



AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE  
DE SÃO PAULO

DETERMINAÇÃO DE  $^{210}\text{Pb}$  E  $^{210}\text{Po}$  EM TABACO  
DE CIGARROS NACIONAIS

ANA CLÁUDIA PERES

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

Orientador:  
Dr. Goro Htromoto

SÃO PAULO  
1999

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

**DETERMINAÇÃO DE  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  EM TABACO  
DE CIGARROS NACIONAIS**

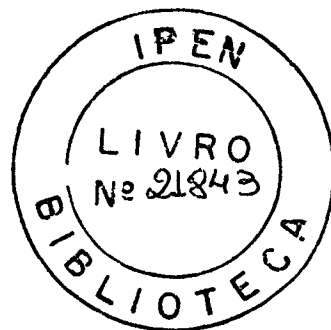
**ANA CLÁUDIA PERES**

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

**Orientador:  
Dr. Goro Hiromoto**

**SÃO PAULO**

**1999**



*À Patrícia e Ricardo,  
com amor.*

## AGRADECIMENTOS

À Dra. Barbara Paci Mazzilli, chefe do Departamento de Radioproteção Ambiental, pelo estímulo dado a todos os servidores e bolsistas para a carreira científica.

Aos amigos do IPEN e CTMSP, pelo incentivo e colaboração em diversos momentos.

Em especial ao Dr. Goro Hiromoto, pela confiança e apoio não só no decorrer deste trabalho, mas de toda a minha vida profissional.

## DETERMINAÇÃO DE $^{210}\text{Pb}$ E $^{210}\text{Po}$ EM TABACO DE CIGARROS NACIONAIS

Ana Cláudia Peres

### RESUMO

O consumo de cigarro representa uma das vias importantes de incorporação de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  pelo organismo humano. Neste trabalho foram determinadas as concentrações destes radionuclídeos em tabaco de oito marcas nacionais produzidas pelos dois principais fabricantes de cigarro do Brasil, Souza Cruz e Philip Morris. A aquisição das amostras foi feita de maneira aleatória no mercado, tendo como objetivo a análise das marcas de maior comercialização no país. Determinou-se o  $^{210}\text{Pb}$ , após separação radioquímica e posterior precipitação de  $\text{PbCrO}_4$ , por meio da medida beta do  $^{210}\text{Bi}$  em detetor proporcional de fluxo gasoso. O  $^{210}\text{Po}$  foi determinado por espectrometria alfa, após deposição espontânea em discos de cobre. O tabaco apresentou concentrações de  $^{210}\text{Pb}$  variando de 11,9 a 30,2  $\text{mBq.g}^{-1}$ , enquanto que o  $^{210}\text{Po}$  apresentou concentrações variando de 10,9 a 27,4  $\text{mBq.g}^{-1}$ .

## DETERMINATION OF $^{210}\text{Pb}$ AND $^{210}\text{Po}$ IN CIGARETTE TOBACCO

Ana Cláudia Peres

### ABSTRACT

Cigarette smoking is one of the important pathways that could contribute to enhance the radiation dose to man, due to the relatively large concentrations of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  found in tobacco leaves. In this work, concentrations of these two radionuclides were determined in eight of the most commercialized cigarette brands produced in Brazil. The samples analyzed were bought randomly in the market. The  $^{210}\text{Pb}$  was determined by counting the beta activity of the  $^{210}\text{Bi}$  in a gas flow proportional detector, after radiochemical separation and precipitation of the  $\text{PbCrO}_4$ . The  $^{210}\text{Po}$  was determined by alpha spectrometry, using a surface barrier detector, after radiochemical separation and spontaneous deposition of Po in copper disk. The results showed concentrations ranging from 11,9 to 30,2 mBq per gram of dry tobacco for  $^{210}\text{Pb}$  and from 10,9 to 27,4 mBq per gram of dry tobacco for  $^{210}\text{Po}$ .

## SUMÁRIO

Página

<b>1</b>	<b>INTRODUÇÃO</b> .....	<b>01</b>
1.1	Radioatividade natural .....	01
1.1.1	Séries de decaimento radioativo.....	04
1.2	Radioatividade artificial .....	05
1.3	Objetivos do trabalho .....	07
<b>2</b>	<b>O TABACO</b> .....	<b>10</b>
2.1	Considerações sobre $^{210}\text{Pb}$ e $^{210}\text{Po}$ .....	10
2.1.1	Equilíbrio radioativo $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$ .....	12
2.1.2	$^{210}\text{Pb}$ e $^{210}\text{Po}$ em alimentos .....	13
2.2	Radioatividade no cigarro .....	14
2.2.1	Levantamento dos níveis de radioatividade em cigarros .....	15
2.3	Histórico da produção de tabaco no Brasil .....	17
2.4	Produção nacional .....	18

<b>3</b>	<b>PROCEDIMENTOS RADIOQUÍMICOS</b>	<b>21</b>
3.1	Metodologias disponíveis para determinação de $^{210}\text{Pb}$ e $^{210}\text{Po}$	21
3.2	Metodologia para determinação de $^{210}\text{Pb}$	23
3.2.1	Procedimento experimental	23
3.2.2	Materiais e equipamentos	25
3.2.3	Reagentes	26
3.3	Metodologia para determinação de $^{210}\text{Po}$	27
3.3.1	Procedimento experimental	27
3.3.2	Materiais e equipamentos	29
3.3.3	Reagentes	29
3.4	Fluxograma do processo	32
<b>4</b>	<b>RESULTADOS</b>	<b>34</b>
4.1	Determinação de $^{210}\text{Pb}$	34
4.1.1	Radiação de fundo	34
4.1.2	Rendimento do método	35
4.1.3	Eficiência de contagem	35
4.1.4	Atividade mínima detetável	36
4.1.5	Crítérios de amostragem	38
4.1.6	Resultados obtidos	39
4.2	Determinação de $^{210}\text{Po}$	39
4.2.1	Determinação da curva de calibração	39
4.2.2	Branco do processo	40
4.2.3	Rendimento do método	40
4.2.4	Eficiência de contagem	41



4.2.5	Atividade mínima detetável .....	41
4.2.6	Crítérios de amostragem .....	42
4.2.7	Resultados obtidos .....	42
4.3	Reprodutibilidade e exatidão dos métodos para $^{210}\text{Pb}$ e $^{210}\text{Po}$ .....	44
4.3.1	Reprodutibilidade .....	44
4.3.2	Exatidão .....	45
<b>5</b>	<b>DISCUSSÕES E CONCLUSÕES .....</b>	<b>47</b>
<b>6</b>	<b>REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS .....</b>	<b>51</b>

## SUMÁRIO DAS FIGURAS

### Página

Figura 1.1 – Série de decaimento radioativo do $^{238}\text{U}$ .....	08
Figura 1.2 – Série de decaimento radioativo do $^{232}\text{Th}$ .....	09
Figura 2.1 – Esquema de decaimento para $^{210}\text{Pb}$ , $^{210}\text{Bi}$ e $^{210}\text{Po}$ .....	11
Figura 2.2 – Curva de decaimento do $^{210}\text{Pb}$ e crescimento do $^{210}\text{Po}$ .....	13
Figura 2.3 – Evolução da produção nacional de tabaco na década de 90 ....	19
Figura 3.1 – Sistema utilizado para deposição espontânea do $^{208}\text{Po}$ e $^{210}\text{Po}$	31
Figura 3.2 – Fluxograma do processo para determinação de $^{210}\text{Pb}$ e $^{210}\text{Po}$ ..	33
Figura 5.1 – Razão entre as concentrações de $^{210}\text{Pb}$ e $^{210}\text{Po}$ nos lotes de cigarros analisados .....	49

## SUMÁRIO DAS TABELAS

### Página

Tabela 2.1 – Concentrações de atividade de $^{210}\text{Po}$ determinadas em tabaco de cigarros de diversas regiões do mundo .....	16
Tabela 4.1 – Medidas da radiação de fundo no detetor Berthold .....	34
Tabela 4.2 – Eficiência de contagem beta total do detetor Berthold .....	36
Tabela 4.3 – Atividade mínima detetável para o $^{210}\text{Pb}$ .....	38
Tabela 4.4 – Concentração de atividade de $^{210}\text{Pb}$ e $^{210}\text{Po}$ em cigarros nacionais .....	43
Tabela 4.5 – Concentração de atividade de $^{210}\text{Pb}$ e $^{210}\text{Po}$ em amostra de tabaco para teste de reprodutibilidade .....	44
Tabela 4.5 – Concentração de atividade de $^{210}\text{Pb}$ e $^{210}\text{Po}$ em amostra de referência .....	45

## 1 INTRODUÇÃO

As radiações ionizantes, às quais estamos contínua ou esporadicamente expostos, provêm de várias fontes e podem ser classificadas em duas componentes: uma de origem natural e outra de origem artificial.

### 1.1 Radioatividade natural (Eisenbud, 1987; UNSCEAR, 1993; Pinkau e Renn, 1998)

O ser humano, como todas as outras coisas, está continuamente exposto a radiações ionizantes de origem natural. Essa radiação pode ser classificada em três categorias, muito embora somente duas delas sejam importantes sob o ponto de vista radiológico.

Radiação cósmica, constituída de partículas e fótons, de origem solar e de fontes galácticas e extragalácticas ainda não totalmente conhecidas.

Radionuclídeos primordiais, de origem associada à formação da Terra, caracterizados por meias-vidas da ordem de grandeza da idade estimada do Universo; incluem, primariamente, o  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$ .

Radionuclídeos cosmogênicos, átomos radioativos que têm origem na interação da radiação cósmica com a matéria terrestre, como o  $^3\text{H}$ ,  $^7\text{Be}$  e o  $^{14}\text{C}$ . Sua contribuição à exposição total devido às fontes naturais é, no

entanto, muito pequena em relação à radiação cósmica e aos radionuclídeos primordiais.

A *radiação cósmica* foi descoberta devido à presença de ruídos não elimináveis em medidas de baixa radioatividade, e consiste de partículas e fótons de energias bastante variadas. A componente conhecida mais penetrante são os mésons  $\mu$ , que são produzidos como partículas secundárias em reações nucleares, com energia da ordem de 1.000 MeV; podem penetrar espessuras de chumbo da ordem de 1 metro ou mais.

A componente menos penetrante consiste de elétrons, pósitrons e fótons; ao nível do mar essa componente contribui com somente 10% do total da radiação cósmica, aumentando, entretanto, para aproximadamente 75% a uma altitude de 3.500 m. É portanto essa componente da radiação cósmica que é, essencialmente, a responsável pela forte dependência da exposição às fontes naturais com a altitude. Do nível do mar até aproximadamente 1.000 metros de altitude, a dose efetiva média devido à radiação cósmica é de aproximadamente 0,3 a 0,4 mSv.a<sup>-1</sup>, elevando-se para valores em torno de 20 mSv.a<sup>-1</sup> a 10.000 metros.

Os *radionuclídeos primordiais* contribuem de várias formas para a exposição às fontes naturais de radiação. Como exposição externa, somente a radiação terrestre é relevante sob o aspecto radiológico. Ela é devida à presença do urânio, tório e potássio na crosta terrestre e varia de acordo com as concentrações locais destes elementos. Kerala, na Índia, e Guarapari, no Brasil, são regiões bem conhecidas que apresentam níveis altos de radiação, devido à presença da monazita - mineral rico em tório - na forma de areia na superfície da crosta terrestre.

A permanência de seres humanos no interior de residências, se por um lado significa uma certa proteção contra as radiações externas, por outro lado causa uma exposição adicional, visto que alguns materiais de construção são compostos de substâncias de origem primordial, relativamente ricas em elementos radioativos naturais.

A dose efetiva média devida à exposição externa aos radionuclídeos primordiais é da ordem de  $0,4 \text{ mSv.a}^{-1}$ , apresentando, entretanto, variações normalmente da ordem de um fator 2, dependendo da região, até um fator 10 nos locais de alta concentração desses radionuclídeos.

