radiological Protection Board." *Annual Report. London: NRPB*, pp 162-174.
- COSTA RIBEIRO, C; Barcinski, M.A.; Figueiredo, N.; Penna Franca, E, 1975. "Radiobiological aspects and radiation levels associated with milling of monazite sand".*Health Physics* 28: 225-231.
- COTELLE, S.; Ferard, J.F,1999, "Comet assay in genetic ecotoxicology: a review".*Environmental and Molecular Mutagenesis* v. 34, p.246-255.
- CUBSTER, P.J.; Carter, P.J.; Woods, D.A.,1994, "In vitro dissolution of uranium." *Radiat. Prot. Dosim*, pp 39-47.
- DE LA SIENRA, E.; Armientab, M.A.; Gonsebatta, M.E,2003, "Potassium dichromate increases the micronucleus frequency in the crayfish *Procambarus clarkii*." *Environmental pollution*, v. 126, pp. 367-370.
- DE PINHO, A.G.; Montenegro, E.C.; Barros Leite, C.V.; Baptista, G.B.; Paschoa, A.S., 1979, 'Potencialidades e Possíveis Aplicações de um novo Método Analítico (PIXE)". *An. Acad. Brasil. Cienc.*, v.51, nº 3.
- DIAS DA CUNHA, K. M. A.; Lipsztein J. L.; Barros Leite C. V, 1988, "Caracterização de partículas de tório e urânio existentes em poeira da monazita". Dissertação de Mestrado, Instituto de Biofísica/UERJ. Rio de Janeiro, Brasil
- DIAS DA CUNHA, K. M. A.; Lipsztein J. L.; Barros Leite C. V.,1994, "Occupational exposure to thorium air monitoring." *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*,v.177, pp. 81-89.
- DIAS DA CUNHA, K. M. de A. 1997. "Contribuições ao estudo da exposição ocupacional ao tório no Brasil". Tese de Doutorado,CCS/UFRJ,Rio de Janeiro,Brasil.

- DIAS DA CUNHA, K. M. A.; Lipsztein J. L.; Barros Leite C. V., 1998a, "Occupational exposure to thorium in two Brazilian Niobium Plants." *Radiat. Prot. Dosim* v 79, pp 63-66.
- DIAS DA CUNHA, K.M.A. ; Lipsztein J.L. Fang C.P.;Barros Leite, C.V., 1998b, "A Cascade Impactor for Mineral Particles Analysis." *J. Aerosol Science and Technology*, v.29, n° 2, pp.126-132,.
- DIAS DA CUNHA, K.M.A.; PEREIRA, J. A. M.; BARROS LEITE, C.V., 2000, "PIXE and PDMS methods applied to aerosols analysis". *Journal of Aerosol Science and Technology*, v.32, pp 453-464.
- DIAS DA CUNHA, K.; Pereira, J. A . M.; Barros Leite, C.V.,2000, 'Pixe and PDMS Methods Applied to Aerosol Analysis'. *J. Aerosol Science and Technology*, v. 32, pp. 453-464.
- DIAS DA CUNHA, K. M.; Lipsztein, J. L.; Azeredo, A. M. G.; Julião, L.; Santos, M.; Melo, D. R.;Simões, Filho; F. F. L.,2001, "Exposure of workers in mineral processing industries in Brazil." *Journal of Environmental Radioactivity*, v.54, pp189-199.
- DIAS DA CUNHA, K. M. ; BARROS LEITE, C.V., 2002a., "Metal trace analysis by PIXE and PDMS techniques." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* ,Section 187,pp 401-407.
- DIAS DA CUNHA, K. M.;LIPSZTEIN, J. L.; AZEREDO, A. M.; BARROS LEITE, C.V. et al., 2002b., "Study of Worker' s Exposure to Thorium, Uranium and Niobium Mineral Dust". *Water, Air and Soil Pollution* . v.137, pp45-61.
- DIAS DA CUNHA, K. M.; A., EVANGELISTA, H.; PEREIRA, K. C, et al.,2004, "Application of ²⁵²Cf PDMS to characterize airborne particles deposited in na Antarctic glacier." *Science of the Total Environment*, v. 323, pp. 123-135.
- DNPM, Departamento Nacional de Produção Mineral, 2006, *Anuário 2006 referente ao ano base 2005*.

