

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
INSTITUTO DE FÍSICA

INSTITUTO DE FÍSICA

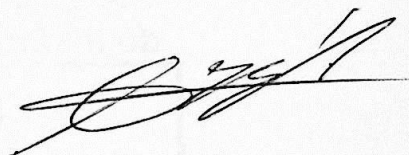
Serviço de Biblioteca e Informação

Tombo: 4003 Ex. 1

Determinação da Concentração de Urânio nos Alimentos mais Consumidos na Cidade de São Paulo

Adriana Barioni

Orientador: Prof. Dr. Airton Deppman



Dissertação de mestrado apresentada ao Instituto
de Física da USP para obtenção do título
de Mestre em Ciências

Banca examinadora:

Prof. Dr. Airton Deppman (Orientador) (IFUSP)

Prof^a. Dr^a. Ana Regina Blak (IFUSP)

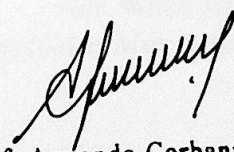
Prof. Dr. Adimir dos Santos (IPEN)

São Paulo, 2004

SBI-IFUSP



305M810T4003


Prof. Armando Corbani Ferraz
Presidente da Comissão de Pós Graduação

du 15/03/04

612.01448

BZ53d

M

Ex. 1

FICHA CATALOGRÁFICA

Preparada pelo Serviço de Biblioteca e Informação
do Instituto de Física da Universidade de São Paulo

Barioni, Adriana

Determinação da Concentração de Urânio nos
Alimentos mais Consumidos na Cidade de São Paulo.
São Paulo, 2004.

Dissertação (Mestrado) Universidade de São Paulo.
Instituto de Física - Depto. de Física Experimental

Orientador: Prof: Dr. Airton Deppman
Área de Concentração: Física Nuclear

Unitermos: 1. Urânio; 2. Radiação; 3. Dose;
4. Alimentos; 5. Proteção radiológica.

USP/IF/SBI-017/2004

CONTENTS

Faint, illegible text, likely bleed-through from the reverse side of the page.

*Aos meus pais
Dorival e Margarida*

Agradecimentos

Ao meu orientador, Prof. Dr. Airton Deppman pela proposta de desenvolver um estudo interessante e por me apresentar ao LAL, onde tive a oportunidade de conhecer pessoas maravilhosas.

À divisão do CRPq do Ipen, especialmente ao Renato Semmler, pela ajuda com a obtenção dos dados.

À Rita e à Eliana, pela ajuda competente e a paciência no preparo dos alvos.

À Maria Victoria, pelas inúmeras sugestões valiosas. Ao Wilson, Cesar e Ruy, pelas várias discussões construtivas sobre o trabalho.

Aos amigos do LAL, que tornaram os dias mais agradáveis: Washington, Suzana, Nora, Túlio, Gilson, Jorge, Eduardo, Dudu, Cacá, "seu" Luciano, Renato, Joel, Zwinglio, Ricardo, Maurício e Paulo.

Aos amigos Zeca, Léia e todos os funcionários da biblioteca do Instituto, pela eficiência e pela atenção em todas as ocasiões.

À Sandrinha, pela amizade valiosa conquistada nestes anos.

À Marlete, pela amizade e pelas sugestões que ajudaram a amadurecer muitas idéias neste trabalho.

À Terezinha, pelo carinho que tem por mim, pelas nossas caminhadas, pelos almoços e pela alegria que trouxe ao laboratório com seu jeito de ser.

À Ana Cecília, pela sua amizade sincera em todos os momentos. Pela sua alegria contagiante e seu carinho.

Ao Wanderley e ao Alfredo, pela paciência e pela disposição em ajudar. Pelos cafés e almoços deliciosos, pela amizade sincera de vocês.

Ao Eduardo, pelos incontáveis momentos felizes. Sempre terei um carinho especial por você.

Ao meu irmão Aurélio, que sempre acreditou e me incentivou desde o início.

Aos meus pais, pelo apoio incondicional e por despertarem em mim o gosto pelo estudo. Obrigada pelo seu amor, carinho e compreensão.

Conteúdo

| | |
|--|----|
| Resumo | iv |
| Abstract | v |
| 1 Introdução | 1 |
| 2 Objetivos | 6 |
| 3 Considerações teóricas | 7 |
| 3.1 A interação dos nêutrons com a matéria | 7 |
| 3.2 Radiação ionizante e seus efeitos na interação com a matéria | 10 |
| 3.3 Modelo de multicompartimentos | 12 |
| 4 Parte experimental | 18 |
| 4.1 Método utilizado | 18 |
| 4.1.1 Técnica de registro de traços | 18 |
| 4.1.2 Detectores de traços nucleares de estado sólido (Solid State Nuclear Track Detectors - SSNTD) | 19 |
| 4.2 Seleção dos alimentos mais consumidos pelos paulistanos | 21 |
| 4.3 O preparo das amostras de alimentos | 21 |
| 4.4 O preparo das soluções padrões | 23 |
| 4.5 A confecção dos alvos | 23 |
| 4.6 A irradiação e a revelação dos alvos | 24 |
| 5 Dados e resultados obtidos | 27 |
| 5.1 A concentração e a massa de urânio nos alimentos | 27 |
| 5.2 Determinação da concentração de urânio nos órgãos | 32 |
| 5.3 Cálculo de dose nos órgãos | 38 |
| 6 Conclusões | 44 |

A 47

A.1 O mecanismo de formação de traços e o processo de revelação 47

Resumo

Este trabalho tem como objetivo principal estudar o mecanismo de formação de traços e o processo de revelação em filmes de prata. O trabalho de investigação de base, realizado por dois pesquisadores japoneses, os Drs. T. Kubo e M. Kuroki, é aqui apresentado e discutido. Os resultados obtidos são comparados com os dados disponíveis na literatura. Verificamos que os resultados obtidos por estes autores são muito semelhantes aos do trabalho de base.

A discussão apresentada aqui é baseada nos resultados obtidos por estes autores e em observações feitas durante o desenvolvimento deste trabalho. Em particular, para o caso de filmes de prata, os resultados obtidos por estes autores são muito semelhantes aos do trabalho de base. Os resultados obtidos por estes autores são muito semelhantes aos do trabalho de base.

Resumo

Determinamos a concentração de urânio em um conjunto de alimentos selecionados que são comumente ingeridos pela população da cidade de São Paulo. O método de fragmentos de fissão, induzidos por nêutrons térmicos e observados em folhas de detector Makrofol E, foi utilizado para a determinação da massa de urânio ingerida diariamente na cidade. Verificamos que o feijão, por exemplo, é o alimento que apresenta a maior concentração do radionuclídeo.

A circulação e distribuição do urânio no organismo são aspectos importantes a serem observados. O metabolismo adotado para o elemento no organismo foi o proposto pela ICRP (*International Commission on Radiological Protection*), com adaptações para a utilização do modelo de multi-compartimentos (*Multiple-Compartment Model*). Podemos observar que para o sangue e para o fígado a concentração atinge o equilíbrio, enquanto que para os demais órgãos estudados, a incorporação ocorre mais lentamente.

A análise permite concluir que a dose efetiva encontra-se abaixo do limiar recomendado pela comissão internacional e que os riscos são extremamente baixos.

Abstract

We have determined the uranium contents in selected aliments that are commonly ingested by the São Paulo city residents using the fission track method, which consists of irradiating the samples with thermal neutrons and observing the fission tracks on the Makrofol E detector. The study has shown that bean, for example, is the aliment with the highest uranium concentration.

The distribution of uranium and its circulation inside the human body are important aspects that must be considered. The metabolism for the element in the organism is that proposed by the ICRP, with adaptations for the Multiple-Compartment Model usage as well. We observe that for the blood and liver the concentration reached the steady state equilibrium, while for the other observed organs the incorporation occurred slowly.

We conclude that the effective dose is below the threshold recommended by the international commission and that the risks are low.

Capítulo 1

Introdução

A radiação natural presente no meio ambiente faz com que os seres vivos em nosso planeta estejam expostos a ela, tanto externamente quanto internamente. A exposição externa é devida a raios cósmicos e a radionuclídeos naturais. A exposição interna ocorre através da inalação ou ingestão de elementos radioativos naturais. Sendo assim, do ponto de vista de proteção radiológica é interessante analisar os possíveis riscos à saúde do homem, devido à ingestão de tais elementos no consumo de alimentos. O Urânio é considerado, juntamente com o Gálio, o Césio e o Rádio, um dos elementos menos comuns na constituição do homem padrão [1, 2]. Porém ele está presente no meio ambiente como fonte de radiação natural contribuindo para doses externas. Alguns estudos comprovam a presença de urânio na crosta terrestre a uma profundidade de 2900km , a uma razão média de $0,76\mu\text{gU/g}$ de solo. Além disso, o elemento está presente também na água, em uma concentração que varia de $0,2\mu\text{g/l}$ a $600\mu\text{g/l}$ [3]. Neste contexto, a sua absorção em plantas [4] e em animais é possível e, considerando que a cadeia alimentar tem o homem como um dos consumidores finais, o elemento pode ser por este incorporado, passando também a contribuir como possível fonte de doses internas. De fato, estudos realizados no Reino Unido, na Índia e nos E.U.A. [2,3,5-7], verificaram a presença de urânio, tanto em alimentos e na água como em tecidos, órgãos e esqueleto humanos.

Hamilton [2] determinou que a ingestão diária de urânio pela população da Inglaterra, devido ao consumo de alimentos, é em média de $0,99\mu\text{g}$; Welford e Baird [3] encon-

traram para as populações de Nova York, Chicago e São Francisco os valores de 1,3; 1,4 e 1,3 $\mu\text{g}/\text{dia}$ respectivamente, e em um estudo feito na Índia por Dang [5], o valor médio encontrado foi de 0,77 $\mu\text{g}/\text{dia}$. Esses valores estão estreitamente relacionados com os hábitos alimentares das regiões envolvidas. Além disso, a forma de cultivo dos alimentos e a alimentação dos animais que serão consumidos pelo homem, também podem contribuir para a presença de urânio nesses produtos. Como exemplo, no Brasil os fertilizantes e as rações utilizadas são constituídos à base de fosfato, que tem o urânio como elemento traço. A defluorinação utilizada para produzir, através da rocha calcária e do ácido fosfórico, o suplemento alimentar DCP (fosfato di-cálcico) é um processo que mantém a maior parte do urânio e 70% dos seus filhos [8].

Amaral [9] realizou um estudo para quantificar a quantidade de urânio ingerida diariamente na região urano-fosfática de Pernambuco, devido ao consumo de alimentos produzidos naquela localidade e verificou que esse valor era de 0,82 μg .

Todos esses estudos foram desenvolvidos utilizando técnicas como, a análise por ativação ou o método fluorimétrico. Neste trabalho foi utilizada a técnica do método de fissão, que consiste na irradiação com nêutrons das amostras de alimentos depositadas em folhas de Makrofol E, que são detetores de traços nucleares de estado sólido (SSNTD).

Além de ser um elemento tóxico, o urânio é um emissor de partículas alfa e por isso é interessante verificar como ocorre a sua incorporação pelo organismo através do seu metabolismo [10], e a dose que pode depositar nos órgãos, desde sua absorção até sua eliminação.

A maior parte dos estudos realizados para avaliar a absorção de urânio em órgãos e sua eliminação foram feitos em animais [11-15], e em termos gerais, são feitas extensões desses resultados para os humanos.