Uma outra componente da dose total devida aos radionuclídeos primordiais refere-se à irradiação interna. Ela é da ordem de  $0,3$  a  $0,4 \text{ mSv.a}^{-1}$  - excluindo-se o radônio e seus descendentes - e apresenta um intervalo de variação relativamente pequeno, da ordem de  $0,1 \text{ mSv.a}^{-1}$ , pois mais da metade da dose é devida ao  $^{40}\text{K}$ . A concentração de potássio no organismo é mais ou menos constante e contém sempre  $0,012\%$  de seu isótopo radioativo.

A componente devida à série do urânio e tório, por outro lado, está sujeita às mesmas variações que ocorrem nas exposições externas; quantidades diferentes desses elementos são incorporadas diariamente por meio da ingestão de água e consumo de produtos agrícolas, dependendo das respectivas concentrações em diferentes solos.

Uma outra causa da exposição interna é devida ao radônio e seus descendentes de meia-vida curta (Holtzman, 1987; Sevec e col., 1988; Chemelevsky e col., 1994). É um caso bastante especial, pois ela só se torna uma componente importante em ambientes fechados com pouca ventilação,

devido ao acúmulo do radônio em seu interior; é o que ocorre com mais frequência nas residências de regiões não tropicais.

O radônio é um gás nobre, mas seus descendentes são isótopos de metais pesados (Pb, Bi e Po) que se fixam às partículas de aerossóis da atmosfera e são depositadas no pulmão.

A dose efetiva média causada pelo radônio, comumente reportada na literatura, é da ordem de  $1 \text{ mSv.a}^{-1}$ ; esse valor, porém, não tem muito significado, pois a variação na concentração de radônio em ambientes fechados é extremamente alta, podendo atingir ordens de magnitude.

### 1.1.1 Séries de decaimento radioativo

Os principais radionuclídeos primordiais, com exceção do  $^{40}\text{K}$ , são caracterizados por pertencerem a séries de decaimento radioativo, que têm como precursores  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ . A série do  $^{235}\text{U}$  não é importante do ponto de vista radiológico, pois a contribuição dos elementos da cadeia para a dose total é pequena em relação às outras duas séries. As séries do U e Th, com suas respectivas formas de decaimento e meias-vidas de cada radionuclídeo, são apresentados nas Figuras 1.1 e 1.2, respectivamente. Quando os membros destas séries não são submetidos a nenhuma separação química ou física, eles atingem um estado de equilíbrio radioativo onde a proporção entre a taxa de decaimento do nuclídeo filho e do nuclídeo pai mantém-se constante.

As séries de decaimento podem ser divididas em sub-séries, nas quais a atividade do precursor regula as atividades de seus produtos de

decaimento. A série do  $^{238}\text{U}$  é dividida em: (a) Sub-série do  $^{238}\text{U}$  ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{234}\text{Pa}$ ,  $^{234}\text{U}$ ), onde supõe-se que o urânio é composto de  $^{238}\text{U}$  em equilíbrio radioativo com os demais membros deste grupo; (b)  $^{230}\text{Th}$ , caracterizado pela inatividade química de seus compostos de íons tetravalentes, tendendo a não migrar com os isótopos de urânio precursores; (c)  $^{226}\text{Ra}$ , que se encontra freqüentemente separado de seu precursor; (d)  $^{222}\text{Rn}$  e seus produtos de decaimento de meias-vidas curtas ( $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ), importantes do ponto de vista de radiação externa por causa dos raios gama, altamente energéticos, emitidos por meio do decaimento do  $^{214}\text{Bi}$ , sendo também importante do ponto de vista de irradiação interna; (e) Produtos de decaimento de meias-vidas longas do  $^{222}\text{Rn}$  ( $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$ ,  $^{210}\text{Po}$ ), possuindo o Pb estável como o último produto de decaimento.

## 1.2 Radioatividade artificial

A maior contribuição à dose devido à radiação de origem artificial é decorrente das aplicações médicas da radiação e substâncias radioativas, principalmente para fins diagnósticos. A dose efetiva média resultante é da ordem de 1 a 2  $\text{mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ . Nesse campo existe ainda um vasto potencial tecnológico para futuras reduções de dose, em particular pela substituição de equipamentos obsoletos, e evitando-se aplicações médicas não otimizadas.

Convém ressaltar que somente uma pequena fração de todas as exposições às quais o homem está sujeito é portanto limitada por padrões de proteção radiológica.



Dentre as fontes artificiais de radiação, as exposições médicas de pacientes não estão sujeitas a nenhum limite legal, pois elas ocorrem em benefício do próprio indivíduo. A outra componente artificial, a exposição devida a todas as outras formas de utilização pacífica da fissão nuclear e da radioatividade, é que está sujeita ao sistema de limitação de doses; a dose média da população mundial a esta forma de exposição corresponde, entretanto, a uma fração extremamente pequena da dose total, da ordem de 1%.

Dentre as exposições às fontes naturais de radiação, somente parte daquelas incrementadas de alguma forma como resultado da atividade ou ação humana, está sujeita a limites legais de dose. É o caso específico da exposição ao radônio em alguns países e as práticas de mineração do urânio e tório. Outras atividades humanas, entretanto, podem causar incrementos na dose média da população, como por exemplo, a utilização de fertilizantes fosfatados na agricultura, o consumo de águas minerais com alto teor radioativo, bem como o simples ato de fumar.

Esse incremento de dose devido às fontes naturais, resultado direto da civilização, tem recentemente merecido, por parte da comunidade científica e das autoridades legisladoras, uma atenção crescente, antes voltada quase que exclusivamente às fontes artificiais. No Brasil, SAUEIA (1998) estudou os níveis de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$  e  $^{210}\text{Po}$  presentes no fosfogesso, verificando a viabilidade de sua utilização como material de construção; SZIKSZAY e SAMPA (1982), PIRES DO RIO e colaboradores (1988), LAURIA e GODOY (1988), MOREIRA (1993), OLIVEIRA (1993), CAMARGO (1994) e NIERI NETO (1996, 1998) determinaram a dose em populações que utilizam fontes de águas minerais radioativas.

### 1.3 Objetivos do trabalho

Fumar é um hábito que, além das conseqüências não radiológicas à saúde, leva a um incremento na dose média da população devido à presença, principalmente, do  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  nas folhas de tabaco em concentrações superiores àquelas normalmente encontradas em produtos destinados ao consumo humano. Com a finalidade de incrementar o banco de dados relativo à radioatividade natural no Brasil e incentivar a discussão sobre o aspecto legislativo da utilização comercial de produtos de consumo contendo quantidades significativas de elementos radioativos naturais, o presente trabalho tem como objetivo estabelecer uma metodologia e determinar a concentração de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  em amostras representativas de cigarros de maior comercialização no país.

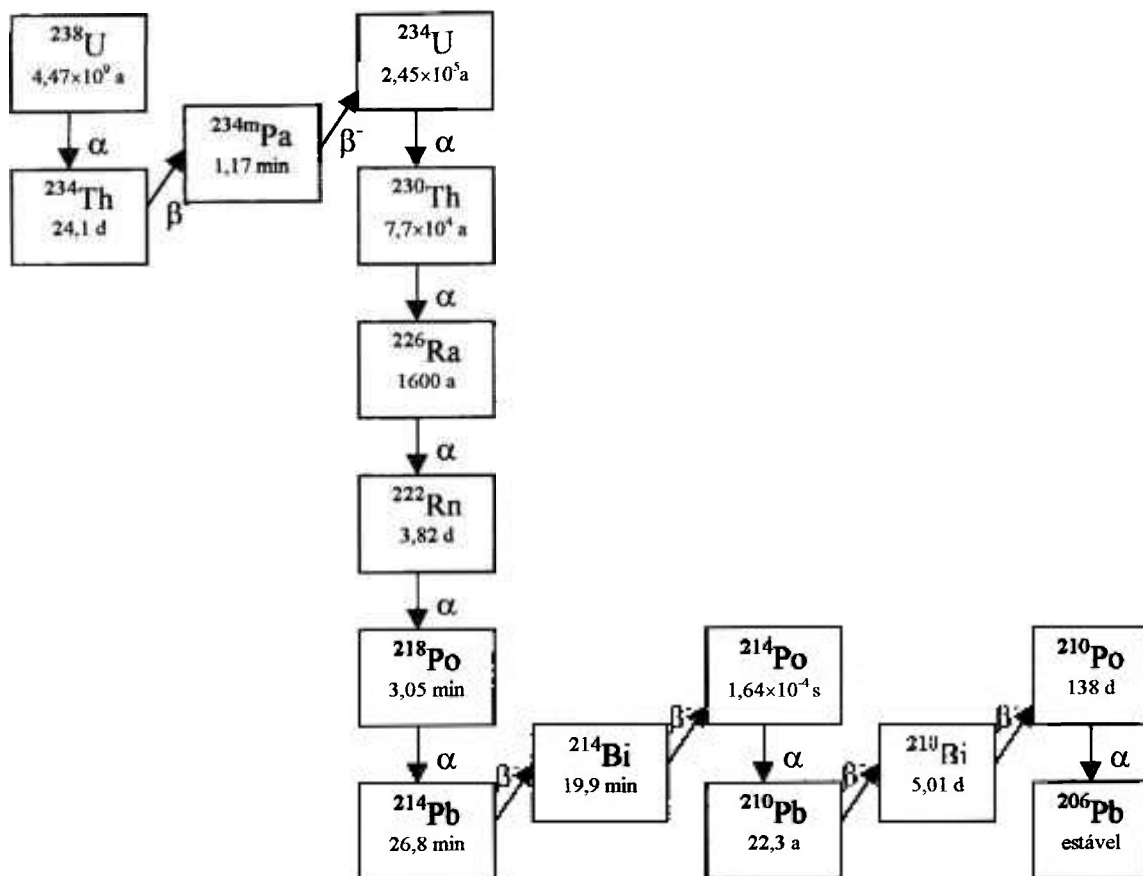


Figura 1.1 – Série de decaimento radioativo do  $^{238}\text{U}$

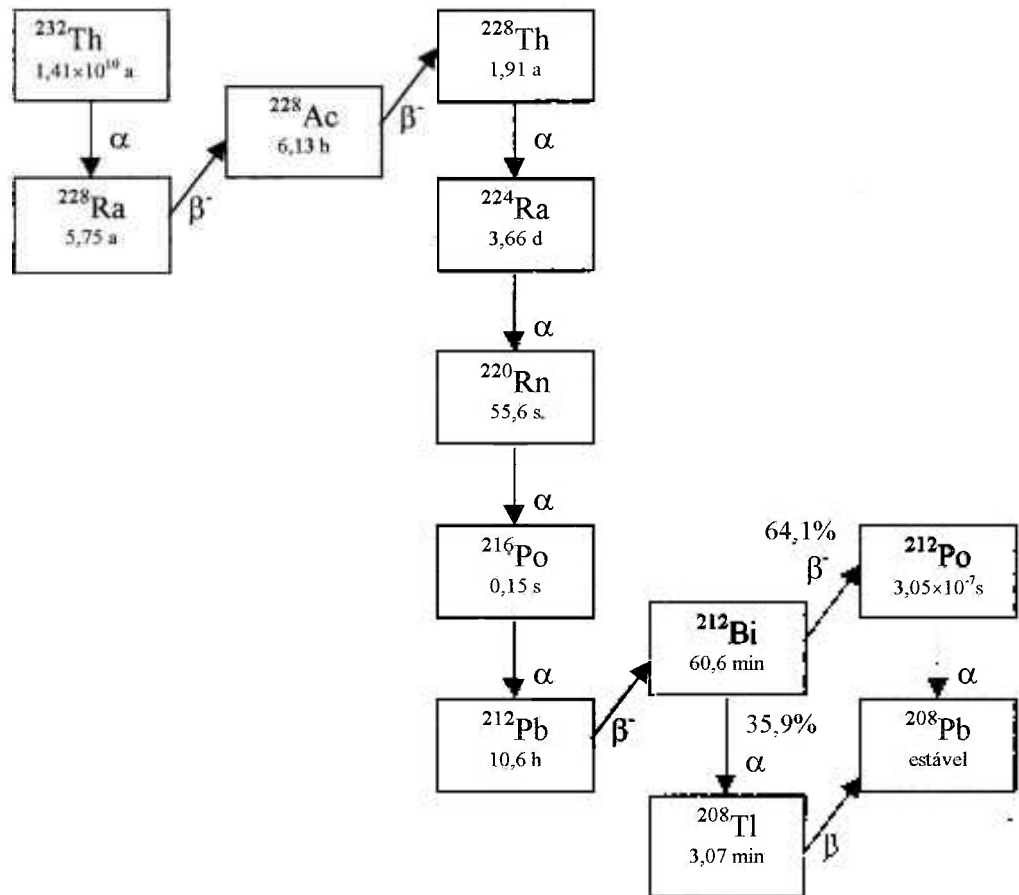


Figura 1.2 – Série de decaimento radioativo do  $^{232}\text{Th}$

## 2 O TABACO

### 2.1 Considerações sobre $^{210}\text{Pb}$ e $^{210}\text{Po}$

O  $^{210}\text{Pb}$  e o  $^{210}\text{Po}$  são produtos de decaimento da série do  $^{238}\text{U}$ . O  $^{210}\text{Pb}$  é um emissor beta com meia-vida física de 22,26 anos; quando inalado ou ingerido deposita-se preferencialmente nos ossos, dos quais é eliminado lentamente, com uma meia-vida biológica de  $10^4$  anos. O  $^{210}\text{Pb}$  decai, por intermédio do  $^{210}\text{Bi}$ , para o  $^{210}\text{Po}$ .