- DUGGAN, M.J., Burtton, M. A., 1983, "Atmospheric metal deposition in London". *Int. Journal Envir. Study*, v.21, pp 301-307.
- FAIRBAIRN, D.W.; Olive, P.L.; O'Neil, K.L. 1995. "The Comet assay: a comprehensive review". *Mutation Research*, v.339, pp. 37-59.
- FERNANDEZ- LIMA, F.A.; C. R. Ponciano, H.D.; Fonseca Filho, E.; Pedrero, M. A.; Chaer Nascimento; E.F. da Silveira., 2006, "UV laser induced desorption of CsI and RbI ion clusters." *Applied Surface Science*, pp. 8171-8177.
- GAMBLE, J.L., 1967, *Chemical anatomy, physiology and pathology of extracellular fluid.*, edited by Boston Harvard University Press, M.A, pp. 4-11
- HARRISON, J. D.; LEGGETT, R. W.; NOßKE, D.; et al., 2001, "Reliability of the ICRP' s Dose Coefficients for Members of the Public: II. Uncertainties in the Absorption of Ingested Radionuclides and the Effect on Dose Estimates." *Radiation Protection Dosimetry* 79, v 95, pp.295-308.
- HEDDLE, J.A.; Hite, M.; et al., 1983, "The Induction of micronuclei as a measure of genotoxicity." *Mutation Research* v.123: pp.61-118.
- HEWSON, G. S., 1988, "Particle size distribution of airborne radioactivity in mineral sands separation plants." *Radiation Protection in Australia*, v 6, pp 35-49.
- HINDS, W. C., 1998, "Aerosol Technology: properties, behavior and measurement of airborne particles" 2^a edição. New York: Willey Interscience Publication, John Willey & Sons Inc.
- JOHANSSON, S.A .E.; Johansson T.B., 1976, "Analytical Application of Particle Induced X Ray Emission." *Nucl. Inst. Meth.* v.137, pp 473-516.
- JOHN, W., HERING, S., REISCHI, G.; et al., 1983a, " Characteristics of Nuclepore filters with large pore size: I - Physical Properties." *Atmospheric Environment* v 17, pp 115-119.
- . 1983b, "Characteristics of Nuclepore filters with large pore size: II - Filtration Properties." *Atmospheric Environment*, v 17, pp.373-382.

- JULIÃO, L. M. Q. C.; Azeredo, A.M.G.F.; Santos, M. S.; Mello, D. R.; Dantas, B. M.; Lipsztein, J. L.,1994,"Interpretation of thorium bioassay data".*Journal of Radiochemical and Nuclear Chemistry*, v. 177.
- JULIÃO, L.M.Q.C, Sousa,W.O, Santos, M.S., Fernandes, P.C.P., 2003, "Determination of ^{238}U , ^{234}U , ^{232}Th , ^{228}Th , ^{228}Ra , ^{226}Ra and ^{210}Pb concentration in excreta samples of inhabitants of a high natural background area." *Radiation Protection Dosimetry*, 105, nos. 1-4, pp 379-382.
- KISS, Koltay E.; Szabó G.Y.; Mészáros A .; László S.; Godény S.,1980, "Proton Induced X Ray Emission as Tool for Analys in Biological and Atmospherical Samples. Anais do 10º Annual Meeting of European Society of Nuclear Methods in Agriculture".
- KOBLINGER, L.; HOFMANN, W.,1995, "Aerosol inhalation in the rat lung. Part II: Theoretical predictions of particle deposition patterns." *Journal of Aerosol Medicine*,v.8, pp. 21-32.
- LEAL, M. A. 2004, "Caracterização de Aerossóis na Ilha Rei George - Península Antártica".Dissertação de Mestrado, Instituto Militar de Engenharia. Rio de Janeiro, Brasil.
- LIMA, C. 2007, "Solubilidade do urânio em Líquido Pulmonar Simulado. Estudo de caso: compostos de urânio no ciclo do combustível nuclear aplicando as Técnicas de PIXE e ^{252}Cf -PDMS".Tese de doutorado, PUC-RIO, a publicar.
- LIPPMANN, M. A.,1969, "The effects of particles size on the regional deposition of inhaled aerosols in the human respiratory tract".*American Industrial Hygiene Journal*, v.30, pp. 257.
- . 1970. "Deposition and clearance of inhaled particles in the human nose".*Annals of Otology Rhinology Laryngology* ,v. 79, pp. 519-578.
- . 1989. "M. Size selective health hazard sampling." In: *Air sampling instruments for evaluation of atmospheric contaminants*, edited by Susanne V. Hering. Pp. 163-198