Hamilton [2] analisou órgãos de pessoas mortas em acidentes e de outras hospitalizadas que já estavam em fase terminal. Essas pessoas nunca haviam sido expostas ocupacionalmente ao radionuclídeo. Ele verificou que as concentrações variavam desde 0,05 $\mu\text{g}/\text{kg}$

nos músculos até $12,1\mu g/kg$ no esqueleto¹. Welford e Baird [3] encontraram que a distribuição no esqueleto é razoavelmente uniforme e verificaram que, em média, são encontrados $200\mu g/kg$ de cinzas. Esses autores também analisaram alguns tecidos de pulmões e encontraram um valor médio de $1\mu g/kg$ de tecido, com um intervalo de $0,7\mu g/kg$ a $3\mu g/kg$. Além disso foi medida a quantidade de urânio na urina de alguns indivíduos para os quais o valor médio foi de $0,09\mu g/l$ de urina, em um intervalo de $0,04\mu g/l$ a $0,18\mu g/l$. Um outro estudo realizado por Fisenne [7, 16] mostrou valores médios de concentração de urânio em tecidos moles e nos ossos, sendo eles $0,20 \pm 0,31\mu g/kg$ para o fígado, $0,43 \pm 0,26\mu g/kg$ para os rins, $0,33 \pm 0,19\mu g/kg$ para vértebras e $0,50 \pm 0,39\mu g/kg$ para os pulmões. Esses valores encontrados foram considerados como provenientes da ingestão crônica de alimentos e água, e ainda da inalação no ar. O estudo feito por Dang et al. [5] estimou, através da análise da urina de 27 voluntários, que 1,6% do urânio ingerido através dos alimentos e da água é absorvido no trato gastrointestinal.

Outros estudos também foram realizados com indivíduos hospitalizados em fase terminal e outros voluntários, através da aplicação de injeções ou da ingestão de urânio em quantidades sem risco toxicológico ou radioativo [17-19]. Esses indivíduos estiveram sujeitos a um *intake* agudo, ou seja, ingeriram ou tiveram injetados em uma única dose, uma quantidade de urânio que seria consumida cumulativamente através, por exemplo, da ingestão normal (crônica). No estudo feito por Eve [19], um voluntário ingeriu $1g$ de nitrato de uranila hexahidratado em $200cm^3$ de água. Uma grande parte do urânio ingerido foi perdido através de vômito e diarreia, e deixou o funcionamento renal comprometido devido a um pico de absorção do urânio onde $8mg/l$ foram excretados em duas etapas, com volume em cada uma delas, de $30ml$ de urina. Em 7 dias foram excretados $2,4mg$ de urânio através da urina. Apesar do indivíduo ter eliminado a maior parte do urânio logo após a ingestão, estimou-se que aproximadamente 1% do urânio ingerido foi absorvido no organismo. Karpas [18] administrou uma pequena dose aguda a 5 indivíduos que ingeriram, em alguns minutos, $100\mu g$ de urânio (empobrecido) misturado em um suco

¹o esqueleto aqui considerado é composto pelo crânio, costelas, fêmur, esterno, vértebras e cartilagem

de frutas, sem sofrer nenhum efeito colateral. O melhor valor ajustado mostrou um fator de absorção gastrointestinal de 0,3% para 4 indivíduos e aproximadamente 2,5% para o quinto. O fator de absorção gastrointestinal [14] é um dado interessante, na medida em que uma parte do urânio que é absorvido pelo trato passa para a corrente sanguínea [20]. A Comissão Internacional de Proteção Radiológica, cuja sigla em inglês é ICRP [21], adota que esse fator é de 2%. O mesmo valor é adotado para a absorção de urânio no sangue, devido à ingestão. A importância desses fatores se deve ao fato de que, uma vez na corrente sanguínea, o urânio circula entre os órgãos, onde possui uma meia vida biológica maior e portanto, esses órgãos ficam sujeitos a doses radioativas devido à emissão espontânea de partículas alfa ionizantes.

O processo de ionização dos átomos pode provocar alterações nas moléculas constituídas pelos mesmos. Se a molécula afetada está em uma célula viva, a célula pode ser danificada de duas formas: diretamente ou indiretamente. O dano direto ocorre se a molécula afetada tem um papel importante no funcionamento da célula. O dano indireto ocorre por modificações químicas nas moléculas próximas àquelas afetadas. Um exemplo de efeito indireto é a produção de radicais livres [22]. Se um número suficiente de células no órgão ou tecido são mortas pela radiação ou ficam impedidas de se reproduzir e funcionar normalmente, o órgão terá sua função comprometida. Esse efeito é chamado *determinístico*. Se uma célula somática for afetada e modificada, mas continuar a se reproduzir, podem surgir células clonadas que podem originar um câncer. Se a célula modificada pertencer ao sistema reprodutor e for responsável pela transmissão da informação genética, as informações hereditárias podem ser alteradas, causando danos aos descendentes do indivíduo exposto. Esses efeitos somáticos ou hereditários são chamados *estocásticos* [22].

A dose pode ser estimada através da quantidade do radionuclídeo e sua distribuição nos órgãos, o que pode ocorrer através de medidas e experimentos *in vivo*, ou através de modelos metabólicos que levam em consideração sua ingestão, distribuição e excreção.

Neste trabalho, utilizou-se o modelo de multicompartmentos [23, 24] para avaliar

a distribuição do urânio proveniente da ingestão de alimentos em diversos órgãos, o que possibilitou a estimativa da dose nos mesmos, devido à presença desse elemento radioativo. Para tanto, foram utilizados os valores de fatores de fluxo dados pela ICRP no seu modelo biocinético [21, 25] para o urânio, a partir dos quais foi determinada a concentração do radionuclídeo nos órgãos de interesse.

Objetivos

Capítulo 2

Objetivos

Em meados da década de 60, verificou-se a presença de urânio em valores de concentração consideráveis no solo e na água. Desde então, surgiu o interesse em verificar a sua presença em alimentos e também no homem, com a finalidade de verificar possíveis riscos para a saúde da população, já que o urânio é um elemento radioativo que emite partículas α altamente ionizantes. Neste contexto, o presente trabalho tem como objetivo principal determinar, utilizando a técnica de traços de fragmentos de fissão, quais os valores de concentração e massa de urânio nos alimentos mais consumidos na cidade de São Paulo, obtendo assim, a quantidade média desse radionuclídeo que é ingerida anualmente. Esse dado possibilita utilizar os modelos da comissão internacional e de multicompartimentos, adaptados, para verificar a distribuição do elemento no organismo. Assim, é possível estimar a dose absorvida por diversos órgãos devido à ingestão crônica do urânio, no consumo de tais alimentos, verificando se existe algum risco à saúde da população associado aos mesmos.

Capítulo 3

Considerações teóricas

A técnica de medida da quantidade de urânio em uma amostra é feita observando-se o número de traços de fragmentos de fissão induzidos pela reação de nêutrons térmicos com o urânio. Por isso, vamos mostrar os conceitos mais importantes nessa interação.

3.1 A interação dos nêutrons com a matéria

O nêutron foi observado pela primeira vez em 1930, por Bothe e Becker [26] quando bombardearam um alvo de berílio com partículas α . Porém, nesta ocasião, foi confundido com a radiação gama de alta energia, por ser muito penetrante e não ionizante. Ele foi realmente identificado por Chadwick em 1932, como uma partícula eletricamente neutra e com massa aproximadamente igual à do próton. Devido ao fato de não possuir carga elétrica este nucleon não sofre interação coulombiana como as demais partículas carregadas, e portanto as reações que o envolvem ocorrem diretamente com os núcleos atômicos, onde penetra mesmo que possua energia muito baixa, da ordem de elétron-volts.

Em geral, interações que ocorrem com núcleos são caracterizadas por uma grandeza conhecida como seção de choque que leva em consideração tanto características do núcleo alvo como das partículas que interagem com ele. A unidade de medida da seção de choque é o *barn* ($1\text{barn} = 10^{-24}\text{cm}^2$), o que significa que ela é definida pela área efetiva apresentada pelo núcleo alvo à partícula, e que fornece, na realidade, uma medida da

probabilidade de ocorrer a reação desejada. A figura 3.1 mostra a seção de choque de fissão do ^{235}U induzida por nêutrons de várias energias.

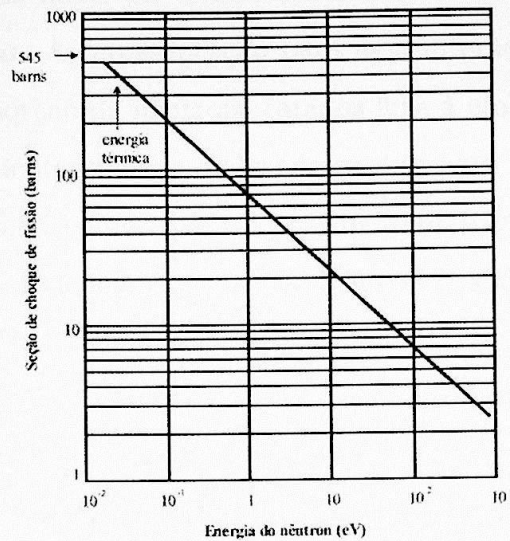


Figura 3.1: Seção de choque de fissão do ^{235}U .

É possível observar que a seção de choque de fissão do ^{235}U é maior para nêutrons de energia mais baixa, na região dos nêutrons térmicos (veja tabela 3.1) diminuindo para nêutrons de energias mais altas.

| Denominação | Energia(eV) |
|-------------|---------------|
| Térmicos | 0.025 |
| Epitérmicos | 1 |
| Lentos | 10^3 |
| Rápidos | $10^5 - 10^7$ |

Tabela 3.1: Denominação dos nêutrons em várias energias.

No caso do ^{238}U a seção de choque é maior para nêutrons mais energéticos, sendo que não ocorre fissão com nêutrons térmicos.

Especificamente para o nêutron podem ocorrer interações de absorção ou espalhamento.

A absorção é mais frequente para nêutrons que tiveram sua energia reduzida, através de espalhamentos inelásticos e elásticos, ficando na faixa de energia de nêutrons térmicos. Conhecida como captura de nêutrons térmicos, resulta na emissão de raios gama pelo núcleo excitado no processo. A representação para essa interação pode ser feita através da simbologia (n,γ) . A absorção de nêutrons rápidos leva à emissão de um próton (n,p) , ou de qualquer outra partícula nuclear, pelo núcleo alvo que fica no estado excitado e instável de outro elemento, decaindo para o estado fundamental por emissão de raios gama. O processo que leva o núcleo a um estado instável é conhecido como ativação.

As reações de espalhamento podem ser elásticas ou inelásticas. Os espalhamentos elásticos fazem com que o nêutron sofra uma termalização, diminuindo assim a sua energia cinética através das colisões com os núcleos alvo, que permanecem no estado fundamental. O espalhamento inelástico propicia a excitação do núcleo que geralmente, decai rapidamente para o estado fundamental através da emissão de raios gama com energia bem definida. Enfim, as interações entre nêutrons e núcleos podem resultar na emissão de partículas alfa (n,α) , de prótons (n,p) , deutério (n,d) , trítio (n,t) , emissão de radiação gama (n,γ) , e podem ainda ocorrer reações que resultam na fissão do núcleo (n,f) .

A fissão nuclear foi descoberta em 1939 pelos químicos alemães Otto Hahn e F. Strassmann, que a observaram para o núcleo de ${}_{92}^{235}\text{U}$. Os núcleos provenientes dessa reação são denominados fragmentos de fissão e são geralmente, ricos em nêutrons, o que os torna emissores de partículas β^- . Os fragmentos de fissão são altamente ionizantes, por ficarem com cargas positivas em excesso no processo. Em geral, as massas dos fragmentos provenientes da fissão obedecem uma distribuição, como está ilustrado na figura 3.2.

Neste caso, observa-se uma distribuição simétrica, pois para cada núcleo pesado proveniente da fissão, tem-se outro mais leve, com a mesma probabilidade de ocorrência; além disso, observa-se que a probabilidade de ocorrerem fragmentos simétricos é mínima.

Além dos fragmentos (tabela 3.2), na fissão ocorre emissão de nêutrons rápidos, radiação gama, e posteriormente, a partir dos fragmentos, a emissão de partículas β^- , radiação gama e anti-neutrinos.