O  $^{210}\text{Po}$  é um emissor alfa com energia de 5,3 MeV, meia-vida física de 138,38 dias e meia-vida biológica de 50 dias. Diferentemente dos demais emissores alfa, deposita-se nos tecidos moles, como fígado e rins (Radford e col, 1963; Watson, 1985; Kilthau, 1996). O  $^{210}\text{Po}$  presente nos ossos é proveniente do decaimento do  $^{210}\text{Pb}$ . O esquema de decaimento para  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$  e  $^{210}\text{Po}$  é apresentado na Figura 2.1 (Mackenzie e Scott, 1979).

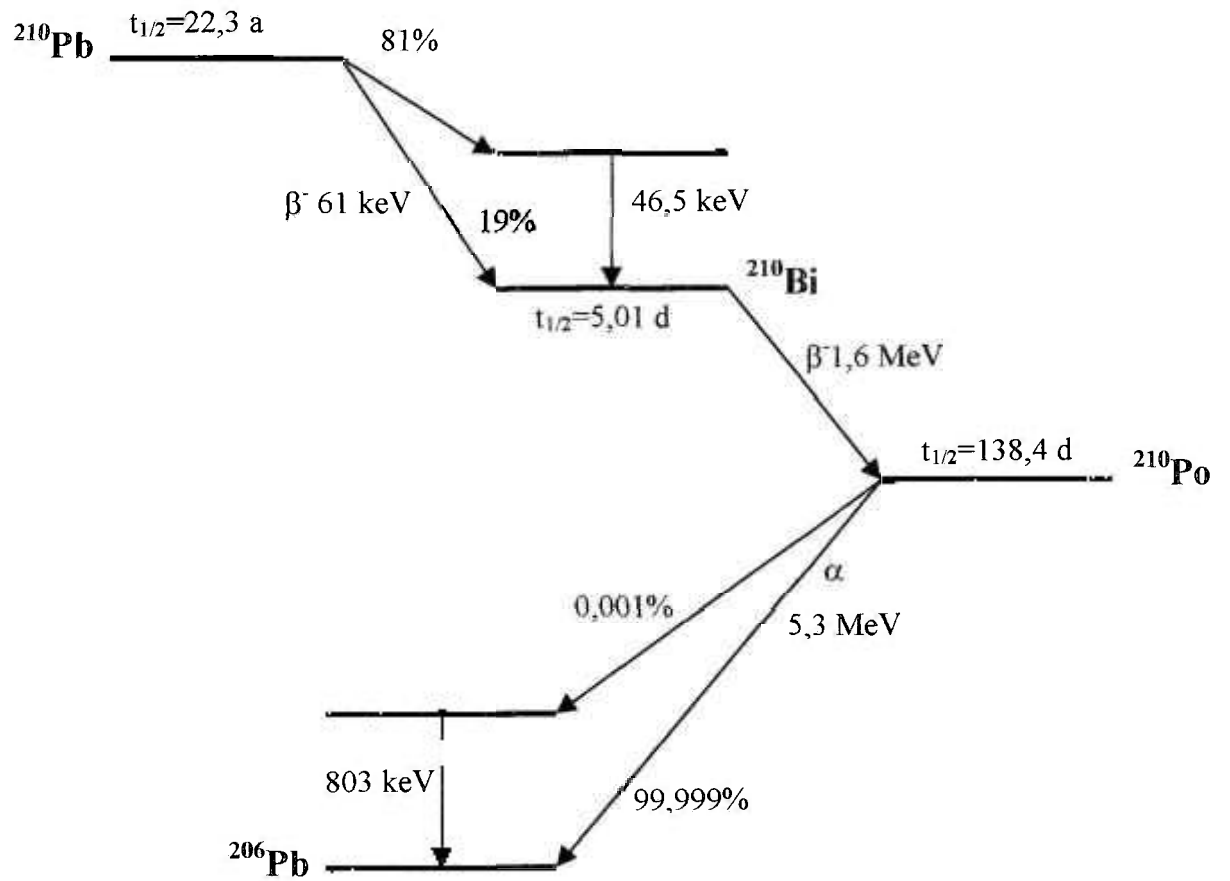


Figura 2.1 – Esquema de decaimento para  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$  e  $^{210}\text{Po}$ .

### 2.1.1 Equilíbrio radioativo $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$

Considerando um radionuclídeo A que decai para um outro radionuclídeo B, com constantes de decaimento  $\lambda_A$  e  $\lambda_B$  respectivamente, a formação de B é dada pela equação (Evans, 1966):

$$B = A_0 \frac{\lambda_A}{(\lambda_B - \lambda_A)} (e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_B t}) \quad (2.1)$$

onde A e B são o número de átomos de cada tipo presentes no instante t, obedecida a condição inicial  $B = 0$ , em  $t = 0$ .

Tem-se então várias formas de equilíbrio transiente entre A e B, dependendo da relação entre suas respectivas meias-vidas radioativas.

No caso específico do  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$ , ocorre a condição clássica do equilíbrio secular. A curva de crescimento do  $^{210}\text{Po}$ , obtida por meio da equação 2.1, é mostrada na Figura 2.2. O elemento intermediário da cadeia ( $^{210}\text{Bi}$ ) não foi considerado em virtude de sua meia-vida curta (5,01 dias) em relação às meias-vidas dos outros dois radionuclídeos.

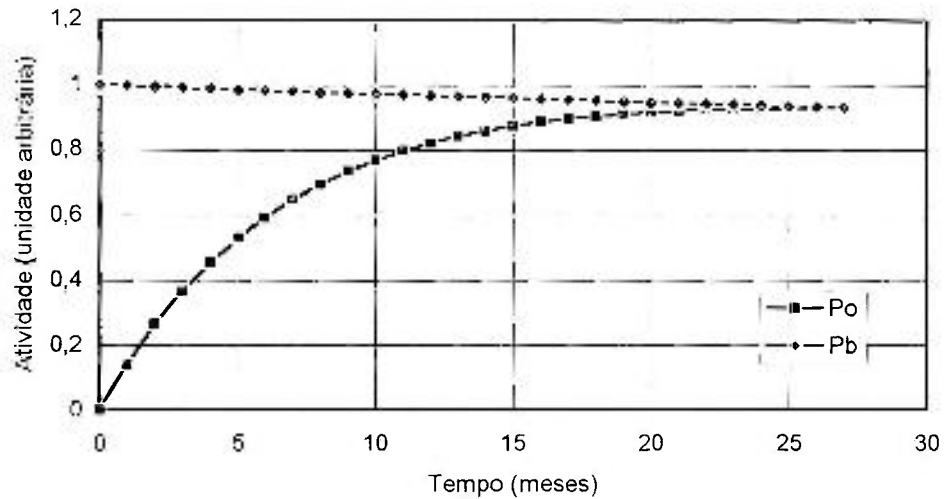


Figura 2.2 - Curva de decaimento do  $^{210}\text{Pb}$  ( $T_{1/2} = 22,26$  anos) e crescimento do  $^{210}\text{Po}$  ( $T_{1/2} = 138,38$  dias)

### 2.1.2 $^{210}\text{Pb}$ e $^{210}\text{Po}$ em alimentos

A quantidade de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  na atmosfera é devida à emissão do  $^{222}\text{Rn}$  da superfície terrestre. MAGNO e colaboradores (1970) determinaram a concentração de  $^{210}\text{Pb}$  na atmosfera variando de  $1,8 \times 10^{-4}$  a  $9,6 \times 10^{-4} \text{ Bq.m}^{-3}$ . Devido a sua meia-vida relativamente longa, o Pb é facilmente carregado para a superfície da terra pela ação da chuva. As concentrações de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$ , ao nível do solo em latitudes médias do hemisfério norte, são da ordem de  $0,5 \text{ mBq.m}^{-3}$  e  $0,04 \text{ mBq.m}^{-3}$ , respectivamente (Bennet e Sandals, 1986). A utilização de fertilizantes com fosfatos pode causar um aumento na concentração destes radionuclídeos no solo devido às altas concentrações dos produtos de decaimento da série do urânio na rocha fosfática (Parfenov, 1974; Santos e col, 1990).



A deposição na superfície das folhas de vegetais é, potencialmente, a maior fonte de contaminação na cadeia alimentar (Russel, 1965; Russel e Bruce, 1969). A relação  $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$  depende do tempo em que  $^{210}\text{Pb}$  existe dentro de uma matriz e se o polônio é seletivamente removido de seu local de formação por mecanismos químicos ou biológicos.

UNSCEAR (1982) estima que a absorção diária de  $^{210}\text{Pb}$  proveniente de uma dieta normal é de aproximadamente 0,11 Bq. As concentrações de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  na dieta padrão são iguais, o que indica que para a maioria dos alimentos existe um período de tempo suficiente para o  $^{210}\text{Po}$  alcançar o equilíbrio com o  $^{210}\text{Pb}$ .

Contudo, dois grupos populacionais têm apresentado concentrações de  $^{210}\text{Po}$  mais altas do que o normalmente esperado: populações que se alimentam de carne de rena e fumantes (Strong e col., 1994).

BEASLEY e PALMER (1966) e KAURANEM e MIETTINEN (1969) realizaram estudos em populações cuja dieta tem como base a carne de rena, animais que se alimentam de líquens, e descobriram valores para a concentração de  $^{210}\text{Po}$  aproximadamente 12 vezes mais altos que para outras populações, onde a dieta alimentar não inclui este tipo de carne.

## 2.2 Radioatividade no cigarro

Desde que MARSDEN e COLLINS (1963) perceberam a presença de atividade alfa em tabaco, diversos estudos têm sido realizados, destacando-se os de LITTLE e colaboradores (1965), que demonstraram que

$^{210}\text{Po}$  estava presente nos pulmões de fumantes e de RADFORD e HUNT (1964), que mediram as concentrações de  $^{210}\text{Po}$  em cigarros.

Acredita-se que o  $^{210}\text{Po}$  é absorvido pelo tabaco devido ao aumento de  $^{210}\text{Pb}$  depositado em suas folhas (Martell, 1974); tal fato ocorre na maioria dos vegetais, mas existem controvérsias que indicam a absorção pelas raízes como a principal via de assimilação.

A concentração de  $^{210}\text{Po}$  em vegetais varia numa faixa bastante ampla, da ordem de 0,04 a 110  $\text{mBq.g}^{-1}$  de amostra seca, sendo que para folhas de tabaco os valores situam-se entre 5 e 102  $\text{mBq.g}^{-1}$  (Parfenov, 1974).

### **2.2.1 Levantamento dos níveis de radioatividade em cigarros**

Vários estudos têm sido realizados em cigarros de diversas regiões do mundo; as concentrações de  $^{210}\text{Po}$  encontradas variam de 6 a 31  $\text{mBq.g}^{-1}$  de amostra seca, conforme mostrado na Tabela 2.1.

TABELA 2.1 – Concentrações de atividade de  $^{210}\text{Po}$  determinadas em tabaco de cigarros de diversas regiões do mundo (Watson, 1983).