- LIPPMANN, M.; Chan, T.L., 1974, "Calibration of dual -inlet cyclones for "respirable" mass sampling." *American Industrial Hygiene Journal*, v. 34, pp.189-200.
- LIPSZTEIN, J. L.; Bertelli, L.; Oliveira, C. A. N.; Azeredo, A.M.G; Melo, D.R.; Lourenço, M.C.; Grynspan, D.; Dantas, B.M.,1989, "Bioassay Monitoring studies for thorium." *Radiation prot. Dosim.*, v.26, pp. 57-60.
- MACFARLENE, R. D.; Uemura D.; Ueda K.; Hirata. *Journal of American Chemical Society* ,v. 102,2 Jan. 16. 1980.
- MAFRA ,Guidicini O. Y.; Paschoa A. S.; Saad S.; Goldenberg J.,1991, "Radioactive risk associated with mining activities." In: *Specialists meeting on method for comparative risk assement of different energy sources*. Studswck, Suécia.
- MONTENEGRO, E. C.,1977, *Contribuição ao método de análise de elementos por espectrometria de raios X induzidos por prótons*. Tese de Mestrado, Departamento de Física /PUC - Rio, Rio de Janeiro,Brasil.
- MONTENEGRO, E. C.; MEYERHOF, W. E. 1991. "Sum Rules And Electron-Electron Interaction In Two -Center Scattering".New York: *Physiccal Review*, v.44, pp. 7229-7233.
- MORGAN, A.; BLACK, A.; MOORES, S. R et al., 1983, "Alveolar deposition of sized particles of $^{239}\text{PuO}_2$ in mouse". *Radiation Research*, v. 93, pp 85-92.
- NARAYANA, Y.; Radhkrihna; Somasherkarappa; Karunakara N.; Balakrishna K. M.; Siddapa.,1995, "Distribution and enrichment of radionuclides in newly discovered high background area in ULLAL on Southweat coast India". *Health Physics* ,v. 69.
- NELSON, J.W. ; Courtney W.J.,1977, "Light Elements Analysis by Proton Scattering". *Nucl. Inst. Meth.*, v.142,pp.127-130.
- PAPASTEFANOU, C.,1996, "Radiation Impact from Lignite burning due to ^{226}Ra Greek coal - fire power plants". *Health Physics*, v. 70, pp.187-191.
- PASCHOA, A. S.; MONTENEGRO, E. C.; MARGULIS W.; et al.,1977, "PIXE elemental analysis of air particulates and a geochemical reference sample. Proceedings of the Third International Conference on Nuclear Methods in

- Environmental and Energy Research". *Washington: United States Energy Research and Development Administration (USERDA)*, pp. 21-32.
- PEREIRA, E.B.; EVANGELISTA, H.; PEREIRA, K.C.D.; et al., 2006, "Apportionment of black carbon in the South Shetland Islands, Antarctic Peninsula". *Journal of Geophysical Research*, v. 111, pp 01-14.
- PEREIRA, O. M.; HENRIQUES, M. B.; ZENEON, O.; et al., 2002, "Determinação dos teores de Hg, Pb, Cd, Cu e Zn em MOLUSCOS (*Crassostrea brasiliana*, *Perna perna* e *Mytella falcata*)." *Rev. Inst. Adolfo Lutz*, v. 61, pp.19-25.
- PEREIRA, O. M.; EVANGELISTA, H.; SIMÕES, J. et al., 2004, "Transport of Crustal Microparticles from Chilean Patagonia to the Antarctic Peninsula by SEM-EDS Analysis". *Tellus B*, v. 56, pp.262-275.
- PLANCHON, F. A. M.; BOUTRON, C. F.; BARBANTE, C.; et al., 2002, "Short-Term Variations in the Occurrence of Heavy Metals in Antarctic Snow from Coasts Land Since the 1920s." *The Science of the Total Environment*, v. 300, pp 129-142.
- INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION (ICRP), 1979, "Limits for intakes of radionuclides by workers (Publication 30)", Part 1, *Annals of the ICRP*, v.2, nºs 3-4, Oxford: Pergamon Press,
- . 1994. "Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection (Publication 66)", Oxford: Pergamon Press
- ROSER, F. X.; Cullen, T. L., 1962, "Environmental radioactivity in high background areas in Brazil." *Departamento de Física – PUC- Rio*.
- SANTOS, M. S., 1997, *Estudo in vitro da taxa de dissolução de tório e urânio presentes em minérios*. Dissertação de mestrado. Instituto de biofísica, Universidade do Estado do Rio de Janeiro, Brasil.
- SANTOS, M. S. 2006, *Estudo da Exposição Interna a Compostos de Urânio na Fabricação do Elemento Combustível Nuclear No Brasil*. Tese de doutorado, Programa de Pós-Graduação em Biologia/UERJ, Rio de Janeiro, Brasil.

