

IMPLEMENTAÇÃO DE ESPECTROMETRIA ALFA PARA ISÓTOPOS DE URÂNIO E SUA APLICAÇÃO PARA PROPÓSITOS DE MONITORAÇÃO

Alberto S. Todo, Micheli L. Lovisi e Janete G.C.Carneiro

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN / CNEN - SP)
Av. Professor Lineu Prestes 2242
05508-000 São Paulo, SP
astodo@ipen.br

ABSTRACT

The measurement of radioactivity concentrations in excreta samples is an important tool for the monitoring of possible radionuclides intakes by occupationally exposed workers. The two methods presently operational at IPEN-SP/Brazil for monitoring internal contamination to uranium are urine analysis by fluorimetry and alpha spectrometry [1]. Fluorimetry is the routine monitoring method applied for natural uranium while the alpha spectrometry is limited for few workers according to their new activities in the uranium processing plant. The handling of enriched uranium has resulted in an exposure to different types of uranium compounds identified as Type F, M, S and some of its combination. Therefore, a review of bioassay program applied to uranium workers has shown the need to optimising alpha spectrometry in consequence of handling both natural uranium and uranium compounds with different isotopic composition, which could reach up to 20% in ^{235}U . Moreover, a radiochemical procedure for the determination of uranium isotopes in urine has been optimised, using co-precipitation and ionic exchange resin separation followed by electrodeposition onto stainless steel plates and alpha-spectrometry [5]. The method with chemical recovery of 85% offers good prospects to be applied for the routine monitoring of workers. Additionally, investigation and information provided by radiation protection service about the working conditions as well as the main tasks of the workers were considered valuable to the evaluation of the monitoring results. Assessment of intake of uranium based on urine assay is likely to be appreciable in errors under most condition of occupational exposure [2,6,7]. However, urine analysis can be important for assessing intakes after a known event or when monitoring intervals do not exceed about 3 months. Urine measurements from IPEN workers were carried out and the interpretation of uranium data in terms of derived limit and intake were estimated taking into account 19.75% ^{235}U enriched uranium.

1. INTRODUCTION

As atividades do programa de monitoração interna são conduzidas pelo serviço de proteção radiológica da instalação e têm como objetivo evitar que os limites de dose sejam excedidos e que as irradiações dos indivíduos ocupacionalmente expostos, IOE, sejam mantidas tão baixas quanto razoavelmente exequíveis, considerando os fatores econômicos e sociais. O controle da contaminação interna dos indivíduos ocupacionalmente expostos é um dos componentes do programa de monitoração, considerando o risco potencial de incorporação de material radioativo. Como consequência torna-se importante desenvolver e aprimorar técnicas para monitoração dos radionuclídeos presentes nos locais de trabalho.

Atualmente, o programa de monitoração de contaminação interna para o urânio no Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN é realizado por meio das técnicas de fluorimetria e espectrometria alfa, de acordo com a composição isotópica [1]. A fluorimetria é o método empregado para a monitoração do urânio natural enquanto que a espectrometria alfa é utilizada tanto para o urânio enriquecido como para o urânio natural. Em virtude de existirem grupos de indivíduos ocupacionalmente expostos, no ipen, que manuseiam urânio natural e

urânio enriquecido, foi iniciado a revisão dos programas de monitoração interna. Neste sentido, este estudo procura fornecer subsídios para definir o grupo de indivíduos ocupacionalmente expostos, o método de bioanálise e a periodicidade para estabelecer um programa de monitoração para contaminação interna.

2. METODOLOGIA

A metodologia utilizada para a avaliação da dose interna está baseada nos conceitos fundamentais descritos pela Comissão Internacional de Proteção Radiológica, ICRP, na publicação 78 [2], para monitoração rotineira e especial.

Apresentam-se as considerações para a análise dos principais compostos de urânio que contribuem para a dose dos IOE e para a implementação de um programa de monitoração eficaz.

2.1. Conceitos e modelos aplicados na dosimetria interna para o urânio

O conhecimento do comportamento dos materiais radioativos no corpo humano é essencial para a interpretação das medidas de atividade em órgãos ou excretas em termos de incorporação ou dose equivalente comprometida. Este conhecimento também é fundamental na definição de um conjunto de níveis de referência derivados que são utilizados em um programa de monitoração individual.

Neste estudo foi utilizado o modelo dosimétrico da ICRP 66 [3] para o sistema respiratório, assim como o modelo biocinético e os coeficientes de conversão de dose do urânio apresentados, respectivamente, na publicação da ICRP 67 [4] e ICRP 78 [2].

2.2. Determinação de urânio pela técnica *in vitro*

Atualmente, o controle da contaminação interna dos trabalhadores ocupacionalmente expostos do IPEN é realizado pelas técnicas de fluorimetria e espectrometria alfa [1].

O método fluorimétrico é uma técnica não nuclear e é utilizado para determinação de urânio natural em urina. Neste método, a fluorescência emitida pelo urânio, quando exposto à luz ultravioleta, não consegue diferenciar seus isótopos assim como a presença de outros elementos que interferem na leitura da amostra. Esta técnica tem a vantagem de possuir sensibilidade e rapidez necessária para detectar urânio total com um limite de detecção de $1 \mu\text{gL}^{-1}$.