Local de origem	Concentração de $^{210}\text{Po}$ ( $\text{mBq.g}^{-1}$ )
Alemanha	15,2 – 18,5
América Central e do Sul	24,8
Austrália	23,7
Canadá	9,6
Egito	16,3
Estados Unidos	11,8 – 12,6
Estados Unidos	18,9
Estados Unidos	19,2
Filipinas	6,7
Finlândia	23,3
França	20,7
Índia e Paquistão	15,2
Indonésia	8,9
Itália	13,7 – 19,6
Iugoslávia	14,8 – 22,2
Japão	11,5 – 31,1
Japão	20,0
Japão	22,2
Noruega	8,1
Rússia	22,2
Turquia e Grécia	8,9

Concentrações relativamente baixas foram determinadas em cigarros da Síria, variando de 0,74 a 2,96  $\text{mBq.g}^{-1}$  (Batarekh e Teherani, 1987).

No Brasil existem poucos trabalhos relativos a concentração de  $^{210}\text{Po}$  em cigarros. LOPES DOS SANTOS (1970) e AZEREDO (1988) determinaram uma concentração de aproximadamente 17  $\text{mBq.g}^{-1}$  de  $^{210}\text{Po}$  em tabaco; GODOY e colaboradores (1992), realizando estudos diretamente em

folhas de tabaco, encontraram valores variando numa faixa de 10,6 a 26,8 mBq.g<sup>-1</sup>.

HOLTZMAN e ILCEWICZ (1966) determinaram a concentração em ossos de fumantes, encontrando valores de 10,36 mBq/g para <sup>210</sup>Pb e 9,25 mBq/g para <sup>210</sup>Po. Estes valores correspondem a aproximadamente o dobro dos determinados para não fumantes.

### 2.3 Histórico da produção de tabaco no Brasil

O tabaco já era conhecido no Brasil pelos indígenas, antes mesmo de seu descobrimento, através da sua utilização para fins medicinais e em rituais religiosos.

Existem três espécies de tabaco, cujo nome científico é *Nicotina tabacum*: a mais importante, da qual se origina a maior parte dos cigarros industrializados, é a *Nicotiana tabacum* e as outras duas, de menor importância, são *Nicotiana rustica* e *Nicotiana petunioides*.

Por volta de 1890, já havia no Brasil uma produção em pequena escala de fumos “negros” para atender ao consumo nacional e à exportação para a Europa; em 1903, teve início a industrialização de cigarros no Estado do Rio de Janeiro. Desde 1993 o Brasil é o maior exportador mundial em volume de tabaco.

Durante muito tempo a principal região produtora foi o Estado da Bahia; porém, nas últimas três décadas houve um aumento significativo na fumicultura da região sul do Brasil, responsável, atualmente, por 90% da

produção nacional. Nessa região, ela vem sendo desenvolvida em mais de 600 municípios e é a responsável por grande parte da matéria prima utilizada pelas duas maiores companhias produtoras de cigarros no país, Souza Cruz e Philip Morris.

A cultura do tabaco vem sendo desenvolvida, desde 1918, por meio do Sistema Integrado de Produção entre indústrias e agricultores. Neste sistema, as indústrias fornecem a assistência técnica de engenheiros agrônomos e técnicos agrícolas, prestam assistência financeira, coordenam e custeiam o transporte e garantem a compra integral da produção; além disso, orientam e incentivam o uso correto, manejo e conservação do solo, diversificação de culturas e reflorestamento.

A composição química das folhas de tabaco varia muito, dependendo da planta da qual se deriva, da procedência e dos métodos de cultura empregados.

#### **2.4 Produção nacional (AFUBRA, 1999)**

Apesar da pressão antitabagista, a produção nacional de tabaco tem se mantido praticamente constante nos últimos anos, conforme mostrado na Figura 2.3. Atualmente o Brasil produz mais de 500.000 toneladas de tabaco por ano, sendo um dos maiores produtores do mundo.

Os principais tipos de tabaco produzidos são Virgínia, Burley e Comum. O Comum é o tabaco produzido exclusivamente para o mercado interno, e os tipos Virgínia e Burley, considerados variedades nobres, atendem também ao mercado externo.

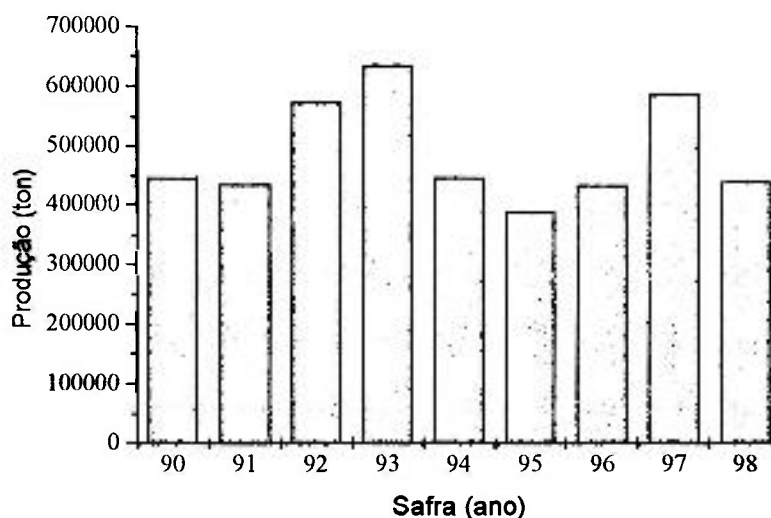


Figura 2.3 – Evolução da produção nacional de tabaco na década de 90.

A fumicultura brasileira é realizada em pequenas propriedades utilizando mão-de-obra familiar. Após secagem e classificação o tabaco segue para a indústria. Os processos aos quais o tabaco é submetido no período entre a colheita e o consumidor não são divulgados na literatura aberta. Sabe-se, porém, que o tabaco é picado, recebe agentes de sabor e, posteriormente, é enrolado e empacotado, chegando ao mercado consumidor após aproximadamente 12 a 18 meses da colheita. Pesquisas feitas pela Food and Drug Administration – FDA, junto às seis maiores companhias produtoras de cigarros dos Estados Unidos, revelaram que pelo menos 599 substâncias são adicionadas ao tabaco.

Segundo a Organização Mundial de Saúde - OMS, na fumaça do cigarro existem cerca de 4.700 substâncias tóxicas diferentes, das quais aproximadamente 60 são cancerígenas.

No presente trabalho foram analisadas as principais componentes radioativas do cigarro. O  $^{210}\text{Pb}$  e o  $^{210}\text{Po}$  foram quantificados no tabaco de alguns lotes de oito das marcas de maior comercialização no país: Belmont, Camel, Carlton, Derby, Free, Hollywood e Plaza, da Souza Cruz, e Marlboro, da Philip Morris. Estes cigarros atendem aproximadamente 80% do mercado consumidor nacional.

### 3 PROCEDIMENTOS RADIOQUÍMICOS

#### 3.1 Metodologias disponíveis para determinação de $^{210}\text{Pb}$ e $^{210}\text{Po}$

A determinação do  $^{210}\text{Pb}$  pode ser realizada diretamente, por meio da medida de seu raio gama de 46,5 keV, ou indiretamente, pela emissão beta do  $^{210}\text{Bi}$  ou pela contagem alfa do  $^{210}\text{Po}$ .

Para a medida direta do  $^{210}\text{Pb}$  há a necessidade de um detector gama para baixa energia que apresente uma baixa radiação de fundo e alta eficiência de contagem. No caso do tabaco, devido aos níveis relativamente baixos apresentados nas amostras, a utilização desta metodologia não é viável com os detectores atualmente disponíveis no IPEN.

Para a medida indireta, por intermédio do  $^{210}\text{Bi}$ , é necessário a separação radioquímica do chumbo e sua posterior precipitação. Após o crescimento do bismuto no precipitado é realizada a contagem beta (Blais e Marshall, 1988). Transcorrida uma meia vida (5,01 dias) a atividade do  $^{210}\text{Bi}$  corresponde a 50% da atividade do  $^{210}\text{Pb}$ ; após duas meias vidas, 75% e com de cerca de 15 dias (três meias vidas), 87,5%. A determinação de  $^{210}\text{Pb}$  por intermédio do  $^{210}\text{Bi}$  é rápida, porém deve-se eliminar outros radionuclídeos emissores beta que podem interferir no resultado final.

A determinação do  $^{210}\text{Pb}$  por meio do  $^{210}\text{Po}$  consiste na deposição espontânea do  $^{210}\text{Po}$ . A atividade obtida numa primeira deposição corresponde



à soma das atividades do  $^{210}\text{Po}$  inicialmente presente na amostra e do  $^{210}\text{Po}$  gerado pelo decaimento do  $^{210}\text{Pb}$ . Após esta etapa deve-se eliminar o polônio residual da amostra passando a solução por uma coluna contendo resina iônica (Bagnall, 1983). Para a determinação do  $^{210}\text{Pb}$  efetua-se uma nova deposição do  $^{210}\text{Po}$  após aproximadamente 6 meses, sendo que esta atividade corresponde ao crescimento do polônio a partir do  $^{210}\text{Pb}$  na solução remanescente da primeira deposição. Esse método é considerado mais preciso que a determinação pelo  $^{210}\text{Bi}$ , porém a grande desvantagem é o longo tempo de espera necessário para ser atingido o equilíbrio radioativo entre o  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$ .

NARITA e colaboradores (1989) aplicaram o método de separação eletroquímica para determinar  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$  e  $^{210}\text{Po}$  em amostras de águas naturais e outros materiais.

JUZNIC e KOBAL (1986) estabeleceram um método para a determinação seqüencial de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  em amostras de água de minas de urânio. Este método consiste na deposição do  $^{210}\text{Po}$  em discos de cobre e a determinação do  $^{210}\text{Pb}$  no sobrenadante por meio do  $^{210}\text{Bi}$  após a precipitação do chumbo como sulfato.

NIERI NETO (1996) também determinou  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  em amostras de águas minerais utilizando uma análise seqüencial.

No presente trabalho optou-se pela análise em paralelo do  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$ . O  $^{210}\text{Pb}$  foi determinado pela precipitação do chumbo como cromato e posterior medida beta do  $^{210}\text{Bi}$ , enquanto que o  $^{210}\text{Po}$  foi depositado em discos de cobre e medido em espectrômetro alfa.

A metodologia adotada para a determinação de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  pode ser aplicada em qualquer matriz ambiental, requer uma perfeita homogeneização da amostra e possui a vantagem de permitir a determinação, nas mesmas amostras, dos isótopos de rádio, urânio e tório.

### **3.2 Metodologia para determinação de $^{210}\text{Pb}$**

#### **3.2.1 Procedimento experimental**

O teor de  $^{210}\text{Pb}$  em tabaco foi determinado pela precipitação do cromato de chumbo (Moreira, 1993) como descrito a seguir.

Foram adicionados 1 mL de carregador de chumbo ( $20 \text{ mg.mL}^{-1}$ ) e 1 mL de carregador de bário ( $20 \text{ mg.mL}^{-1}$ ) em 5,0 g de tabaco, a fim de aumentar a concentração destes íons na solução.

Esta amostra sofreu lixiviação, em chapa aquecedora, com 40 mL de ácido nítrico concentrado. Quando a amostra estava próximo à secura, adicionou-se mais 30 mL de ácido nítrico. Este procedimento foi repetido.

Adicionou-se 10 mL de peróxido de hidrogênio para a destruição da matéria orgânica (Nevissi, 1991; Colangelo e col., 1992). Adicionou-se 10 mL de ácido nítrico 8 M, levando-se à secura por duas vezes, para a completa eliminação do peróxido de hidrogênio.

A amostra foi filtrada para eliminar eventuais resíduos sólidos e diluída para 1 L com água deionizada.

A seguir, adicionou-se 10 mL de ácido cítrico 3 M, para complexar o ferro. A solução foi aquecida até a ebulição, adicionou-se 70 mL de ácido sulfúrico 3 M sob agitação para a precipitação do sulfato de bário e chumbo e deixou-se decantar por 24 horas.