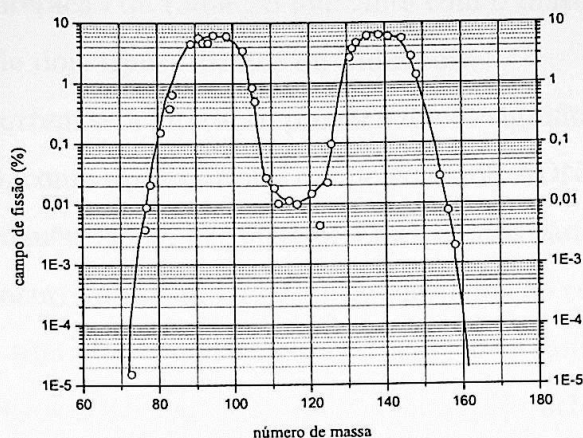


Figura 3.2: Distribuição de massa dos fragmentos de fissão térmica para o ^{235}U .

| Componentes | Energia(MeV) |
|---|--------------|
| energia cinética dos fragmentos de fissão | 167 |
| energia cinética dos nêutrons rápidos | 5 |
| energia dos raios gama | 6 |
| energia das partículas β^- dos fragmentos de fissão | 8 |
| energia dos anti-neutrinos dos fragmentos de fissão | 12 |
| energia dos raios gama dos fragmentos de fissão | 6 |

Tabela 3.2: Possíveis produtos da fissão e suas respectivas energias.

3.2 Radiação ionizante e seus efeitos na interação com a matéria

As interações da radiação ionizante com a matéria [1, 27] podem ocorrer de três formas:

- com os elétrons individuais dos átomos ou moléculas;
- com o núcleo;
- com o átomo como um todo.

Essa última ocorre para partículas com velocidades muito baixas [1].

No que se refere à interação da radiação ionizante com o material biológico, os efeitos resultantes podem ser de dois tipos: diretos ou indiretos.

Os efeitos diretos ocorrem se a interação provoca danos significativos em moléculas importantes do organismo, como por exemplo, na molécula de ADN, danificando o material genético, trazendo consequências ao organismo. Esses efeitos são raros.

Os efeitos indiretos ocorrem quando a interação da radiação com a molécula gera uma cadeia de eventos, que somados, podem causar danos ao organismo. Geralmente esses eventos consistem na ionização da água que constitui grande parte da célula. Como resultado da ionização novos produtos, muitas vezes quimicamente bastante reativos, podem ser gerados dentro da célula. Um exemplo é a dissociação da água, produzindo os radicais O e OH. Podem ocorrer reações químicas entre os radicais gerados, ou entre os radicais e as moléculas de células não afetadas diretamente pela radiação. Essas reações levam ao aparecimento de efeitos biológicos, devido a danos na célula.

Neste contexto do estudo da interação das partículas carregadas com a célula, o termo LET (*Linear Energy Transfer*) é importante, pois define o quanto de energia dE_L é depositada localmente, no meio material, pela partícula carregada, ao atravessar uma distância dl . O LET é definido como:

$$L = \frac{dE_L}{dl} \quad (3.1)$$

Sendo assim, as partículas que produzem muitas ionizações têm valores altos de LET, o qual também está relacionado com a energia das partículas. A produção de ionizações, pelas diferentes radiações ionizantes, com seus respectivos valores de LET, são levados em consideração quando são associados aos danos biológicos que podem causar.

As partículas alfas, como aquelas naturalmente emitidas no decaimento de núcleos pesados como urânio, tório, polônio e rádio, possuem um alcance pequeno e portanto, ionizam densamente o meio material percorrido. Por isso, essa partícula deposita uma grande quantidade de energia por unidade de comprimento.

A probabilidade de ocorrerem efeitos estocásticos depende do tipo, ou da qualidade, da radiação. Assim, o fator de qualidade (F_q) é dado em função do LET e a dose absorvida em um ponto, ponderada por esse fator é definida como Equivalente de Dose [22]. Porém, para efeitos de proteção radiológica a dose absorvida média no órgão ou tecido, ponderada pela qualidade da radiação é importante. Assim, o fator de peso da radiação (w_R) é utilizado no cálculo da Dose Equivalente (H_T) [22]. Esse fator de peso da radiação (w_R) (veja tabela 3.3) depende do tipo e da energia da radiação. A dose equivalente é dada por:

| Tipo de Radiação | w_R |
|---|-------|
| fótons de todas as energias | 1 |
| elétrons e muons de todas as energias | 1 |
| nêutrons < 10 keV | 5 |
| 10 keV a 100 keV | 10 |
| > 100 keV a 2 MeV | 20 |
| > 2 MeV a 20 MeV | 10 |
| > 20 MeV | 5 |
| prótons, que não sejam de recuo, com energia > 2 MeV | 5 |
| partículas alfa, núcleos pesados e fragmentos de fissão | 20 |

Tabela 3.3: Fatores de peso de radiação para determinação de dose equivalente.

$$H_T = \sum_R w_R \cdot D_{abs} \quad (3.2)$$

3.3 Modelo de compartimentos

A incorporação do urânio ao organismo humano pode ocorrer pela ingestão de alimentos e água potável, e pela inalação no ar. O urânio incorporado passa para a circulação sanguínea sendo absorvido pelos tecidos moles, como rins e fígado, e preferencialmente pelos ossos. Os dados existentes para os seres humanos são extensões de estudos feitos para animais (ratos, cães ou macacos bugios), ou então realizados com indivíduos em fase terminal. Existem ainda alguns estudos com indivíduos expostos, ocupacionalmente ou não, ao radionuclídeo.

Considera-se que a maior parte (dois terços aproximadamente) do urânio que entra intravenalmente no organismo humano é eliminado através da urina nas primeiras 24 horas. Em estudos feitos com humanos [21, 25] que tiveram urânio, na forma de nitrato de urânio, injetado intravenalmente observou-se que 25% havia permanecido no sangue dos indivíduos após 5 minutos, 5% após 5 horas, 1% após 20 horas e menos de 0,5% após 100 horas. Apesar disso uma pequena fração permanece no organismo durante muitos anos.

O modelo biocinético para o urânio adotado pela ICRP (publicações 67 e 69) está representado na figura 3.3 e, no que diz respeito à cinética do esqueleto, segue um comportamento qualitativo semelhante ao do cálcio. Além disso, o transporte de urânio adotado pela ICRP obedece uma cinética de primeira ordem.

No modelo biocinético do ICRP [21] os parâmetros de fluxo (d^{-1}) são grandezas que medem a fração de radionuclídeo que é transferida de um compartimento para outro por unidade de tempo [25]. O parâmetro de fluxo total de um compartimento é dado pela soma dos parâmetros de fluxo daquele compartimento para todos os demais. Esses valores derivam da meia-vida biológica, onde está sendo considerada a eliminação, tendo cessado a alimentação proveniente de outros compartimentos e das frações depositadas. Esse valor é menor do que a chamada meia-vida aparente, que ocorre na presença de realimentação [25].

O comportamento do urânio na circulação pode ser representado, neste modelo, tratando o plasma (parte líquida do sangue coagulante) como uma mistura uniforme, da qual o urânio é removido à uma taxa de $35d^{-1}$ e inferindo um compartimento de tecido mole ($ST0$), com troca relativamente rápida com o plasma. Esse compartimento recebe cerca de 30% do urânio proveniente do plasma, ao qual retorna com um tempo médio de 2 horas [21].

Assume-se que 1% do urânio que deixa a circulação deposita-se nas células vermelhas do sangue, voltando ao plasma em dois dias [21].

A excreção, através principalmente da urina, ocorre de duas formas: a) indo do plasma

diretamente à bexiga urinária, correspondendo a 63% do urânio que deixa de circular; b) deixando a bexiga urinária após uma residência temporária nos tubos renais (com tempo médio de 7 dias), correspondendo a 12% do urânio que deixa a circulação. Considera-se que 0,5% do urânio que sai da circulação entra no intestino grosso e é excretado através das fezes.

Assume-se um modelo de dois compartimentos para o fígado, sendo que o primeiro recebe 1,5% do urânio proveniente da circulação, e que é removido em um tempo médio de 7 dias; 93% do urânio que deixa o primeiro compartimento retorna ao plasma e 7% vai para o segundo compartimento, retornando ao plasma em um tempo médio de 10 anos [21]. O primeiro compartimento do fígado, denominado *Fígado 1*, descreve os dados de estudos feitos em humanos e animais que sofreram um *intake* agudo. O segundo compartimento *Fígado 2*, reproduz os dados obtidos através da análise em pessoas mortas, nunca expostas ocupacionalmente ao radionuclídeo [25].

Outros compartimentos de tecidos moles de deposição de urânio são considerados. Um deles (*ST1*) recebe 6,65% do urânio que deixa a circulação, cuja remoção ocorre em um tempo médio de 20 dias. O outro (*ST2*) recebe 0,3% do urânio e o tempo médio para a remoção é de 100 anos.

Com relação ao esqueleto, assume-se que 15% do urânio que deixa a circulação se deposita na superfície dos ossos, e é removido deste em um tempo médio de 5 dias. A metade do urânio que deixa a superfície do osso retorna ao plasma e a outra metade vai para um compartimento ósseo de troca, deixando-o em um tempo médio de 30 dias. Desta última fração 75% volta à superfície do osso e 25% é absorvido em um compartimento ósseo que não aceita trocas. A remoção do urânio deste compartimento para o plasma depende da taxa de *turnover* do osso, que depende do tempo, sendo diferente para ossos trabeculares (esponjosos) e corticais (compactos) [21]. A ICRP 67 (1993) considera que o sangue tem um coeficiente de absorção de $2 \times 10^{-2}d^{-1}$.

O modelo de multicompartmentos [23, 24] (*General Multiple - Compartment Model*) consiste de um sistema de vários compartimentos (órgãos) interconectados, que foram

alimentados externamente a uma taxa constante, com contaminante. Cada um desses compartimentos possui, em um dado instante, uma quantidade do elemento e a sua circulação se dá através de taxas de fluxos, que levam em consideração as características físicas das conexões. Sendo assim, a variação da concentração de contaminante em cada compartimento pode ser expressa pela seguinte equação:

$$\frac{d(V_i X_i(t))}{dt} = \gamma P_i + \sum_{j=1; j \neq i}^k r_{ji} X_j - X_i \left(\sum_{j=1; j \neq i}^k r_{ij} \right) - \xi_i X_i, \quad (3.3)$$

onde V_i é o volume do compartimento, X_i é a concentração de contaminante, γP a taxa de alimentação e r_{ji}, r_{ij}, ξ_i são as taxas de fluxo, sendo que a última refere-se à eliminação ou excreção do contaminante para o meio externo. Uma simplificação no modelo pode ser adotada, a fim de aproximá-lo daquele utilizado pela ICRP, considerando um compartimento central (sangue), através do qual o contaminante entra no organismo e se distribui. Outra simplificação consiste em desconsiderar as conexões entre os órgãos, mantendo apenas aquelas com o compartimento central e mantendo a excreção através de todos os compartimentos (figura 3.4).

Com isso a equação 3.3 pode ser reescrita como:

$$\frac{d(V_i X_i(t))}{dt} = \delta_{i1} \gamma P_1 + r_{1i} X_1 - X_i r_{i1} - \xi_i X_i \quad (3.4)$$

onde δ_{i1} assume o valor 1 para a entrada do contaminante através do sangue e zero, caso contrário.