O método por espectrometria alfa é utilizado em monitoração ocupacional para avaliar a composição isotópica do urânio em amostras de urina e fezes. Esta técnica determina a participação de todas as energias alfas dos isótopos de urânio e o resultado da concentração em atividade é expresso em BqL^{-1} . As principais etapas envolvidas neste procedimento são a pré-concentração ou co-precipitação, a separação radioquímica, a preparação da fonte por eletrodeposição e quantificação por espectrometria alfa. O ^{232}U é adicionado em cada amostra como traçador, para monitorar o rendimento químico da análise e corrigir o resultado final. O rendimento químico típico é de aproximadamente 85% [5]. O limite de detecção do método para urânio em urina pode variar de 0,1 a 1 mBqL^{-1} .

2.3. Programa de monitoração individual interna

O programa de monitoração para contaminação interna pode ser efetuado *in vivo* ou *in vitro* e sua função bem como a frequência é determinada, segundo estabelecidos nas publicações 78

e 75 da ICRP [2,6,7]. A monitoração rotineira é caracterizada pelas medidas regulares, devido ao risco contínuo de contaminação interna, cuja frequência estabelecida deve estar de acordo como o comportamento do radionuclídeo no corpo, a sensibilidade das técnicas e das incertezas. A monitoração especial é realizada com o objetivo de avaliar uma situação anormal identificada ou para complementar uma monitoração rotineira.

Nos casos onde não se tem o conhecimento de um modelo específico de incorporação que represente a atividade desenvolvida na instalação, a ICRP recomenda que os períodos de monitoração rotineira sejam selecionados supondo-se a ocorrência da incorporação na metade do intervalo entre as medidas. A utilização deste modelo não deve proporcionar uma subestimativa ou superestimativa da incorporação por um fator maior do que três.

Assim, considerando que M é a quantidade de medida no corpo inteiro, no órgão ou nas excretas, obtém-se a incorporação, I , ao final do período da monitoração, T , que é dada pela expressão (1):

$$I = \frac{M}{m(T/2)} \quad (Bq) \quad (1)$$

A dose efetiva comprometida, $E(50)$, é obtida multiplicando-se o valor da incorporação, I , pelo coeficiente de dose $e(g)_j$ [3], para o radionuclídeo de interesse j , conforme a expressão (2):

$$E(50) = I.e(g)_j \quad (Sv) \quad (2)$$

Para o caso onde a incorporação ocorre em $(T - 1)$ dias da medida, o resultado do cálculo da dose será subestimado e para 1 dia antes da medida teremos uma superestimação. O fator que calcula a subestimativa, R_1 e superestimativa, R_2 são determinados pelas expressões (3) e (4):

$$R_1 = \frac{E(50)_{t=T-1}}{E(50)_{t=T/2}} \quad (3)$$

$$R_2 = \frac{E(50)_{t=T/2}}{E(50)_{t=1}} \quad (4)$$

Um outro fator limitante na determinação da frequência de medidas é o limite de detecção do método para os radionuclídeos de interesse no programa de monitoração. Neste caso, atribui-se para o valor da atividade medida na expressão (1) o limite de detecção do método utilizado na monitoração rotineira.

Além disso, deve-se determinar o nível de registro derivado, NRD [7], considerando o número de monitorações realizadas em um ano e para a dose efetiva comprometida de 1mSv. O valor do NRD deve ser inferior ao limite de detecção do método de medida, para o período de monitoração rotineira selecionado.

3. RESULTADO E DISCUSSÃO

Neste estudo foi determinada a atividade incorporada mínima e a dose efetiva comprometida mínima para o urânio enriquecido a 19,75%, para cada um dos seus isótopos. O limite de

detecção para a espectrometria alfa na urina de 24 h foi de $8,6E-01 \text{ mBqL}^{-1}$ ou $1,2E-03 \text{ Bq}$ corrigido para a excreção urinária de 1,4 L.

Para propósitos de monitoração rotineira, considerou-se que a incorporação ocorre por inalação e o diâmetro aerodinâmico mediano em atividade, AMAD, das partículas é de $5 \mu\text{m}$ para os compostos dos tipos F (rápido), M (moderado) e S (lento) [3].

Os resultados dos cálculos obtidos conforme as expressões (1), (2), (3) e (4) são apresentados nas Tabela 1, 2 e 3.

Tabela 1. Atividade incorporada mínima, dose efetiva comprometida mínima detectável, fatores R_1 e R_2 e nível de registro derivado, NRD para o urânio enriquecido a 19,75%, tipo F.