O sobrenadante foi descartado e o precipitado transferido para um tubo de centrífuga com o auxílio de água deionizada. Centrifugou-se por 10 minutos a 2000 rpm e descartou-se o sobrenadante. O precipitado foi lavado com aproximadamente 20 mL de ácido sulfúrico 0,1 M e centrifugado novamente. Descartou-se o sobrenadante.

Adicionou-se 2 g de ácido nitrilo tri-acético (Titriplex I), 40 mL de água deionizada e 7 mL de hidróxido de sódio 6 M. Dissolveu-se o precipitado a quente.

Adicionou-se, então, 5 mL de sulfato de amônio ( $25 \text{ mg.mL}^{-1}$ ) para a precipitação do rádio juntamente com o bário e 3 gotas de vermelho de metila. Adicionou-se ácido acético até ocorrer a precipitação e deixou-se decantar por 24 horas. O chumbo permaneceu em solução complexado com o ácido nitrilo tri-acético.

A solução foi centrifugada e o sobrenadante foi transferido para outro tubo de centrífuga. O precipitado foi lavado com acetato de amônio 20%, centrifugado novamente e o sobrenadante adicionado ao anterior.

O sobrenadante foi aquecido em banho-maria até quase a fervura. Adicionou-se, então, 1 mL de sulfeto de sódio 1 M para a precipitação do sulfeto de chumbo e deixou-se aquecer por mais 10 minutos.

Centrifugou-se por 20 minutos e desprezou-se o sobrenadante. O precipitado foi lavado com água deionizada e centrifugado novamente. O sobrenadante foi descartado e o precipitado de sulfeto de chumbo dissolvido com gotas de ácido nítrico concentrado e 10 mL de água deionizada. Nesta etapa o enxofre passou a enxofre coloidal e o chumbo permaneceu em solução. A solução foi filtrada em papel Whatman 44. Ajustou-se o pH do filtrado entre 4,5 e 5,0 com acetato de amônio 40%. Aqueceu-se até a ebulição e adicionou-se 2,5 mL de cromato de sódio 30% para que ocorresse a precipitação do cromato de chumbo. A solução foi, então, filtrada a vácuo em papel Millipore, lavando com álcool etílico 50%.

O papel de filtro com a amostra foi colocado em um suporte de aço inoxidável e coberto com uma folha aluminizada (myler). A função desta folha é barrar as partículas beta de baixa energia do  $^{210}\text{Pb}$  (0,016 MeV e 0,061 MeV).

Após 10 dias da precipitação efetuou-se a medida beta do  $^{210}\text{Bi}$ , formado no precipitado, utilizando-se um detetor proporcional de fluxo gasoso.

### 3.2.2 Materiais e equipamentos

- Agitador magnético com aquecimento Quimis
- Baguetas de Teflon
- Balança analítica
- Becker de vidro de 2000 mL
- Chapa aquecedora Quimis

- Detetor proporcional de fluxo gasoso da marca Berthold, modelo LB 770-2
- Funil de vidro
- Micropipetador de 1000  $\mu\text{L}$  Gilson
- Papel de filtro Millipore AP2004700
- Papel de filtro qualitativo Whatman n<sup>o</sup> 1
- Papel de filtro Whatman 44
- Pipetas de 5 e 10 mL
- Plaquetas de aço inoxidável para medida
- Provetas de vidro de 50 mL
- Termômetro de 0 a 200°C
- Tubo de centrifuga de 100 mL

### 3.2.3 Reagentes

- Acetato de amônio ( $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ ) 20%
- Acetato de amônio ( $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ ) 40%
- Ácido acético ( $\text{CH}_3\text{COOH}$ )
- Ácido cítrico ( $\text{H}_3\text{C}_6\text{H}_5\text{O}_7\cdot\text{H}_2\text{O}$ ) 3 M
- Ácido nítrico ( $\text{HNO}_3$ ) concentrado
- Ácido nitrilo tri-acético (Titriplex I)
- Ácido sulfúrico ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) 0,1 M
- Ácido sulfúrico ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) 3 M
- Álcool etílico ( $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ ) 50%
- Carregador de bário ( $20 \text{ mg}\cdot\text{mL}^{-1}$ )
- Carregador de chumbo ( $20 \text{ mg}\cdot\text{mL}^{-1}$ )
- Cromato de sódio ( $\text{Na}_2\text{CrO}_4$ ) 30%
- Hidróxido de sódio ( $\text{NaOH}$ ) 6 M
- Peróxido de hidrogênio ( $\text{H}_2\text{O}_2$ )

- Sulfato de amônio ((NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) (25 mg.mL<sup>-1</sup>)
- Sulfeto de sódio (Na<sub>2</sub>S) 1 M
- Vermelho de metila

### 3.3 Metodologia para determinação de <sup>210</sup>Po

#### 3.3.1 Procedimento experimental

Para a determinação de <sup>210</sup>Po foi utilizado o método desenvolvido por RAYA (Raya, 1995).

O traçador <sup>208</sup>Po, fornecido pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria – IRD-CNEN/RJ, foi diluído no Laboratório de Metrologia de Radionuclídeos do Departamento de Calibração e Dosimetria do IPEN-CNEN/SP para a atividade adequada ao método (aproximadamente 100 mBq.mL<sup>-1</sup>).

Foram adicionados, em 5,0 g de amostra seca de tabaco, 1 mL de traçador <sup>208</sup>Po e 40 mL de ácido nítrico concentrado. Esta amostra sofreu lixiviação em chapa aquecedora numa temperatura sempre inferior a 70°C para que fossem evitadas perdas por volatilização (Stauffer, 1980; Smith e Hamilton, 1984). Quando a amostra estava próxima à secura, adicionou-se mais 30 mL de ácido nítrico. Este procedimento foi repetido.

Adicionou-se 10 mL de peróxido de hidrogênio para a destruição da matéria orgânica (Godoy e Schüttelkopf, 1980).

Adicionou-se 10 mL de ácido nítrico 8 M e levou-se à chapa aquecedora. Quando estava próximo à secura adicionou-se mais 10 mL de ácido nítrico 8 M.

A amostra foi filtrada diretamente para um funil de separação contendo 5 mL de TBP (tributilfosfato).

A mistura foi agitada por 5 minutos. Após 10 minutos em repouso tem-se o polônio na fase aquosa e o urânio e tório, que também são emissores alfa, na fase orgânica.

Repetiu-se a extração mais duas vezes com 10 mL de ácido nítrico 8 M.

A fase aquosa foi, então, levada próximo à secura em chapa aquecedora, com a finalidade de eliminar o ácido nítrico. Em seguida adicionou-se 20 mL de ácido clorídrico concentrado, levando quase à secura, e depois mais 20 mL de ácido clorídrico 2 M.

A interferência do ferro foi evitada por meio de sua complexação, adicionando ácido L(+)-Ascórbico até que fosse observada a mudança de coloração, do amarelo para o incolor (Figgins, 1961).

A amostra foi transferida então para uma cela de deposição contendo um disco de cobre, previamente limpo com ácido clorídrico concentrado e álcool etílico, onde ocorreu a deposição espontânea do  $^{208}\text{Po}$  e do  $^{210}\text{Po}$  após 4 horas sob agitação contínua e aquecimento sempre inferior a  $70^\circ\text{C}$  (Blanchard, 1966; Flynn, 1967; Saito, 1996, 1997). O sistema utilizado para a deposição dos isótopos de polônio é apresentado na Figura 3.1.

Após o disco de cobre ser lavado com água destilada e seco ao ar, efetuou-se a medida da atividade em um espectrômetro alfa.

### 3.3.2 Materiais e equipamentos

- Agitador magnético com aquecimento Quimis
- Agitador mecânico Fisatom com haste de Nalgon
- Balança analítica
- Becker de vidro de 100 mL
- Chapa aquecedora Quimis
- Colimador de Teflon
- Discos de cobre de 20 mm de diâmetro, com espessura de 0,56 mm
- Espectrômetro alfa ORTEC (modelo 576A), detetor de silício com barreira de superfície de 300 mm<sup>2</sup> de área ativa e espessura ativa de 100 microns
- Frasco de polietileno descartável de 100 mL
- Funil de separação
- Funil de vidro
- Micropipetador de 1000 µL Gilson
- Papel de filtro qualitativo Whatman nº 1
- Pipetas de 5 e 10 mL
- Termômetro de 0 a 200°C

### 3.3.3 Reagentes

- Ácido clorídrico (HCl) concentrado
- Ácido clorídrico (HCl) 2 M
- Ácido L(+)-Ascórbico



- Ácido nítrico ( $\text{HNO}_3$ ) concentrado
- Álcool etílico ( $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ )
- Fonte de  $^{241}\text{Am}$  com atividade nominal de 5,01 kBq, Amersham
- Fonte tríplice de  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  e  $^{244}\text{Cm}$  com atividade nominal de 5,55 kBq, Amersham
- Peróxido de hidrogênio ( $\text{H}_2\text{O}_2$ )
- Traçador  $^{208}\text{Po}$  fornecido pelo IRD (Instituto de Radioproteção e Dosimetria)
- TBP (Tributilfosfato)

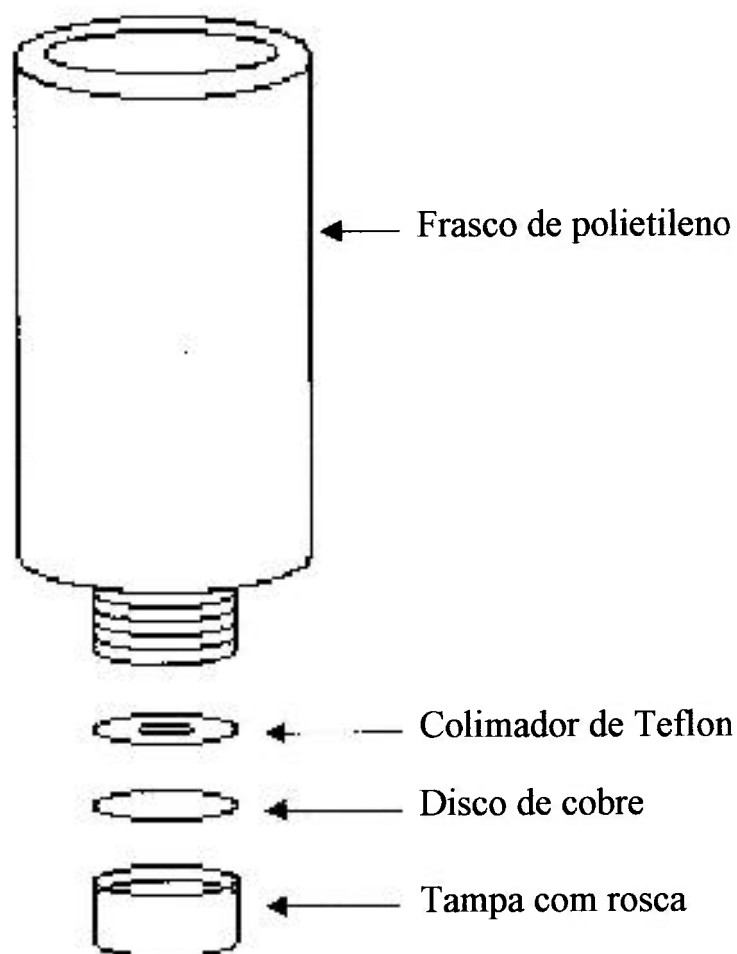


Figura 3.1 – Sistema utilizado para deposição espontânea do  $^{208}\text{Po}$  e  $^{210}\text{Po}$ .

### 3.4 Fluxograma do processo

A Figura 3.2 apresenta o fluxograma do processo utilizado para a determinação de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$ , no qual pode-se observar a possibilidade da realização de análises seqüenciais de urânio, tório e rádio.