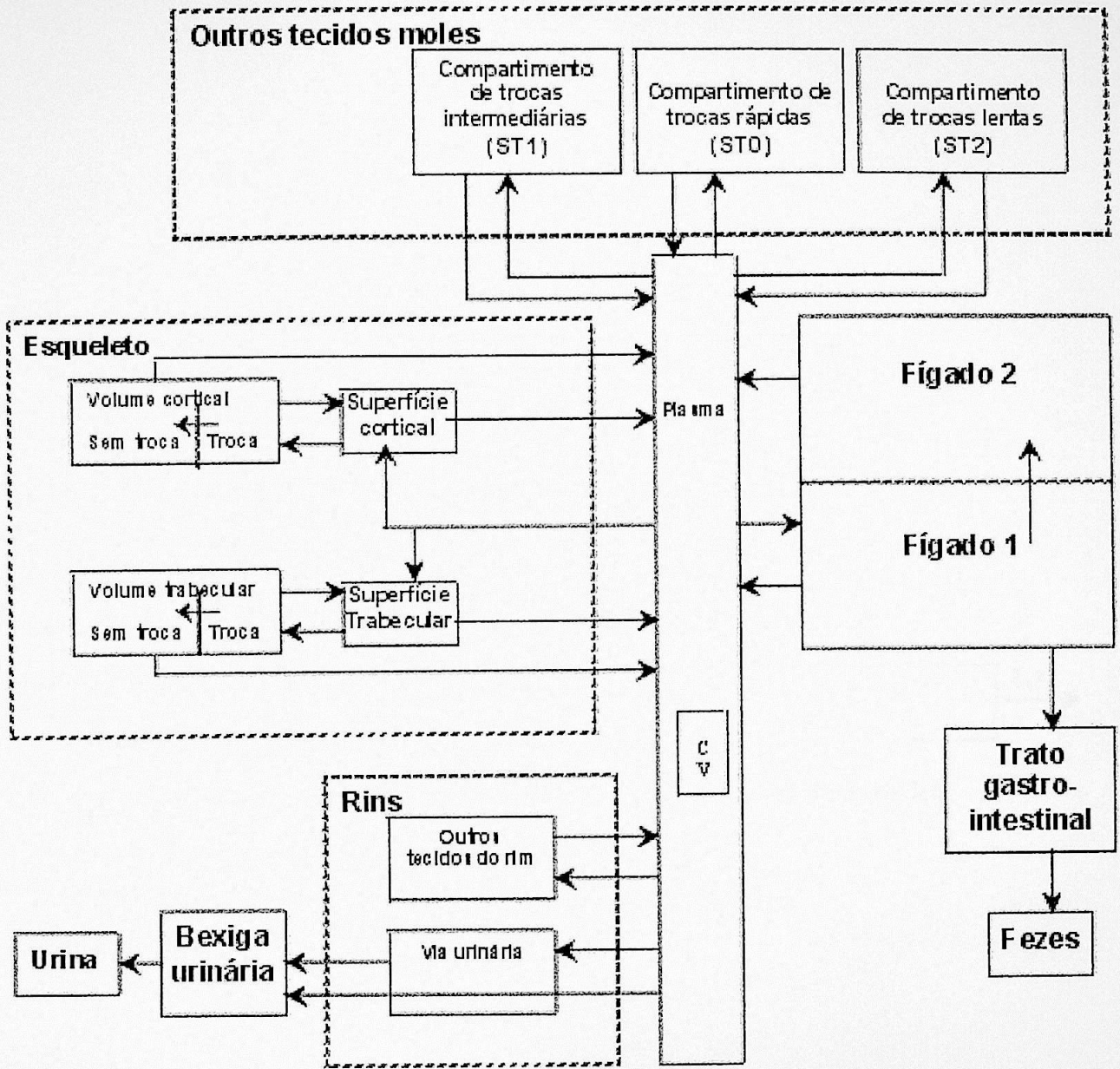


Figura 3.3: Modelo biocinético para o urânio.

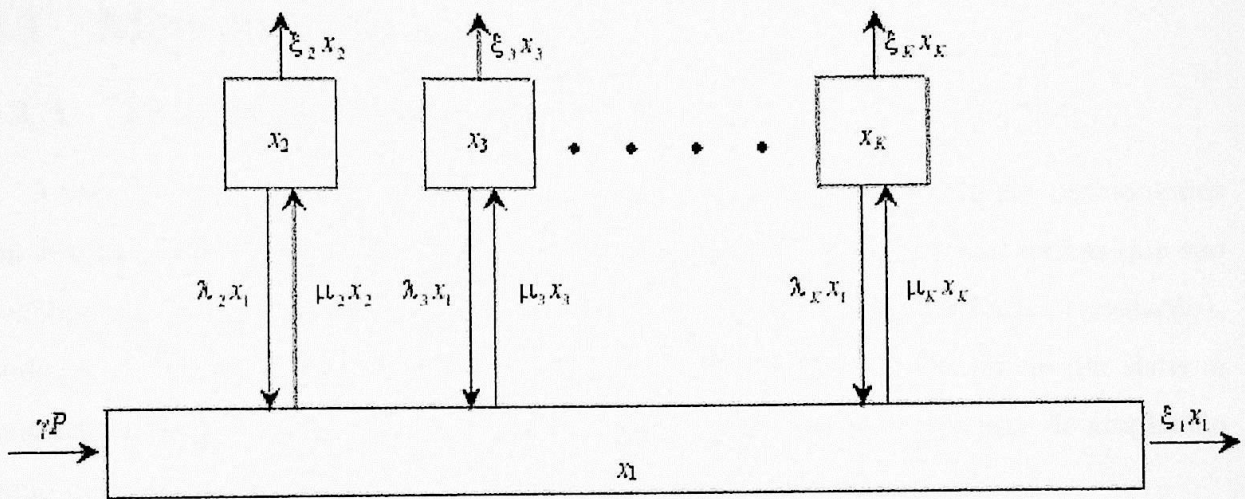


Figura 3.4: O modelo do *General Multiple - Compartment Model*.

Capítulo 4

Parte experimental

4.1 Método utilizado

4.1.1 Técnica de registro de traços

A técnica baseia-se no fato de que partículas carregadas provocam danos permanentes em determinados materiais [28]. Esses danos assemelham-se a pequenas trilhas que são denominadas traços e que, após passarem por um processo de ampliação (revelação), podem ser contados com o auxílio de um microscópio óptico ou através de um sistema automático de contagem. O mecanismo de formação de traços e o processo de ampliação estão descritos no apêndice A.1.

Essa técnica é bastante eficaz e permite determinar as pequenas quantidades de urânio esperadas nas amostras de alimentos.

Os fragmentos de fissão do urânio, provenientes da irradiação dos alvos com nêutrons térmicos, produzem traços no policarbonato utilizado como detector. O número de traços deixados é proporcional à quantidade de urânio presente na amostra. Assim:

$$T = KN_f \quad (4.1)$$

onde T é o número de traços contados, N_f é o número de fissões e K é uma constante de proporcionalidade que determina a eficiência de detecção, revelação e contagem.

O número de fissões N_f pode ser expresso em termos da seção de choque de fissão

efetiva do urânio natural ($\cong 4$ barns) [29]:

$$N_f = \frac{\sigma_f N_0 \phi t V C}{M_U} \quad (4.2)$$

onde

σ_f é a seção de choque de fissão efetiva do urânio natural;

N_0 é o número de Avogadro;

ϕ é o fluxo de nêutrons térmicos;

t é o tempo de irradiação;

V é o volume da gota;

C é a concentração de urânio na amostra;

M_U é a massa atômica do urânio natural.

Portanto:

$$T = K \frac{\sigma_f N_0 \phi t V C}{M_U} \quad (4.3)$$

A determinação da constante K em uma amostra é feita através da comparação com um padrão, que é produzido e irradiado nas mesmas condições da amostra. A concentração na amostra é dada pela seguinte relação:

$$C_A = \frac{T_A C_p}{T_p} \quad (4.4)$$

onde C_A e C_p são as concentrações na amostra e no padrão, respectivamente, e T_A e T_p os números de traços.

4.1.2 Detectores de traços nucleares de estado sólido (Solid State Nuclear Track Detectors - SSNTD)

O detector Makrofol E (Bayer A.G) é um policarbonato, com espessura variando de $200\mu m$ a $500\mu m$. A sua composição química é $C_{16}H_{14}O_3$ e possui uma face lisa e brilhante que é sensível para o registro de traços provenientes dos fragmentos de fissão (figura 4.1), com uma eficiência de detecção de 100%. As vantagens da utilização desse detector são a facilidade de manuseio e contagem dos traços, o baixo custo e ainda o fato de não possuir traços fossilizados como ocorre nos detectores minerais [30].

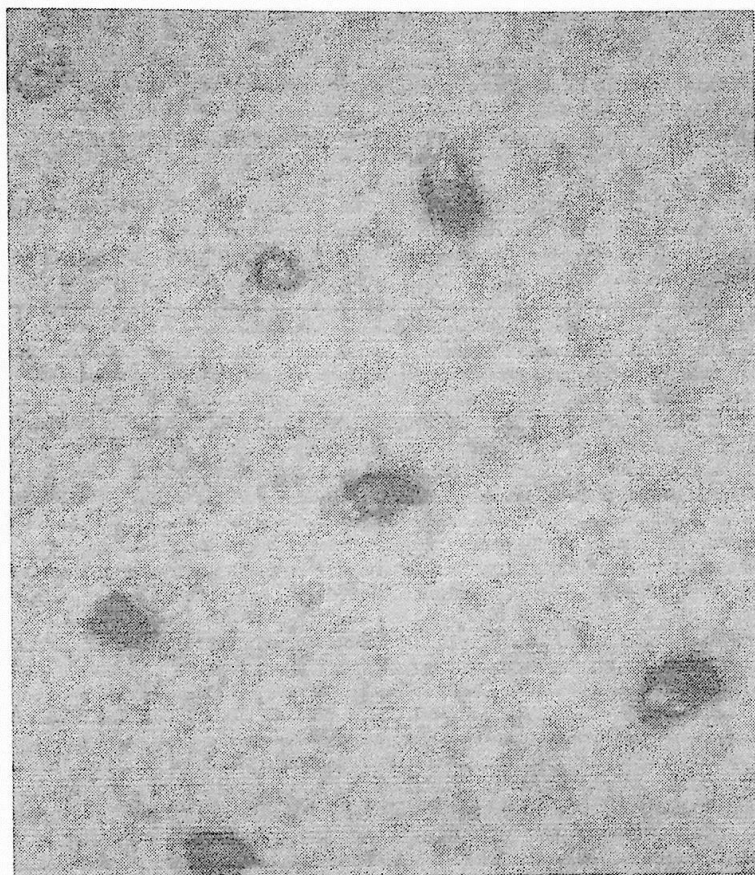


Figura 4.1: Os traços vistos através do microscópio óptico.

4.2 Seleção dos alimentos mais consumidos pelos paulistanos

A seleção dos alimentos foi feita através da observação, em mercados e feiras-livres daqueles mais consumidos pela população em geral. Outras fontes utilizadas foram a Pesquisa de Orçamentos Familiares (IBGE) [31] e a pirâmide de alimentos (CEASA). Entre os grupos de alimentos foram escolhidos: arroz (*Oryza sativa*), feijão (*Phaseolus vulgaris*), café (*Coffea arabica*), laranja (*Citrus aurantium*), alface (*Lactuca sativa*), tomate (*Lycopersicum esculentum*), carne bovina, sal, frango¹, açúcar, leite em pó e pão. Todos os alimentos foram selecionados, pesados e passaram pelo processo de preparo para o consumo. Isto é, o alface e o tomate foram lavados e esterilizados, o arroz, o feijão e o frango foram cozidos com a adição de sal e de temperos comuns, o café foi preparado sem a adição de açúcar e a carne passou pelo processo de fritura.

Os valores da massa ingerida anualmente por pessoa (tabela 4.1), para os alimentos escolhidos, foram obtidos através da Pesquisa de Orçamentos Familiares do IBGE do ano de 1996.

4.3 O preparo das amostras de alimentos

Todos os alimentos, exceto o sal e o café, foram incinerados para a queima de todo o material biológico e posterior obtenção de cinzas. O sal foi diluído diretamente em ácido nítrico. O café teve 1 ml diluído em 9 ml de ácido nítrico para a obtenção do volume desejado de 10 ml. Os processos de incineração dos alimentos e de diluição das cinzas em HNO_3 viabilizam a irradiação dos alvos e a técnica utilizada, já que todo o material biológico é eliminado, e todos os elementos voláteis são evaporados no processo de re-suspensão. Em um estudo feito por Hamilton [2] verificou-se que a perda de urânio no processo de incineração de tecidos contaminados com urânio é desprezível (3% ou menos)

¹a coxa foi a parte do frango utilizada para a preparação do alvo e portanto o valor de massa consumido correspondente foi utilizado para o cálculo de concentração e de massa de urânio.

| Alimento | Massa(kg/ano) |
|----------|---------------|
| arroz | 24,602 |
| feijão | 6,746 |
| alface | 0,825 |
| laranja | 12,000 |
| banana | 1,328 |
| frango | 1,132 |
| açúcar | 14,236 |
| tomate | 5,283 |
| pão | 20,510 |
| carne | 12,734 |
| leite | 0,686 |
| sal | 2,153 |
| café | 2,101 |

Tabela 4.1: Alimentos mais consumidos na cidade de São Paulo.

e portanto, podemos considerar o mesmo no caso da incineração dos alimentos. A queima do material biológico foi realizada utilizando-se um forno do tipo mufla, com aumento progressivo de temperatura, podendo chegar a 1200°C . Para alimentos com grande quantidade de água o aumento da temperatura se deu em passos de 100°C , enquanto que para os demais em passos de 200°C . As cinzas foram obtidas com o forno funcionando a 900°C , e foram diluídas em ácido nítrico a 2%. A solução resultante foi então evaporada com o auxílio de uma chapa metálica e o resíduo re-suspenso em ácido nítrico a 2%, obtendo-se um volume final de 10 ml para cada alimento. A utilização do ácido nítrico tem como objetivos a formação de nitrato de uranila - sendo que outros elementos voláteis presentes nas cinzas do alimento são evaporados juntamente com a água - e evitar a formação de radiocolóides de urânio que poderiam se impregnar nas paredes dos recipientes, causando a perda de material e afetando a medida [32].