- SNIPES, M. B.,1994., "Biokinetics of inhaled radonuclides. Internal Radiation Dosimetry". *Medical Physics Publishing*, pp.181-196.
- SOHRABI, M.,1990., "Recent radiological studies of high level natural radiation areas of Ramsar." *ICHLNR*, pp. 39-47.
- WANG, Z. Y.; Lubin, J. H.; Long- De, W.; Conrath, S.; Zhang, S.; Kleinerman, R.; Shang, B.; Gao,X. S.; Gao-su, P.Y; Boice, J. D. Jr., 1996, "Radon measurements in underground dwellings from two prefectures in Chine". *Health Physics*. v.70, pp. 191-1982.
- WATSON,J,1983,"Deposition and clearance of inhaled particles. International Radiation Dosimetry: Principles and practice". *Health Physics Society Summer School,UK*.
- WHO - WORLD HEALTH ORGANIZATION,1999, *Principles for the assessment of risk to human health from exposure to chemicals*. Geneva: International Programme on Chemical Safety - IPCS.
- ZAMORA, R. R. M. 2001. *PIXE e PDMS aplicados na caracterização de aerossóis*.Dissertação de Mestrado, Departamento de Física/PUC-Rio, Rio de Janeiro,Brasil.

Livros Grátis

(<http://www.livrosgratis.com.br>)

Milhares de Livros para Download:

[Baixar livros de Administração](#)

[Baixar livros de Agronomia](#)

[Baixar livros de Arquitetura](#)

[Baixar livros de Artes](#)

[Baixar livros de Astronomia](#)

[Baixar livros de Biologia Geral](#)

[Baixar livros de Ciência da Computação](#)

[Baixar livros de Ciência da Informação](#)

[Baixar livros de Ciência Política](#)

[Baixar livros de Ciências da Saúde](#)

[Baixar livros de Comunicação](#)

[Baixar livros do Conselho Nacional de Educação - CNE](#)

[Baixar livros de Defesa civil](#)

[Baixar livros de Direito](#)

[Baixar livros de Direitos humanos](#)

[Baixar livros de Economia](#)

[Baixar livros de Economia Doméstica](#)

[Baixar livros de Educação](#)

[Baixar livros de Educação - Trânsito](#)

[Baixar livros de Educação Física](#)

[Baixar livros de Engenharia Aeroespacial](#)

[Baixar livros de Farmácia](#)

[Baixar livros de Filosofia](#)

[Baixar livros de Física](#)

[Baixar livros de Geociências](#)

[Baixar livros de Geografia](#)

[Baixar livros de História](#)

[Baixar livros de Línguas](#)

[Baixar livros de Literatura](#)
[Baixar livros de Literatura de Cordel](#)
[Baixar livros de Literatura Infantil](#)
[Baixar livros de Matemática](#)
[Baixar livros de Medicina](#)
[Baixar livros de Medicina Veterinária](#)
[Baixar livros de Meio Ambiente](#)
[Baixar livros de Meteorologia](#)
[Baixar Monografias e TCC](#)
[Baixar livros Multidisciplinar](#)
[Baixar livros de Música](#)
[Baixar livros de Psicologia](#)
[Baixar livros de Química](#)
[Baixar livros de Saúde Coletiva](#)
[Baixar livros de Serviço Social](#)
[Baixar livros de Sociologia](#)
[Baixar livros de Teologia](#)
[Baixar livros de Trabalho](#)
[Baixar livros de Turismo](#)