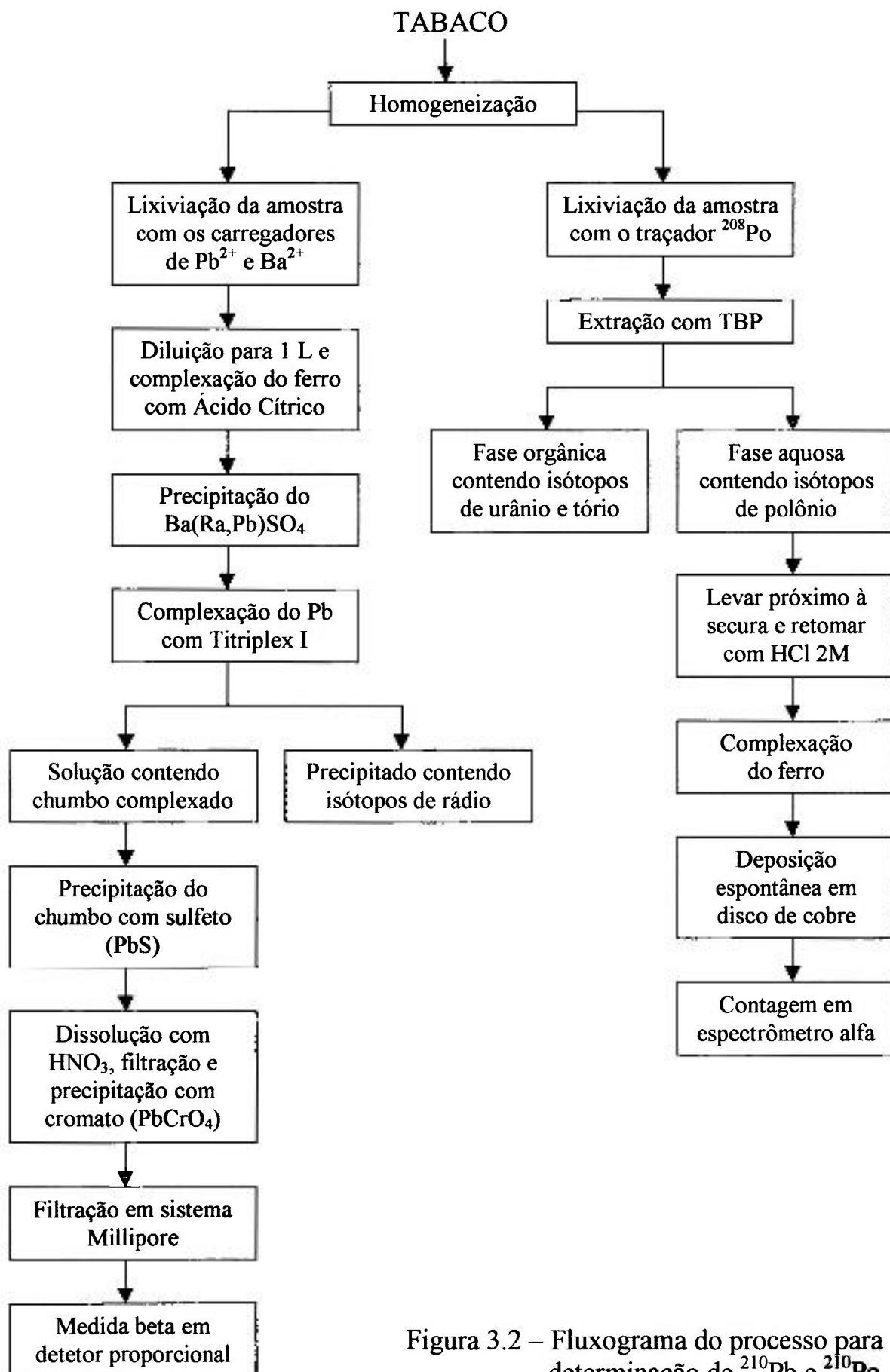


Figura 3.2 – Fluxograma do processo para determinação de  $^{210}Pb$  e  $^{210}Po$

## 4 RESULTADOS

### 4.1 Determinação de $^{210}\text{Pb}$

#### 4.1.1 Radiação de fundo

A radiação de fundo foi determinada por meio de medidas da plaqueta de aço inoxidável com o papel de filtro sem amostra. O tempo de contagem em cada câmara foi de 400 minutos e os resultados obtidos encontram-se na Tabela 4.1.

TABELA 4.1 – Medidas da radiação de fundo no detetor Berthold

CÂMARA	RADIAÇÃO DE FUNDO (cpm)
1	$2,74 \pm 0,07$
3	$2,36 \pm 0,07$
4	$2,32 \pm 0,10$
5	$2,74 \pm 0,10$
6	$2,72 \pm 0,11$
7	$2,57 \pm 0,07$
8	$2,59 \pm 0,13$
9	$2,49 \pm 0,05$
10	$2,79 \pm 0,09$

### 4.1.2 Rendimento do método

O rendimento químico do método foi calculado gravimetricamente, pela relação entre a massa de carregador de chumbo adicionado inicialmente na amostra e a massa obtida após a precipitação do  $\text{PbCrO}_4$ .

O rendimento químico, determinado para cada medida de  $^{210}\text{Pb}$ , variou de 61 a 98%.

### 4.1.3 Eficiência de contagem

A eficiência de contagem utilizada para os cálculos foi determinada por meio de uma solução padrão de  $^{210}\text{Pb}$  fornecida pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria – IRD-CNEN/RJ, preparada seguindo a mesma metodologia adotada para as amostras de tabaco.

A eficiência é dada por:

$$Ef = \frac{Ra - Rb}{A \times RQ \times (1 - e^{-\lambda t})} \quad (4.1)$$

Onde:  $Ef$  = eficiência de contagem ( $\text{cps} \cdot \text{dps}^{-1}$ )

$Ra$  = taxa de contagem do padrão (cps)

$Rb$  = taxa de contagem da radiação de fundo (cps)

$A$  = atividade do padrão (Bq)

$RQ$  = rendimento químico

$\lambda$  = constante de desintegração do  $^{210}\text{Bi}$  ( $0,183 \text{ d}^{-1}$ )

$t$  = tempo entre a precipitação de  $\text{PbCrO}_4$  e a contagem (dias)

A Tabela 4.2 apresenta os resultados de eficiência de contagem beta total do  $^{210}\text{Bi}$ .

TABELA 4.2 – Eficiência de contagem beta total do detetor Berthold

CÂMARA	EFICIÊNCIA (cps.dps <sup>-1</sup> )
1	0,343 ± 0,020
3	0,354 ± 0,004
4	0,354 ± 0,008
5	0,342 ± 0,013
6	0,351 ± 0,016
7	0,349 ± 0,006
8	0,352 ± 0,011
9	0,354 ± 0,015
10	0,343 ± 0,012

#### 4.1.4 Atividade mínima detetável

Neste trabalho definimos Atividade Mínima Detetável (AMD) como sendo o menor valor de concentração de atividade que a amostra deve conter para que, adotados os processos analíticos descritos, uma medida permita a detecção de um dado radionuclídeo, com certo grau de confiança.

Para o caso particular em que o tempo de contagem da amostra é igual ao tempo de contagem da radiação de fundo, a AMD (mBq.g<sup>-1</sup>) é dada por:

$$AMD = \frac{k^2}{T} + 2k\sqrt{2}\sqrt{RF} \left( \frac{I}{T \times RQ \times Ef \times M} \right) \quad (4.2)$$

onde:  $k$  = fator que define o nível de confiança estabelecido

$T$  = tempo de contagem da amostra (s)

$RF$  = contagem total da radiação de fundo no tempo  $T$

$M$  = massa da amostra (g)

Para um nível de confiança de 95%,  $k = 1,65$  e, portanto, AMD é dada por:

$$AMD = \frac{2,72}{T} + 4,66\sqrt{RF} \left( \frac{I}{T \times RQ \times Ef \times M} \right) \quad (4.3)$$

No caso de detecção beta total, normalmente o 1º termo do 2º membro da equação é muito menor que o 2º termo, resultando na expressão:

$$AMD = 4,66\sqrt{RF} \left( \frac{I}{T \times RQ \times Ef \times M} \right) \quad (4.4)$$

Para um tempo de contagem de 400 minutos, os valores obtidos de AMD são apresentados na Tabela 4.3.



TABELA 4.3 – Atividade mínima detetável para o  $^{210}\text{Pb}$ 

CÂMARA	AMD (mBq.g <sup>-1</sup> )
1	4,47
3	4,16
4	4,35
5	4,58
6	4,70
7	4,44
8	4,46
9	4,27
10	4,70

#### 4.1.5 Critérios de amostragem

Como citado anteriormente, foram analisadas oito das marcas de maior comercialização no país: Belmont, Camel, Carlton, Derby, Free, Hollywood e Plaza, da Souza Cruz, e Marlboro, da Philip Morris. A quantidade de lotes analisados não nos permitiu efetuar uma diferenciação entre os vários tipos de cigarros de uma mesma marca; os resultados apresentados referem-se a cigarros do mesmo tipo, dentro da mesma marca, escolhidos em função de sua popularidade.

Os cigarros foram adquiridos aleatoriamente no comércio. Variou-se o local de compra de modo a não repetir os lotes analisados.

Homogeneizou-se o conteúdo de 3 maços de cada marca reservando 15,0 gramas para a determinação de  $^{210}\text{Po}$  e 15,0 gramas para  $^{210}\text{Pb}$ . As análises foram realizadas em triplicata.

#### 4.1.6 Resultados obtidos

A concentração de  $^{210}\text{Pb}$  foi determinada pela expressão:

$$C = \frac{Ra - Rb}{Ef \times RQ \times M \times (1 - e^{-\lambda t}) \times 60} \quad (4.5)$$

onde:  $C$  = concentração de  $^{210}\text{Pb}$  ( $\text{mBq.g}^{-1}$ )

$Ra$  = taxa de contagem da amostra (cpm)

$Rb$  = taxa de contagem da radiação de fundo (cpm)

$Ef$  = eficiência de detecção do sistema ( $\text{cps.dps}^{-1}$ )

$RQ$  = rendimento químico

$M$  = massa de amostra (g)

$\lambda$  = constante de desintegração do  $^{210}\text{Bi}$  ( $0,183 \text{ d}^{-1}$ )

$t$  = tempo entre a precipitação do  $\text{PbCrO}_4$  e a contagem (d)

$60$  = fator de conversão de unidades ( $\text{s.min}^{-1}$ )

Os resultados obtidos nas análises são apresentados na Tabela 4.4.

## 4.2 Determinação de $^{210}\text{Po}$

### 4.2.1 Determinação da curva de calibração

Para a calibração do espectrômetro alfa utilizou-se uma fonte Amersham tríplice, constituída por  $^{239}\text{Pu}$  (5,155 MeV),  $^{241}\text{Am}$  (5,484 MeV) e  $^{244}\text{Cm}$  (5,806 MeV), com atividade nominal de 5,55 kBq em 17 de dezembro de 1987.

A expressão para a curva de calibração obtida foi:

$$E = 4,2 \times 10^{-3} x + 2,8 \quad (4.6)$$

Onde:  $E$  = energia (MeV)

$x$  = canal

#### 4.2.2 Branco do processo

A determinação do branco do processo foi feita com água deionizada com a adição do traçador de  $^{208}\text{Po}$ . Utilizou-se a mesma metodologia anterior e em 60.000 segundos o aparelho não apresentou contagens na região do  $^{210}\text{Po}$ .

#### 4.2.3 Rendimento do método

O rendimento químico do processo foi determinado para cada medida efetuada, por meio das contagens obtidas com o traçador  $^{208}\text{Po}$  (Benoit e Hemond, 1988). Nas amostras analisadas o rendimento químico variou de 23 a 67%.

#### 4.2.4 Eficiência de contagem

Para o cálculo da eficiência utilizou-se uma fonte de  $^{241}\text{Am}$  calibrada, da Amersham, com atividade nominal de  $5,01 \pm 0,01$  kBq em 01 de janeiro de 1999.

A eficiência é dada por:

$$Ef = \frac{Ra}{A} \quad (4.7)$$

Onde:  $Ef$  = eficiência de detecção (cps.dps<sup>-1</sup>)

$Ra$  = taxa de contagem da fonte (cps)

$A$  = atividade nominal da fonte (dps)

O valor obtido para a eficiência de contagem do detetor foi  $0,125 \pm 0,001$  cps.dps<sup>-1</sup>.