Composto de urânio tipo F					
Período de Monitoração, T (d)	Atividade Incorporada Mínima (Bq)	$E_{\min}(50)$ (mSv)	R_1	R_2	NRD (Bq)
180	1,00E+01	6,36E-03	3,93E+00	4,18E+01	9,30E-01
90	5,22E+00	3,32E-03	2,87E+00	1,43E+01	1,36E-01
60	1,76E+00	1,12E-03	2,90E+00	7,37E+00	1,76E-01
30	6,67E-01	4,24E-04	2,55E+00	2,79E+00	2,33E-01
14	3,43E-01	2,18E-04	1,81E+00	1,43E+00	2,11E-01

Tabela 2. Atividade incorporada mínima, dose efetiva comprometida mínima detectável, fatores R_1 , R_2 e nível de registro derivado, NRD para o urânio enriquecido a 19,75%, tipo M.

Composto de urânio tipo M					
Período de Monitoração, T (d)	Atividade Incorporada Mínima (Bq)	$E_{\min}(50)$ (mSv)	R_1	R_2	NRD (Bq)
180	1,00E+01	2,07E-02	1,84E+00	1,11E+01	2,86E-02
90	7,06E+00	1,46E-02	1,65E+00	6,63E+00	2,38E-02
60	4,44E+00	9,19E-03	1,57E+00	4,91E+00	2,14E-02
30	2,79E+00	5,77E-03	1,56E+00	3,09E+00	1,71E-02
14	1,85E+00	3,83E-03	1,43E+00	2,05E+00	1,20E-02

Tabela 3. Atividade incorporada mínima, dose efetiva comprometida mínima detectável, fatores R_1 , R_2 e nível de registro derivado, NRD para o urânio enriquecido a 19,75%, tipo S.

Composto de urânio tipo S					
Período de Monitoração, T (d)	Atividade Incorporada Mínima (Bq)	$E_{min}(50)$ (mSv)	R_1	R_2	NRD (Bq)
180	2,79E+02	1,88E+00	1,30E+00	4,82E-01	3,15E-04
90	2,00E+02	1,35E+00	1,39E+00	3,46E-01	2,20E-04
60	1,56E+02	1,05E-00	1,46E+00	2,69E-01	1,88E-04
30	1,00E+02	6,73E-01	1,53E+00	1,73E-01	1,47E-04
14	6,32E+01	4,26E-01	1,50E+00	1,09E-01	1,08E-04

Observa-se nas Tabelas 1 e 2 que somente o critério de subestimativa (R_1) é atendido para períodos de monitoração de até cento e oitenta (180) dias para a técnica de bioanálise de urina (in vitro). Neste caso, a superestimativa (R_2) da avaliação da dose leva a uma condição conservadora para o trabalhador, sugerindo-se que a monitoração rotineira possa ser efetuada no período mencionado. Os critérios de análise referentes aos NRD's para o urânio tipo F e M também são atendidos, uma vez que os valores se encontram abaixo do limite de detecção do método.

O resultado da Tabela 3, para os compostos tipo S, indica que a monitoração pela técnica in vitro cumpre os requisitos de R_1 e R_2 , mas não atende os critérios dos NRD's. Este fato é decorrente do urânio Tipo S ser altamente insolúvel, e quando inalado permanece no pulmão, sendo excretado lentamente pela urina. Neste caso recomenda-se a análise em amostras de fezes e a monitoração rotineira in vivo no pulmão.

4. CONCLUSÃO

As informações obtidas neste trabalho são de interesse para a implementação de um programa de monitoração interna rotineiro em qualquer instalação nuclear que manuseiam urânio enriquecido a 19,75%.

Para os compostos de urânio tipo F e M, são recomendados períodos de monitoração rotineira de até 180 d. Para os compostos tipo S é recomendada a associação das medidas in vitro em amostras de fezes e in vivo no pulmão. Como medida complementar é necessário um maior controle no programa de monitoração de ar pela técnica de amostragem individual e do ambiente de trabalho.

Quando ocorrer incorporações significativas é necessário realizar cálculos mais detalhados baseados em parâmetros individuais específicos. Além disso, é importante efetuar medidas sequenciais para minimizar as incertezas associadas na estimativa da dose efetiva comprometida.

REFERENCES

1. Gaburo, J. C.; Todo, A. S.; Sordi G.M.A.A. “A Fluorimetria para o controle da contaminação interna dos trabalhadores expostos a urânio natural e enriquecido”. In: V ENAN – 5th Meeting on Nuclear Application, Rio de Janeiro, RJ (2000) (cd-rom).
2. International Commission On Radiological Protection. “Individual monitoring for internal exposure of workers”. Oxford, Pergamon, (1998) (ICRP-78).
3. International Commission On Radiological Protection. “Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection”, New York, Pergamon, (1994) (ICRP-66)
4. International Commission On Radiological Protection. “Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 2. Ingestion Dose Coefficients”, Oxford, Pergamon, (1994) (ICRP-67).
5. M. H. Taddei, N. C. Silva, E. A. N. Fernandes, M. Cipriani. “Determination of alpha-emitting isotopes of uranium and thorium in vegetables and excreta”. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 248, No 2 483-486 (2001).
6. International Commission On Radiological Protection. “General principles for the radiation protection of workers”. Oxford, Pergamon, (1997) (ICRP-75).
7. International Commission On Radiological Protection. “Assessment of occupational exposure due to intakes of radionuclides”. Vienna, (1999) (IAEA-RS-G-1.2).