4.4 O preparo das soluções padrões

Inicialmente foi preparada uma solução de nitrato de uranila a partir do sal de nitrato de urânio hexahidratado ($UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$) cujo peso molecular, descontando-se as impurezas, é de $502,1 \text{ g/mol}$. O preparo foi feito pelo método gravimétrico que utiliza os valores das massas dos elementos utilizados na confecção da solução. Foi obtida inicialmente uma solução com uma concentração de urânio de 1 g/l , a partir da qual foram feitas as soluções com concentrações menores, por diluições sucessivas, até a ordem de grandeza desejada para a realização do experimento, que é de ppb (partes por bilhão). Assim, as soluções utilizadas na confecção dos alvos padrões tinham concentrações de $1,00 \pm 0,07$; $3,0 \pm 0,2$ e $5,0 \pm 0,4 \text{ } \mu\text{g/l}$.

4.5 A confecção dos alvos

Foi utilizado o método a seco, que consiste na secagem de alíquotas das amostras líquidas sobre a folha do detector. Um volume de $5 \mu\text{l}$ das soluções dos alimentos e dos padrões foi gotejado com o auxílio da micropipeta na face sensível dos detectores Makrofol E, cortados com dimensões de $1,5 \text{ cm} \times 1,5 \text{ cm}$, formando os então chamados alvos. Para cada alimento foram feitos quatro alvos e para cada padrão dois alvos. Todos eles com uma marcação a fim de identificá-los. Após a secagem das gotas, utilizando-se uma lâmpada infra-vermelha, cada alvo foi coberto por outro sem gota, cortado nas mesmas dimensões e também marcados. O detector utilizado neste trabalho tem uma espessura de $200 \mu\text{m}$, que é suficiente para garantir que os fragmentos de fissão originados em um detector não atinjam o detector seguinte, pois sabe-se que o alcance dos fragmentos não é superior a $25 \mu\text{m}$ [33].

Os alvos foram empilhados formando 'sanduíches' (figura 4.2) e embrulhados em papel alumínio.

Em seguida, foram colocados dentro de 'coelhos' (recipiente cilíndrico de alumínio com 22 mm de diâmetro e 70 mm de comprimento) para serem irradiados (figura 4.3).

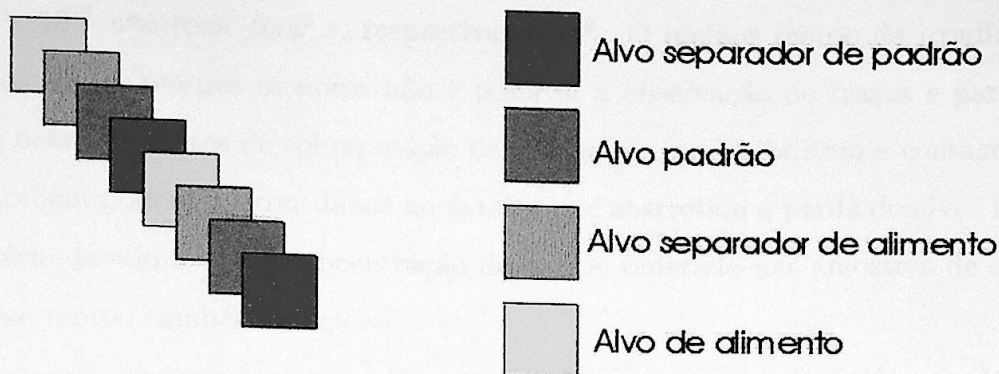


Figura 4.2: Figura esquemática da montagem dos alvos.



Figura 4.3: Montagem do coelho para a irradiação.

Foram feitos também alvos contendo apenas o ácido nítrico a 2% utilizado no preparo das soluções para a determinação do fundo, que poderia existir devido a impurezas no detetor ou ainda, devido a contaminação.

4.6 A irradiação e a revelação dos alvos

Os coelhos foram irradiados no reator IEAR1 do IPEN, utilizando o dispositivo EIRA na posição 24B, prateleira 5 (figura 4.4). Esta configuração apresenta fluxos de nêutrons térmicos, epitérmicos e rápidos de $2,708 \times 10^{13}$ nêutrons/cm².s, $5,834 \times 10^{12}$ nêutrons/cm².s

e $2,562 \times 10^{12}$ nêutrons / $cm^2.s$, respectivamente². O melhor tempo de irradiação é de 3 minutos. Para tempos menores não é possível a observação de traços e para tempos maiores, ocorrem efeitos de sobreposição de traços que impossibilitam a contagem. Além disso, também podem ocorrer danos no detetor que acarretam a perda do alvo. Esse fluxo é necessário devido à baixa concentração de urânio esperada nas amostras de alimentos, sendo esse tempo também suficiente.

Para tornar visíveis os traços formados pelos fragmentos de fissão os alvos foram submetidos a ataque químico (revelação) com uma solução contendo 15% de KOH, 45% de água e 40% de álcool etílico, aquecida em banho-maria a 70°C, durante 7 minutos. Como a velocidade de ataque é maior na região onde o traço é formado [34], este sofre um alargamento, tornando-se visível através de microscópio óptico, possibilitando a contagem. Uma temperatura maior ou um tempo maior de revelação podem causar severos danos no detetor, que já está frágil devido ao procedimento de irradiação. Analogamente, um tempo menor ou uma temperatura menor não permitem uma boa visualização dos traços.

Em seguida os alvos foram lavados em água, para neutralizar o ataque, secos e fixados a lâminas para a realização da contagem dos traços em microscópio óptico com um aumento de 63x.

²valores dos fluxos do reator na época da irradiação, fornecidos em comunicação pessoal escrita por Renato Semmler.

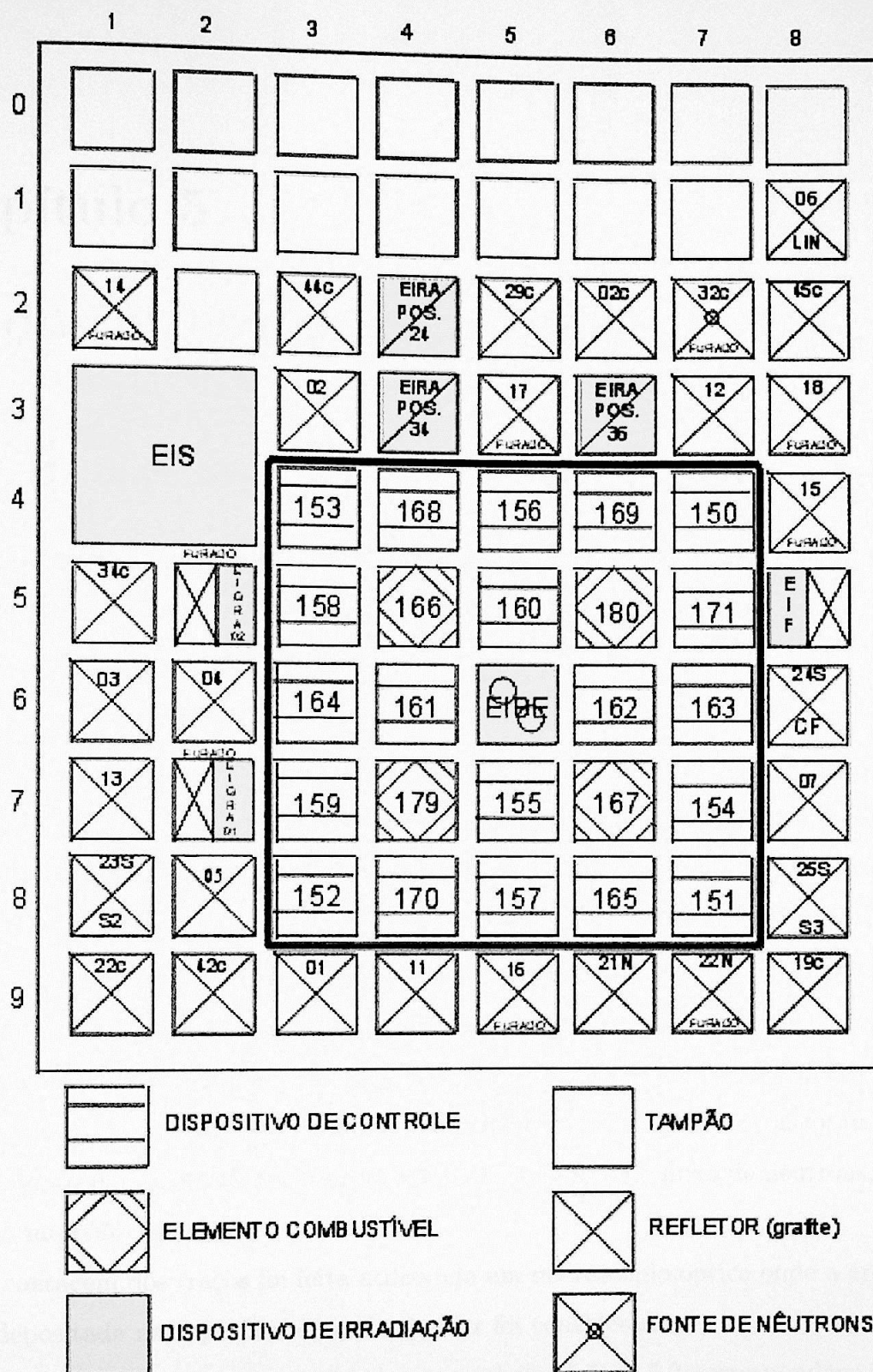


Figura 4.4: Figura esquemática do reator.

Capítulo 5

Dados e resultados obtidos

5.1 A concentração e a massa de urânio nos alimentos

A concentração de urânio presente nos alimentos pode ser obtida como uma medida relativa através da equação 4.4, já discutida no procedimento experimental:

$$C_A = \frac{T_A C_P}{T_P} \quad (5.1)$$

Onde C_A é a concentração de urânio nos alimentos, C_P é a concentração de urânio no padrão e T_A e T_P os números de traços nos alvos de alimentos e padrões, respectivamente.

Como os valores esperados de concentração nos alimentos são da ordem de ppb (parte por bilhão), foram confeccionados alvos padrões em duplicata, com concentrações de urânio de 1, 3 e $5\mu\text{g}/\text{l}$. Para cada alimento foram confeccionados 4 alvos. Sendo assim, a montagem, descrita na seção 4.5, era constituída de 120 alvos, que foram irradiados em conjunto onde, 52 alvos eram de alimentos, 6 de padrões e 2 do experimento branco. O restante eram alvos utilizados para cobrir aqueles com gotas. As amostras foram irradiadas em conjunto para garantir que fossem atingidas pelo mesmo fluxo de nêutrons, durante o mesmo intervalo de tempo.

A contagem dos traços foi feita utilizando um microscópio óptico onde a área total da gota depositada na superfície de cada detetor foi considerada.