#### 4.2.5 Atividade mínima detetável

No caso da detecção do  $^{210}\text{Po}$  por espectrometria alfa, a AMD é dada pela equação 4.3, visto que normalmente a radiação de fundo assume valores próximos a zero. Para um tempo de contagem de 60.000 segundos, o valor obtido de AMD é  $4,5 \times 10^{-5}$  mBq.g<sup>-1</sup>.

#### 4.2.6 Critérios de amostragem

Para a determinação da concentração de  $^{210}\text{Po}$  foram utilizadas as mesmas amostras adquiridas para a determinação do  $^{210}\text{Pb}$ , conforme descrito no item 4.1.5. Neste caso as análises também foram realizadas em triplicata.

#### 4.2.7 Resultados obtidos

A concentração de  $^{210}\text{Po}$  foi determinada pela expressão:

$$C = \frac{Ra - Rb}{Ef \times RQ \times M} \quad (4.8)$$

Onde:  $C$  = concentração de  $^{210}\text{Po}$  ( $\text{mBq.g}^{-1}$ )

$Ra$  = taxa de contagem da amostra integrada na região do pico de 5,305 MeV (cps)

$Rb$  = taxa de contagem do branco na mesma região de  $Ra$  (cps)

$Ef$  = eficiência de detecção do sistema ( $\text{cps.dps}^{-1}$ )

$RQ$  = rendimento químico

$M$  = massa de amostra (g)

Os resultados obtidos nas análises são apresentados na Tabela 4.4.

TABELA 4.4 – Concentração de atividade de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  em cigarros nacionais

MARCA	VALIDADE	CONCENTRAÇÃO ( $\text{mBq.g}^{-1}$ )	
		$^{210}\text{Pb}$	$^{210}\text{Po}$
Belmont	Out/98	$22,6 \pm 3,7$	$20,9 \pm 3,3$
	Abr/99	$23,6 \pm 2,9$	$19,3 \pm 0,8$
Camel	Nov/98	$27,8 \pm 0,2$	$25,2 \pm 3,1$
	Jan/99	$30,2 \pm 2,2$	$27,4 \pm 3,9$
Carlton	Nov/98	$20,0 \pm 1,9$	$22,9 \pm 1,9$
	Mar/99	$23,3 \pm 3,9$	$22,0 \pm 2,7$
Derby	Dez/94 <sup>(a)</sup>	$11,9 \pm 2,1$	$10,9 \pm 2,2$
	Dez/98	$23,8 \pm 1,6$	$20,7 \pm 0,1$
	Fev/99	<sup>(b)</sup>	$23,5 \pm 0,4$
	Set/99	$22,8 \pm 6,0$	$19,9 \pm 3,4$
Free	Out/98	$20,1 \pm 4,6$	$23,3 \pm 0,3$
	Ago/99	$15,8 \pm 1,2$	<sup>(b)</sup>
Hollywood	Out/98	$20,7 \pm 3,6$	$19,2 \pm 3,4$
	Abr/99	$19,6 \pm 3,0$	$26,2 \pm 2,2$
Marlboro	Mai/99	$18,7 \pm 2,2$	$20,5 \pm 0,8$
	Out/99	$20,4 \pm 3,6$	$19,6 \pm 2,8$
Plaza	Mai/99	$20,4 \pm 2,6$	$18,8 \pm 5,3$
	Out/99	$20,2 \pm 3,7$	$21,6 \pm 0,6$

O valor médio das massas dos cigarros medidos foi de  $0,728 \pm 0,030$  gramas por cigarro.

<sup>(a)</sup> Amostra analisada após 4 anos da compra.

<sup>(b)</sup> Amostra perdida.

### 4.3 Reprodutibilidade e exatidão dos métodos para $^{210}\text{Pb}$ e $^{210}\text{Po}$

#### 4.3.1 Reprodutibilidade

A reprodutibilidade dos métodos adotados foi verificada tomando-se uma única amostra de uma das marcas analisadas, a qual foi homogeneizada e subsequentemente fracionada em nove porções, sendo cada uma delas preparada conforme descrito nos itens 3.2.1 e 3.3.1; os resultados obtidos são apresentados na Tabela 4.5.

TABELA 4.5 – Concentração de atividade de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  em amostra de tabaco para teste de reprodutibilidade

ANÁLISE	Concentração de $^{210}\text{Pb}$ ( $\text{mBq.g}^{-1}$ )	Concentração de $^{210}\text{Po}$ ( $\text{mBq.g}^{-1}$ )
1	22,1	19,6
2	22,0	20,0
3	25,6	21,0
4	20,6	22,0
5	24,2	23,0
6	19,2	20,5
7	22,3	15,6
8	25,0	19,1
9	21,0	18,7
<b>Média</b>	<b>22,4 ± 2,1</b>	<b>19,9 ± 2,1</b>

Os coeficientes de variação calculados foram, portanto, de 9,4% e 10,6% para o  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$ , respectivamente.

### 4.3.2 Exatidão

Devido à impossibilidade da obtenção de uma amostra de referência de tabaco, o estudo da exatidão dos métodos adotados foi realizado utilizando-se um padrão certificado da Agência Internacional de Energia Atômica, IAEA-300 - Sedimento do Mar Báltico, contendo  $^{210}\text{Pb}$  em equilíbrio com  $^{210}\text{Po}$ , com data de referência de 01 de janeiro de 1993.

A amostra de sedimento foi preparada seguindo a mesma metodologia adotada para as amostras de tabaco, conforme itens 3.2.1 e 3.3.1, porém utilizou-se ácido fluorídrico durante a lixiviação para a eliminação de silicatos presentes.

Foram realizadas análises para a determinação de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$ , obtendo-se os resultados apresentados na Tabela 4.6.

TABELA 4.6 – Concentração de atividade de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  em amostra de referência

Amostra IAEA-300	Concentração de $^{210}\text{Pb}$ ( $\text{mBq.g}^{-1}$ )	Concentração de $^{210}\text{Po}$ ( $\text{mBq.g}^{-1}$ )
Análise 1	364	335
Análise 2	339	375
Análise 3	329	335
<b>Média</b>	<b>344 ± 18</b>	<b>348 ± 23</b>

IAEA –300      Valor certificado para  $^{210}\text{Pb}$ :  $360 \text{ mBq.g}^{-1}$   
Intervalo de confiança de 95%: 339 a  $395 \text{ mBq.g}^{-1}$



Os métodos adotados mostraram-se bastante exatos, pois observa-se que os valores encontram-se dentro do intervalo de confiança atribuído ao valor certificado, ressalvando-se, contudo, o fato de que as análises não foram efetuadas com matriz de tabaco.

## 5 DISCUSSÕES E CONCLUSÕES

O desenvolvimento dos métodos adotados requer cuidados principalmente na homogeneização e lixiviação das amostras, pois devido as concentrações relativamente baixas de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  em tabaco, torna-se necessário o tratamento de uma massa relativamente grande de amostra.

O método utilizado para a determinação de  $^{210}\text{Pb}$  por meio da medida beta do  $^{210}\text{Bi}$ , apesar do grande número de etapas durante a separação radioquímica, mostrou-se bastante satisfatório, pois os sucessivos processos de precipitação e dissolução garantem um precipitado final de cromato de chumbo praticamente livre de interferentes.

Na determinação de  $^{210}\text{Po}$ , o problema mais crítico é a perda do polônio por volatilização, o que foi resolvido com utilização de traçador radioativo, que permite a determinação do rendimento de recuperação do polônio na análise, e do controle da temperatura durante todo o processamento da amostra, que não deve ser superior a  $80^{\circ}\text{C}$ .

Os métodos empregados mostraram-se bastante exatos e reprodutíveis, o que os tornam confiáveis para a determinação rotineira destes radionuclídeos em amostras ambientais.

Os valores de concentração de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  obtidos no presente trabalho encontram-se dentro do intervalo reportado na literatura. Nas

amostras analisadas, o  $^{210}\text{Pb}$  apresentou concentrações variando de 11,9 a 30,2 mBq por grama de tabaco, com média aritmética de  $21,3 \pm 4,1$  mBq.g<sup>-1</sup>, enquanto que o  $^{210}\text{Po}$  apresentou concentrações variando de 10,9 a 27,4 mBq.g<sup>-1</sup> de tabaco, com média aritmética de  $21,2 \pm 3,7$  mBq.g<sup>-1</sup>.

Na Figura 5.1 é apresentada a razão calculada entre a concentração de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  em cada lote de cigarro analisado.

Dentro do erro experimental das medidas, observa-se a condição de equilíbrio radioativo entre esses dois radionuclídeos em 14 das 16 amostras analisadas. Pode-se dizer que esse resultado era esperado, visto que o tempo decorrido entre a colheita das folhas de tabaco e a colocação do cigarro no mercado é suficiente para que se estabeleça o equilíbrio radioativo. Razões próximas a 1 não trazem, entretanto, nenhuma informação quanto a possíveis processos químicos envolvidos na fabricação do cigarro que pudessem ter alterado as concentrações de chumbo e polônio no tabaco, nem tampouco permitem análises conclusivas quanto à razão inicial de concentração do Pb e Po nas folhas de tabaco.

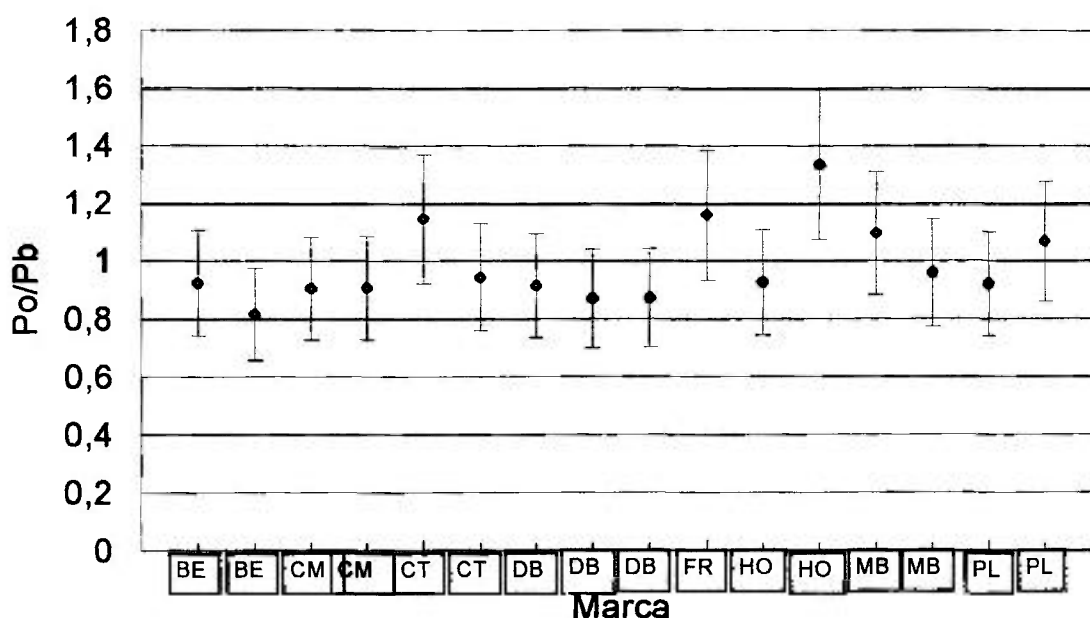


Figura 5.1 - Razão entre as concentrações de Pb e Po nos lotes de cigarros analisados. (BE: Belmont; CM: Camel; CT: Carlton; DB: Derby; FR: Free; HO: Hollywood; MB: Marlboro; PL: Plaza)

Supondo-se que o valor médio das concentrações obtidas seja representativo da média de todos os cigarros produzidos no Brasil, podemos estimar as quantidades incorporadas e a dose efetiva por indivíduo, bem como a dose efetiva coletiva. É apenas uma estimativa, que nos fornece uma ordem de magnitude das grandezas em questão; para cálculos mais exatos, estudos adicionais serão necessários, que não estão dentro do escopo do presente trabalho.