Os números de traços apresentados nas tabelas 5.1 e 5.2 correspondem aos valores

médios das contagens realizadas para cada padrão e alimento. O experimento branco não apresentou traços e as incertezas correspondem ao desvio padrão da média.

| Concentração ($\mu\text{gU/L}$) | \bar{T} | $\sigma_{\bar{T}}$ |
|-----------------------------------|-----------|--------------------|
| 1 | 332 | 5 |
| 3 | 922 | 93 |
| 5 | 1400 | 148 |

Tabela 5.1: Média do número de traços nos alvos padrão e respectivas incertezas.

| Alimento | \bar{T} | $\sigma_{\bar{T}}$ |
|----------|-----------|--------------------|
| feijão | 3130 | 126 |
| frango | 1256 | 65 |
| banana | 1157 | 29 |
| açúcar | 1070 | 66 |
| tomate | 886 | 40 |
| pão | 808 | 63 |
| carne | 567 | 21 |
| alface | 304 | 24 |
| laranja | 262 | 22 |
| arroz | 157 | 15 |
| leite | 83 | 16 |
| sal | 55 | 5 |
| café | 38 | 3 |

Tabela 5.2: Contagem do número de traços nos alvos de alimentos e respectivas incertezas.

Com os valores médios das contagens realizadas para os alvos padrões foi feita uma curva de calibração (figura 5.1), cujo ajuste da curva do tipo $y = ax + b$ forneceu um valor de χ^2_{red} de 0.99 com $a = 277 \pm 29$ e $b = 54 \pm 30$. Esse ajuste foi utilizado para determinar os valores de concentração de urânio nos alimentos, bem como para o cálculo de sua incerteza, obtida através de propagação.

Assim, obtivemos os valores de concentração e massa de urânio nos alimentos, apresentados nas tabelas 5.3 e 5.4. Com os valores de concentração e das quantidades consumidas de alimentos foi possível determinar que a massa de urânio que é ingerida

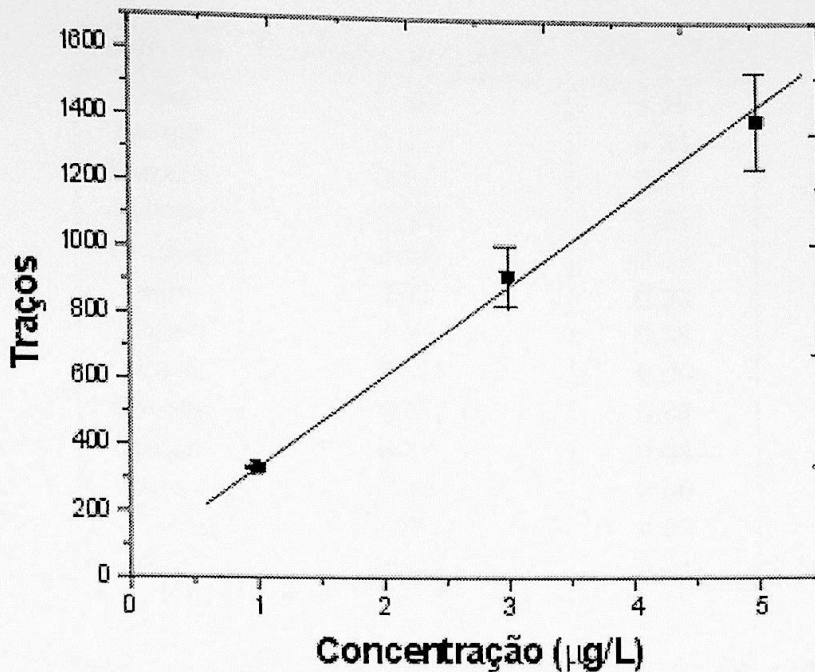


Figura 5.1: Curva de calibração do número de traços em função da concentração.

diariamente por pessoa na cidade de São Paulo é de $0,69 \pm 0,04 \mu\text{g}$. Esse valor está em acordo com aquele encontrado por Dang [5] ($0,77 \pm 0,36 \mu\text{g}/\text{dia}$), na Índia, bem como aquele encontrado por Amaral [9] ($0,82 \mu\text{g}/\text{dia}$) no Brasil, na região de Pernambuco. Além disso o nosso resultado é comparável àqueles obtidos por Welford e Baird [3] para as cidades de Nova York ($1,3 \mu\text{g}/\text{dia}$), Chicago ($1,4 \mu\text{g}/\text{dia}$) e São Francisco ($1,3 \mu\text{g}/\text{dia}$).

Apesar de próximos, é importante ressaltar que esses valores estão relacionados aos hábitos alimentares de cada localidade, onde qualidades e quantidades diferentes de alimentos são ingeridos. Além disso, a composição do solo onde os alimentos são cultivados, assim como a utilização de fertilizantes à base de fosfato, ou ainda a forma de preparo dos alimentos para o consumo, contribuem para os diferentes valores encontrados. O estudo de Amaral [9], por exemplo, foi realizado em uma localidade onde concentrações de urânio e rádio no solo são comprovadamente elevadas. Ele encontrou que o valor máximo na con-

| Alimento | Concentração($\mu\text{gU}/\text{l}$) | σC ($\mu\text{gU}/\text{l}$) |
|----------|---|--|
| feijão | 11,07 | 0,46 |
| frango | 4,32 | 0,24 |
| banana | 3,97 | 0,11 |
| açúcar | 3,66 | 0,24 |
| tomate | 2,99 | 0,15 |
| pão | 2,71 | 0,23 |
| carne | 1,85 | 0,08 |
| alface | 0,90 | 0,09 |
| laranja | 0,75 | 0,08 |
| arroz | 0,37 | 0,05 |
| leite | 0,10 | 0,06 |
| sal | 0,00 | 0,02 |
| café | -0,06 | 0,01 |

Tabela 5.3: Valores de concentração e respectivas incertezas para os alimentos.

| Alimento | Consumo(g/ano) | MU($\mu\text{gU}/\text{ano}$) | σMU ($\mu\text{gU}/\text{ano}$) |
|----------|----------------|---------------------------------|---|
| feijão | 6746 | 74,67 | 8,09 |
| frango | 1132 | 4,89 | 0,56 |
| banana | 1328 | 5,27 | 0,54 |
| açúcar | 14236 | 52,05 | 6,24 |
| tomate | 5283 | 15,81 | 1,76 |
| pão | 20510 | 55,64 | 7,31 |
| carne | 12734 | 23,50 | 2,57 |
| alface | 825 | 0,74 | 0,10 |
| laranja | 12000 | 8,97 | 1,32 |
| arroz | 24602 | 9,07 | 1,63 |
| leite | 686 | 0,07 | 0,04 |
| sal | 2153 | 0,01 | 0,04 |
| café | 2101 | -0,12 | 0,03 |

Tabela 5.4: Massa de urânio (MU) ingerida anualmente per capita.

centração de urânio nos cultivares daquela região, era de 186 mBq/kg , sendo que o feijão e o cajú são os alimentos que apresentam maior quantidade do elemento. Hamilton [2] verificou que alimentos cozidos possuem valores maiores de concentração de urânio do que os mesmo crus, e atribuiu esse fato ao acréscimo de sal e aos utensílios utilizados no processo de cozimento.

Outro aspecto importante do nosso estudo é a técnica utilizada para determinar a quantidade de urânio nos alimentos. Ela é extremamente sensível e nos permitiu determinar as pequenas concentrações esperadas. Porém, seria interessante obter uma curva de calibração que cubra todo o intervalo de traços encontrados nos alimentos pois, para concentrações mais altas, pode ocorrer saturação. Sendo assim, é importante verificar a linearidade da relação entre o número de traços e a concentração. A eficiência de detecção neste estudo é de aproximadamente 75%, para as nossas condições de irradiação, revelação e contagem. Além disso, a técnica favorece uma boa precisão nos valores de concentração. A princípio, essa técnica pode ser utilizada para determinar a concentração de urânio em qualquer material, desde que sejam usados procedimentos adequados para o preparo das amostras e padrões. Outro aspecto favorável é que a técnica permite que várias amostras sejam irradiadas em conjunto, diminuindo o tempo de uso do reator. A desvantagem, no entanto é que a contagem dos traços, no caso do detetor Makrofol E, deve ser feita utilizando o microscópio óptico, o que torna o processo de análise mais demorado.

É importante salientar alguns procedimentos adotados, também com o objetivo de viabilizar a técnica. Por exemplo, realizar o processo de re-suspensão várias vezes para alguns alimentos, com a finalidade de obter soluções límpidas e transparentes, e confeccionar os alvos padrões através do método gravimétrico. Esses cuidados foram tomados para favorecer a obtenção de soluções bastante homogêneas.

A principal fonte de incertezas neste método se encontra na calibração entre concentração de urânio e número de traços contados. Esta incerteza, por sua vez, está associada às condições de irradiação, onde o fluxo de nêutrons pode variar de acordo com a posição da amostra no reator. No entanto essas incertezas são suficientemente pequenas para que

o método seja útil na determinação de urânio nos alimentos.

5.2 Determinação da concentração de urânio nos órgãos

O coeficiente de transferência é um parâmetro que se torna relevante quando o sistema estudado chega a um estado de equilíbrio estável (figura 5.2). Assim, quando a concentração do radionuclídeo atinge o seu valor máximo em um determinado órgão de interesse, o qual em um instante de tempo $t=0$ era livre de contaminação, o fator de transferência pode ser definido por:

$$f(i) = \frac{x_i(t \rightarrow \infty)}{p} \quad (5.2)$$

ou seja, como uma fração da quantidade total do contaminante que entra no organismo. Assim, quando o sistema atinge o equilíbrio, a concentração é máxima.

O programa [24] utilizado neste trabalho tem, inicialmente, a finalidade de determinar os coeficientes de transferência, e baseia-se em um modelo de multicompartimentos [23] que tem o sangue como centro distribuidor e receptor do radionuclídeo, assim como o modelo adotado pela ICRP [21]. O modelo de multicompartimentos, que já foi discutido com detalhes nas considerações teóricas, é descrito pela entrada do contaminante proveniente do meio externo no sangue, distribuindo-se nos outros órgãos, que não possuem outras conexões entre si. A eliminação ocorre tanto através do sangue como pelos próprios órgãos. Assim, o modelo da ICRP adotado neste trabalho foi adaptado para reproduzir essas características. As conexões entre os órgãos foram suprimidas e a excreção adotada ocorre através do sangue e dos rins. O fígado foi considerado como um único compartimento, assim como o esqueleto. Além disso, um compartimento chamado de "outros tecidos moles" foi considerado, para receber o restante do urânio. Esse compartimento foi constituído pelos músculos, pele e tecidos subcutâneos, gordura, pulmões, coração e baço.

Para determinar os fatores de transferência, o programa faz um ajuste pelo método dos mínimos quadrados, o qual dá como saída os parâmetros de fluxo ($r_{i,j}$, $r_{j,i}$, γ , ξ_i), já que em geral, os experimentos realizados permitem saber os valores de concentração medidos

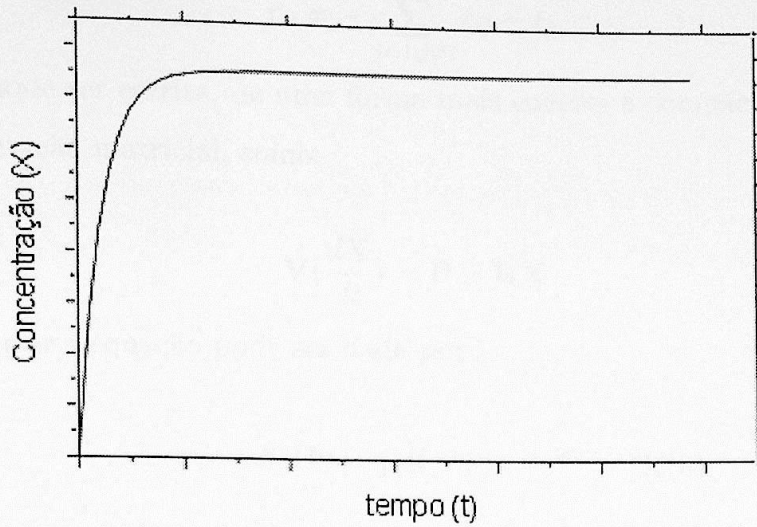


Figura 5.2: Gráfico de concentração (X) em função do tempo (t).

nos órgãos. No entanto, neste trabalho, os parâmetros de fluxo são grandezas conhecidas na literatura [21, 25], e o interesse é verificar através do conhecimento da quantidade de urânio ingerida diariamente, a concentração em cada órgão, com a posterior determinação da dose nos mesmos.

O valor da concentração nos órgãos é dado pela solução da seguinte equação diferencial [23]:

$$\frac{d(V_i X_i(t))}{dt} = P_i + \sum_{j=1; j \neq i}^k r_{ji} X_j - X_i \left(\sum_{j=1; j \neq i}^k r_{ij} \right) - \xi_i X_i \quad (5.3)$$

que pode ser obtida fazendo-se:

$$V \left(\frac{dX_i}{dt} \right) = P_i + \sum_{j=1, j \neq i}^k r_{ji} X_j - X_i \left(\sum_{j=1, j \neq i}^k r_{ij} \right) - \xi_i X_i \quad (5.4)$$

definindo-se para os elementos diagonais:

$$r_{ii} = - \sum_{j=1, j \neq i}^k r_{ij} - \xi_i \quad (5.5)$$

a equação pode ser escrita, de uma forma mais concisa e compacta, também fazendo uso da representação matricial, como:

$$V \left(\frac{d\mathbf{X}}{dt} \right) = \mathbf{P} + \mathbf{R}\mathbf{X} \quad (5.6)$$

e a solução dessa equação pode ser dada por:

$$\mathbf{X}(t) = (e^{\mathbf{V}^{-1}\mathbf{R}t} - 1)\mathbf{R}^{-1}\mathbf{P} + (e^{\mathbf{R}\mathbf{V}^{-1}t})\mathbf{X}(0) \quad (5.7)$$

onde o vetor $\mathbf{X}(0)$ dá a concentração nos compartimentos do sistema no instante $t = 0$. No nosso caso consideramos que no instante inicial, o organismo era livre de contaminação. Outra consideração foi adotar os valores dos parâmetros de fluxo para pessoas adultas, o que significa considerar valores de volumes constantes. Como já foi citado, todas essas grandezas são conhecidas, e o valor de P (alimentação proveniente do meio exterior) foi determinado no estudo da concentração do radionuclídeo nos alimentos. Os resultados obtidos, de concentração de urânio nos órgãos considerados, em função do tempo, estão descritos nos gráficos apresentados a seguir (figura 5.3 e figura 5.4).

A incerteza nesses valores de concentração é de 5% e vem da propagação de erros, que leva em consideração a incerteza no parâmetro P , que é a alimentação externa, ou a quantidade de urânio ingerida diariamente. Os parâmetros de fluxo, dados pela ICRP não possuem incertezas e portanto, não foram estimados valores para o cálculo da propagação.

Através dos gráficos podemos perceber que para o sangue e para o fígado, o sistema atinge o equilíbrio estável, enquanto que para os rins e outros tecidos moles a absorção se dá mais lentamente, assim como no esqueleto, onde a absorção é mais acentuada. Esse resultado era esperado, já que o urânio tem um comportamento semelhante ao cálcio, e a sua biocinética é descrita considerando que ele se deposita inicialmente na superfície do osso, migrando para o interior do volume ósseo, possuindo ainda uma meia-vida biológica

longa nesse compartimento. Observando as curvas de concentrações em função do tempo para os diversos órgãos obtemos que, para um indivíduo de 50 anos a concentração no esqueleto é de $2,25 \times 10^{-1} \text{ Bq/kg}$, no sangue é de $3 \times 10^{-3} \text{ Bq/kg}$, no fígado é de $3,8 \times 10^{-3} \text{ Bq/kg}$, nos rins é de $5,9 \times 10^{-3} \text{ Bq/kg}$ e no compartimento dos outros tecidos moles é de $7,2 \times 10^{-3} \text{ Bq/kg}$. Nossos valores são comparáveis àqueles encontrados por Hamilton [2] onde para o sangue, fígado e esqueleto as concentrações são de $2,3 \times 10^{-3} \text{ Bq/kg}$, $3 \times 10^{-3} \text{ Bq/kg}$ e $0,84 \times 10^{-1} \text{ Bq/kg}$, respectivamente. Somados os valores de concentrações para músculo, gordura e coração obtem-se um total de $11,4 \times 10^{-3} \text{ Bq/kg}$, que pode ser comparado àquele obtido no nosso estudo para o compartimento de "outros tecidos moles". Além disso, os valores encontrados por Welford e Baird [3] para o fígado e rins são $2,4 \times 10^{-3} \text{ Bq/kg}$, $5,2 \times 10^{-3} \text{ Bq/kg}$ e para vértebras $4 \times 10^{-3} \text{ Bq/kg}$. Aqui novamente os primeiros valores são comparáveis àqueles encontrados por nós, a menos daquele para as vértebras já que levamos em consideração todo o esqueleto para realizar os cálculos.

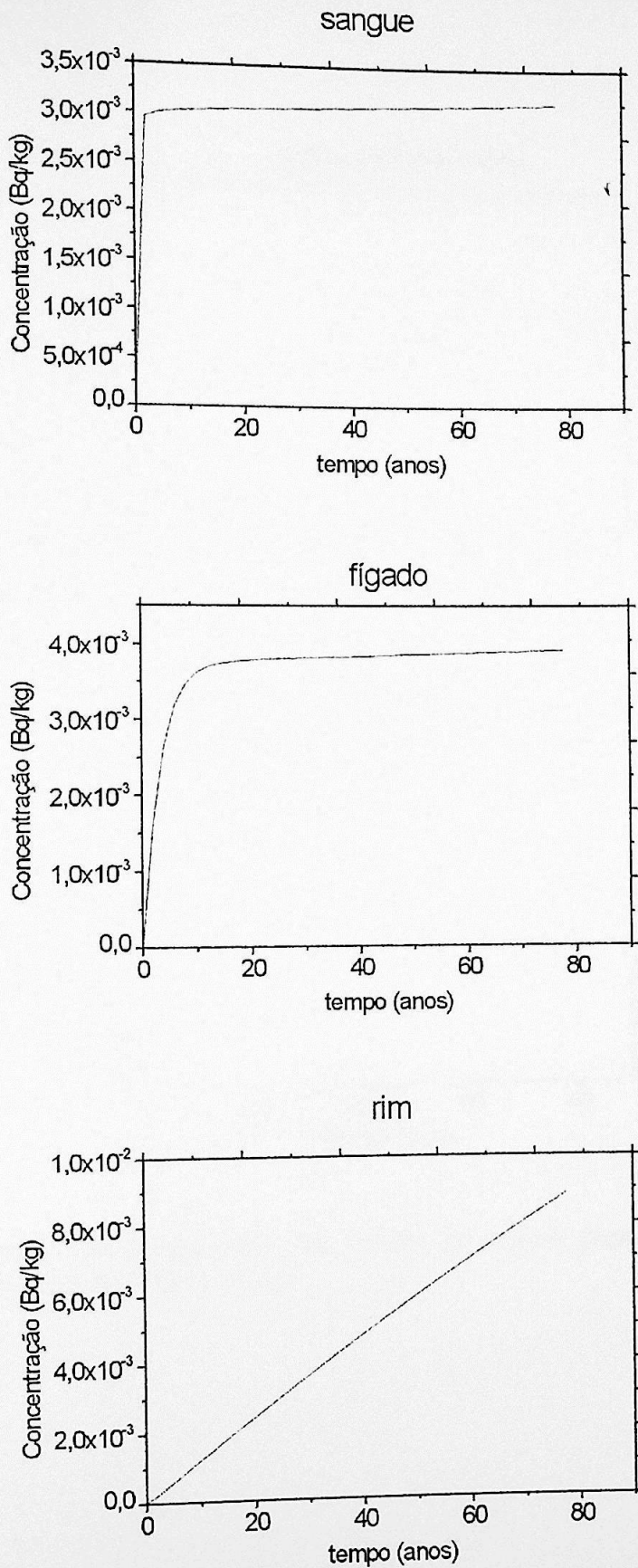


Figura 5.3: Gráficos da concentração em função do tempo para o sangue, fígado e rim.

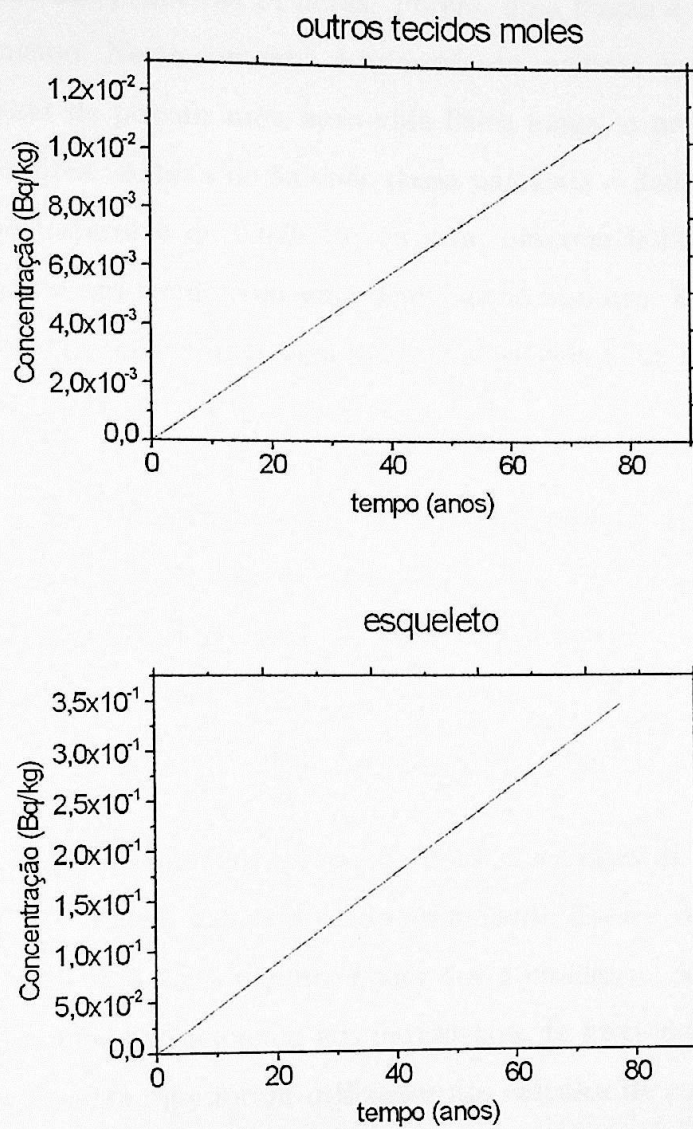


Figura 5.4: Gráficos da concentração em função do tempo para o esqueleto e para o compartimento de outros tecidos moles.

5.3 Cálculo de dose nos órgãos

A maior parte do urânio (cerca de dois terços) incorporado através da ingestão dos alimentos é excretado nas primeiras 24 horas. Porém, uma fração é absorvida no sangue e circula pelo organismo. Neste contexto, é interessante verificar qual a dose nos tecidos ou órgãos, pois apesar de possuir uma meia-vida física longa, o urânio emite partículas alfa altamente ionizantes. A taxa de emissão dessa partícula é dada pela atividade, que para $1\mu\text{g}$ de urânio natural é de $0,025\text{ Bq}$ ou seja, ocorrem $0,025$ desintegrações por segundo. Considerando um tecido com uma distribuição uniforme de urânio e densidade $\rho = 1\text{g/cm}^3$, pode-se determinar uma taxa de dose absorvida (\dot{D}_{abs}), dada por:

$$\dot{D}_{abs} = \frac{k A(t) \bar{E}}{M_i} \text{ (Gy/d)} \quad (5.8)$$

onde $\frac{A(t)}{M_i}$ é a concentração do elemento no tecido, \bar{E} é a energia da partícula α em MeV e k é uma constante de proporcionalidade que vale $1,38 \times 10^{-8} (\text{Bq}^{-1})$.