Considerando-se que um indivíduo consuma 20 cigarros por dia, e que 10% do Pb e 20% do Po sejam inalados pelo fumante primário (UNSCEAR, 1982), obtém-se um valor de incorporação anual de 11,3 Bq de  $^{210}\text{Pb}$  e 22,5 Bq de  $^{210}\text{Po}$ . Em termos de dose, aplicando-se os coeficientes de dose para o indivíduo adulto,  $5,6 \times 10^{-6} \text{ Sv.Bq}^{-1}$  para o  $^{210}\text{Pb}$  e  $4,3 \times 10^{-6} \text{ Sv.Bq}^{-1}$  para o  $^{210}\text{Po}$  (ICRP-72, 1995), corresponde a um incremento total na dose efetiva comprometida de 0,16 mSv por ano de consumo.

Considerando-se que a produção anual de cigarros no Brasil é de 500.000 toneladas, obtém-se uma dose efetiva coletiva de  $1,5 \times 10^4$  pessoa.Sv, resultante do consumo de cigarros correspondente a um ano de produção nacional.

Muito embora estas estimativas de dose necessitem ser analisadas com cautela, devido as incertezas associadas, são uma indicação de que o cigarro pode ser um dos principais agentes causadores de incrementos na dose coletiva mundial, decorrentes do manuseio de fontes naturais de radiação não sujeitas à regulamentação.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. AFUBRA – Associação dos Fumicultores Brasileiros. Internet: <http://www.afubra.com.br>, 1999.
2. AZEREDO, A. M. G. F. *Estudo sobre excreção de  $^{210}\text{Po}$  em urina*. Rio de Janeiro: 1988. Dissertação (Mestrado) - Universidade do Estado do Rio de Janeiro.
3. BAGNALL, K. W. The chemistry of polonium. *Radiochimica Acta*, v. 32, p. 153-161, 1983.
4. BATAREKH, K.; TEHERANI, D. K. Determination of polonium-210 in cigarettes from Syria. *J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters* 117, p. 75-80, 1987.
5. BEASLEY, T. M.; PALMER, H.E. Lead-210 and polonium-210 in biological samples from Alaska. *Science*, v. 152, p. 1062-1063, 1966.
6. BENNET, S. L., SANDALS, F. J.  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$  and  $^{210}\text{Po}$  in the human environment. MAFF/AEA-EE-0074, 1986.
7. BENOIT, G.; HEMOND, H. F. Improved methods for the measurement of  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{226}\text{Ra}$ . *Limnol. Oceanogr.*, v. 33, p. 1618-1622, 1988.

8. BLAIS, J. S.; MARSHALL, W. D. Determination of lead-210 in admixture with bismuth-210 and polonium-210 in quenched samples by liquid scintillation counting. *Anal. Chem.*, v. 60, p. 1851-1855, 1988.
9. BLANCHARD, R. L. Rapid determination of lead-210 and polonium-210 in environmental samples by deposition on nickel. *Anal. Chem.*, v. 38, p.189-192, 1966.
10. CAMARGO, I. M. C. *Determinação da concentração dos isótopos naturais de urânio e tório em amostras de água*. São Paulo: 1994. Dissertação (Mestrado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
11. CHMELEVSKY, D.; BARCLAY, D.; KELLERER, A. M.; TOMASEK, L.; KUNZ, E.; PLACEK, V. Probability of causation for lung cancer after exposure to radon progeny: a comparison of models and data. *Health Physics*, v. 67, p. 15-23, 1994.
12. COLANGELO, C. H.; HUGUET, M. R.; PALACIOS, M. A.; OLIVEIRA, A. A. Levels of  $^{210}\text{Po}$  in some beverages and in tobacco. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, Letters 166, p. 195-202, 1992.
13. EISENBUD, M. *Environmental radioactivity*. 3ed. Orlando, Academic Press, 1987.
14. EVANS, R. D. The effect of skeletally deposited alpha-ray emitters in man. *Br. J. Radiol.*, v. 39, 881-895, 1966.
15. FIGGINS, P. E. *The radiochemistry of polonium*. Miamisburg, Ohio, 1961.

16. FLYNN, W. W. The determination of low levels of polonium-210 in environmental materials. *Anal. Chem. Acta.*, v. 43, p. 221-227, 1968.
17. GODOY, J. M.; GOUVEA, V. A.; MELLO, D. R.; AZEREDO, A. M. G.  $^{226}\text{Ra}/^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$  equilibrium in tobacco leaves. *Radiation Protection Dosimetry*, v. 45, p. 299-300, 1992.
18. GODOY, J. M.; SCHÜTTELKOPF, H. *Eine radiochemische methode zur bestimmung von Po-210 in umweltmaterialien*. Karlsruhe: Kernforschungszentrum, 1980. (KfK 2987).
19. HOLTZMAN, R. B. The determination of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  in biological and environmental materials. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, v. 115, p. 59-70, 1987.
20. HOLTZMAN, R. B.; ILCEWICZ, F. H. Lead-210 and polonium-210 in tissues of cigarette smokers. *Science*, v. 153, p. 1259-1260, 1966.
21. INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. *Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 5. Compilation of ingestion and inhalation dose coefficients*. Oxford, Elsevier, 1995. (ICRP Publication 72).
22. JUZNIC, K.; KOBAL, I. Radiochemical determination of Po-210 and Pb-210 in water. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, v. 102, p. 493-498, 1986.
23. KAURANEN, P.; MIETTINEN, J. K.  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in the arctic food chain and the natural radiation exposure of Lapps. *Health Physics*, v. 16, p. 287-296, 1969.



24. KILTHAU, G. F. Cancer risk in relation to radioactivity in tobacco. *Radiologic Technology*, v. 67, p. 217-222, 1996.
25. LAURIA, D. C.; GODOY, J. M. Determinação de  $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  e  $^{226}\text{Ra}$  em águas minerais do planalto de Poços de Caldas. *Cienc. Cult.*, v. 40(9), p. 906-908, 1988.
26. LITTLE, J. B.; RADFORD, E. P.; McCOMBS, H. L. HUNT, V. R. Distribution of polonium in pulmonary tissues of cigarette smokers. *N. Engl. J. Med.*, v. 173, p. 1343, 1965.
27. LOPES DOS SANTOS, P.; WEINBERG, E. M. PENNA-FRANCA, E. Determinação de  $^{210}\text{Po}$  em cigarros e tabaco. *Rev. Biol. Med. Nucl.*, v. 2, p. 73-77, 1970.
28. MACKENZIE, A. B.; SCOTT, R. D. Separation of bismuth-210 and polonium-210 from aqueous solutions by spontaneous adsorption on copper foils. *Analyst*, v. 104, p. 1151-1158, 1979.
29. MAGNO, P. J.; GROULX, P. R.; APIDIANAKIS, J. C. Lead-210 in air and total diets in U. S. *Health Physics*, v. 18, p. 383-388, 1970.
30. MARSDEN, e.; COLLINS, M. A. Particle activity and free radicals from tobacco. *Nature*, v. 198, p. 962, 1963.
31. MARTELL, E. A. Radioactivity of tobacco trichomes and insoluble cigarette smoke particles. *Nature*, v. 249, p. 215-217, 1974.
32. MOREIRA, S. R. D. *Determinação de  $^{210}\text{Pb}$  em águas minerais da região de Águas da Prata*. São Paulo: 1993. Dissertação (Mestrado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.

33. NARITA, H.; HARADA, K.; BURNETT, W. C.; TSUNOGAI, S.; McCABE, W. J. Determination of  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$  and  $^{210}\text{Po}$  in natural water and other materials by electrochemical separation. *Talanta*, v. 36, p. 925-929, 1989.
34. NEVISSI, A. E. Measurement of  $^{210}\text{Lead}$ ,  $^{210}\text{Bismuth}$  and  $^{210}\text{Polonium}$  in environmental samples. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, v. 148, p. 121-131, 1991.
35. NIERI NETO, A. *Determinação de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  em águas minerais radioativas*. São Paulo: 1996. Dissertação (Mestrado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
36. NIERI NETO, A.; MAZZILLI, B. Evaluation of  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in some mineral spring waters in Brazil. *J. Environ. Radioactivity*, v. 41, p. 11-18, 1998.
37. OLIVEIRA, J. *Determinação de  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  em águas minerais da região de Águas da Prata*. São Paulo: 1993. Dissertação (Mestrado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
38. PARFENOV, Y. D.  $^{210}\text{Po}$  in the environment and in the human organism. *Atom. Energy Rev.*, v. 12, p. 75-143, 1974.
39. PINKAU, K.; RENN, O. *Environmental standards. scientific foundations and rational procedures of regulation with emphasis on radiological risk management*. Boston, Kluwer Academic Publishers, 1998.

40. PIRES DO RIO, M. A.; GODOY, J. M.  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  and  $^{210}\text{Pb}$  concentrations in brazilian mineral waters. *Radiat. Prot. Dosim.*, v. 24(1/4), p. 159-161, 1988.
41. RADFORD, E. P.; HUNT, V. R. Polonium-210: A volatile radioelement in cigarettes. *Science*, v. 143, p. 247-249, 1964.
42. RADFORD, E. P.; HUNT, V. R.; SHERRY, D. Analysis of teeth and bones for alpha-emitting elements. *Radiation Research*, v. 19, p. 298-315, 1963.
43. RAYA, J. P. B. *Aplicaciones de la espectrometria gamma y alfa al estudo del impacto radiactivo producido por industrias no nucleares*. Sevilla: 1995. Tese (Doutorado), Universidad de Sevilla.
44. RUSSEL, R. S. Interception and retention of airborne material on plants. *Health Phys*, v. 11, p. 1305-1315, 1965.
45. RUSSEL, R. S.; BRUCE, R. S. Environmental contamination with fallout from nuclear weapons. *Environ. Contam. Radioact. Mater, Proc. Semin.*, Vienna, 1969.
46. SAITO, R. T. *Determinação de  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{210}\text{Po}$  em amostras marinhas e aerossóis*. São Paulo: 1996. Dissertação (Mestrado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
47. SAITO, R. T.; CUNHA, I. I. L. Analysis of  $^{210}\text{Po}$  in marine samples. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, v. 220, p. 117-119, 1997.

48. SANTOS, P. L.; GOUVEA, R. C.; DUTRA, I. R.; GOUVEA, V. A. Accumulation of  $^{210}\text{Po}$  in foodstuffs cultivated in farms around the Brazilian mining and milling facilities on Poços de Caldas plateau. *J. Environ. Radioactivity*, v. 11, p. 141-149, 1990.
49. SAUEIA, C. H. R. *Caracterização radioquímica do fosfogesso e implicações radiológicas de sua utilização como material de construção*. São Paulo: 1998. Dissertação (Mestrado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
50. SEVC, J.; KUNZ, E.; TOMAZEK, L.; PLACEK, V.; HORACEK, J. Cancer in man after exposure to Rn daughters. *Health Physics*, v. 54, p. 27-46, 1988.
51. SMITH, J. D.; HAMILTON, T. F. Improved technique for recovery and measurement of polonium-210 from environmental materials. *Analytica Chimica Acta*, v. 160, p. 69-77, 1984.
52. STAUFFER CHEMICAL COMPANY; R. G. Campbell. *Removal of radioactive lead and polonium from tobacco*. US Pat. 4,194,514. Mar. 25, 1980.
53. STRONG, J. C.; BLACK, A.; KNIGHT, D. A.; DICKENS, C. J.; McAUGHEY, J. The regional lung deposition of thoron progeny attached to the particulate phase of environmental tobacco smoke. *Radiation Protection Dosimetry*, v. 54, p. 47-56, 1994.
54. SZIKSZAY, M.; SAMPA, M. H. O. Variação de radioatividade nas águas das fontes da estância de Águas da Prata. *Bol. Inst. Geocien.*, v. 13, p. 25-42, 1982.

55. UNITED NATIONS SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATION (UNSCEAR). *Ionizing radiation: sources and biological effects*. New York, United Nations, 1982.
56. UNITED NATIONS SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATION (UNSCEAR). *Sources and effects of ionizing radiation*. New York, United Nations, 1993.
57. WATSON, A. P. *Polonium-210 and lead-210 in food and tobacco products: A Review of Parameters and an Estimate of Potential Exposure and Dose*. Oak Ridge National Laboratory, 1983. (ORNL/TM--8831).
58. WATSON, A. P. Polonium-210 and lead-210 in food and tobacco products: transfer parameters and normal exposure and dose. *Nuclear Safety*, v. 26, p. 179-191, 1985.