Supondo que há uma ingestão diária de material radioativo a uma taxa $P\text{Bq/dia}$, a variação na concentração é dada por:

$$\frac{dA}{dt} = P - \lambda_T A \quad (5.9)$$

onde λ_T é a constante de decaimento total dada pelas constantes de decaimento biológica e física ($\lambda_T = \lambda_b + \lambda_f$). Porém a constante de decaimento física é desprezível em relação à biológica, pois a meia-vida física é muito maior que a biológica. Sendo assim, $\lambda_T = \lambda_b$. Esse valor está diretamente relacionado aos parâmetros de fluxo dados pela ICRP [21] e já explicados anteriormente, que foram utilizados nos cálculos de concentração de urânio nos órgãos. Supondo que num instante inicial, $t = 0$, a concentração é $A = 0$, a solução da equação diferencial é:

$$A = \frac{P}{\lambda_T} (1 - e^{-\lambda_T t}) \quad (5.10)$$

Pode-se determinar então, a dose absorvida através de:

$$D(t)_{abs} = \frac{k \bar{E}}{M_i} \int A(t) dt \quad (5.11)$$

$$D(t)_{abs} = \frac{k \bar{E} P}{M_i \lambda_T} \int_0^t (1 - e^{-\lambda_T t'}) dt' \quad (5.12)$$

$$D(t)_{abs} = \frac{k P \bar{E}}{M_i \lambda_T^2} [\lambda_T t + e^{-\lambda_T t} - 1] \quad (5.13)$$

Para os valores de concentração encontrados nos órgãos, obtivemos as doses acumuladas representadas nas figuras 5.5 e 5.6.

Para estudos relacionados a efeitos biológicos, a grandeza de interesse é a Dose Equivalente, pois para uma mesma dose absorvida para diferentes tipos de radiação, os efeitos biológicos são diferentes. Assim pode-se dizer que $H_T = \sum_R w_R \cdot D_{abs}$, onde w_R é o fator de peso da radiação, que no caso da partícula alfa vale 20 [8, 22], ou seja, o dano causado por ela é 20 vezes maior do que aquele causado por raio X, para uma mesma dose absorvida. Assim,

$$H_T(\alpha) = 20 \cdot D_{abs} \quad (5.14)$$

Para efeitos de proteção radiológica, o risco devido aos efeitos da radiação, é a morte por indução de câncer, e esse risco pode ser determinado por:

$$\text{risco} = \text{fator de risco} \times \text{Dose Equivalente}$$

Para diversos órgãos e tecidos, existem valores de fatores de risco, aos quais estão associados fatores de peso (*Weighting Factor*(w_T)) (veja tabela 5.5), que representam a proporção entre o risco resultante da irradiação de um tecido e aquele resultante da irradiação uniforme de todo o corpo.

Utilizando os fatores de peso correspondentes para o osso e para o restante do corpo foi possível determinar a dose efetiva para o corpo todo, através da relação:

$$D_{ef} = \sum_T w_T \cdot H_T \quad (5.15)$$

As expressões para cálculo de dose equivalente e para dose efetiva são válidas, tanto para radiação incidente no corpo, como para aquela emitida por uma fonte interna ao organismo. Para elementos radioativos ingeridos, a Comissão Internacional [21] determina a dose equivalente no órgão ou tecido considerando o decaimento do radionuclídeo ao longo

| tecido ou órgão | fator de risco ($10^{-4} \frac{\text{risco}}{\text{Sv}}$) | (w_T) |
|-----------------|---|-----------|
| gônadas | - | 0,20 |
| medula óssea | 50 | 0,12 |
| cólon | 85 | 0,12 |
| pulmão | 85 | 0,12 |
| estômago | 110 | 0,12 |
| bexiga | 30 | 0,05 |
| mama | 20 | 0,05 |
| fígado | 15 | 0,05 |
| esôfago | 30 | 0,05 |
| tiróide | 8 | 0,05 |
| pele | 2 | 0,01 |
| osso | 5 | 0,01 |
| restante | 50 | 0,05 |
| total | 500 | 1,00 |

Tabela 5.5: Fatores de risco e de peso para os órgãos e tecidos.

do tempo. A distribuição temporal da deposição de energia é baseada na biocinética do elemento no organismo e de suas propriedades físico-químicas. Essa dose equivalente é determinada integrando a taxa de dose equivalente no tempo e adotando-se um período de 50 anos, caso a ingestão tenha ocorrido para uma pessoa adulta e de 70 anos, no caso de crianças. Neste trabalho estamos nos valendo das expressões de cálculo de dose absorvida, equivalente e efetiva utilizadas em situações de exposição ocupacional; médica, no que se refere à utilização da radiação para diagnóstico, ou ainda à exposição do público. Essa última refere-se a todas as outras exposições provenientes da liberação no ar ou no meio-ambiente da radiação. A liberação pode ser proveniente de instalações, por exemplo minas, ou de locais de rejeitos radioativos [22]. Os valores calculados aqui devem ser considerados para comparação com os recomendados pela comissão internacional e referem-se apenas a doses estimadas devido à ingestão crônica de alimentos.

Excluindo-se as exposições ao radônio, que são muito variáveis, a dose efetiva anual devido a fontes naturais é de aproximadamente $1mSv$. Esse valor pode ser o dobro para regiões muito acima do nível do mar, em grandes altitudes, ou em determinadas áreas

geológicas [22]. Com base nessas considerações, a comissão internacional recomenda um limite anual de dose efetiva de $1mSv$ [22]. O valor de dose efetiva encontrado nesse estudo, acumulado no período de 78 anos, é de $13,2 \times 10^{-3}mSv$. Este valor está muito abaixo do recomendado pela ICRP, portanto, não há necessidade de um refinamento nas expressões aqui adotadas, pois suas utilizações visam apenas uma estimativa de risco e comparação.

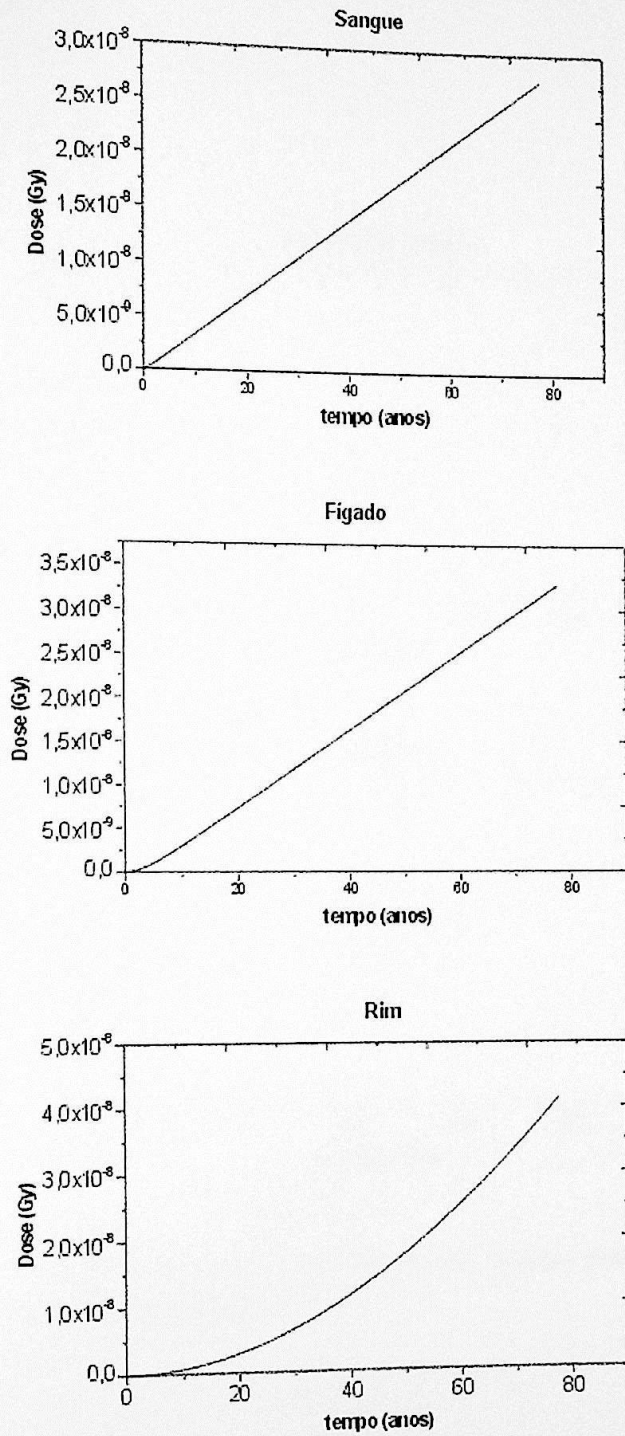


Figura 5.5: Gráficos da dose acumulada em função do tempo para o sangue, fígado e rim.

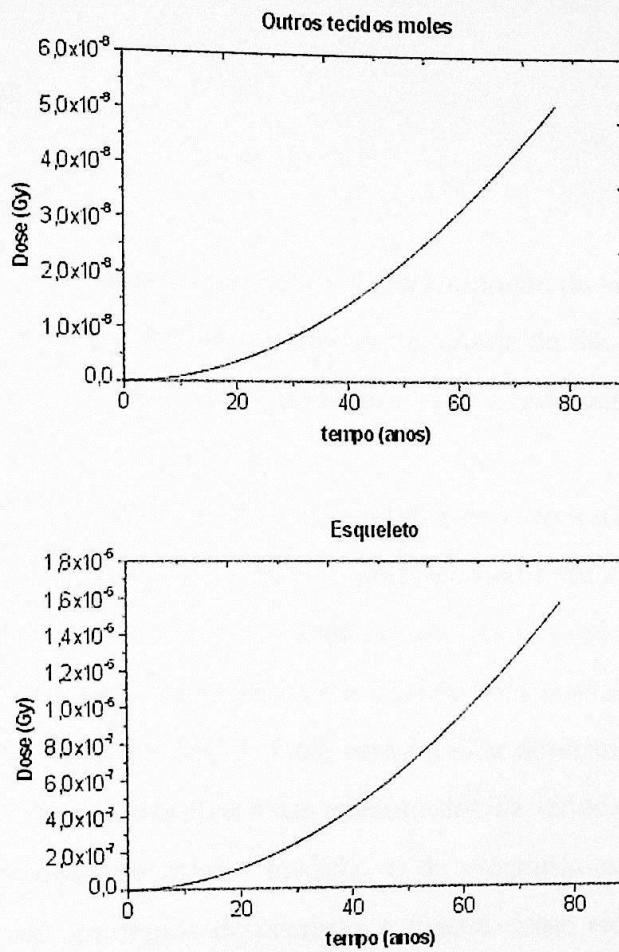


Figura 5.6: Gráficos da dose acumulada em função do tempo para o esqueleto e para o compartimento de outros tecidos moles.

Capítulo 6

Conclusões

Neste trabalho utilizamos uma técnica para a determinação da concentração de urânio em diversos alimentos consumidos pela população da cidade de São Paulo. Em princípio, esta técnica se aplica a qualquer alimento, podendo ser utilizada para estudos de proteção radiológica em qualquer outra região.

A técnica utiliza folhas de Makrofol E como detetor de traços de fragmentos de fissão. Os fragmentos de fissão ao interagirem com esse policarbonato, deixam um sinal característico que pode ser facilmente observado através de um microscópio óptico. A fissão dos átomos de urânio encontrados nos alimentos é induzida pela interação com nêutrons térmicos do reator IEA-R1, do IPEN-MCT. Com esta técnica determinamos a concentração de urânio em treze diferentes alimentos mais consumidos na cidade de São Paulo.

A partir da concentração de urânio medida, e do consumo médio destes alimentos pela população da cidade, pudemos determinar a massa desse elemento que é ingerida diariamente por um indivíduo.

Usando o modelo de multicompartimentos, os parâmetros de fluxo da ICRP para o urânio entre os diversos órgãos do corpo humano e a massa média ingerida que medimos neste trabalho, avaliamos qual a concentração de urânio que se acumula em cada órgão estudado ao longo da vida do indivíduo, bem como a dose depositada nesses órgãos devido à emissão natural de partículas α pelo núcleo de urânio natural.

A partir dessas doses e do fator de risco de cada órgão, avaliamos a contribuição

ao risco de morte por câncer de um indivíduo médio na cidade de São Paulo devido exclusivamente à ingestão de alimentos. Este valor encontra-se consideravelmente abaixo do recomendado pela ICRP. Deve-se notar, no entanto, que este limite é para dose total recebida pelo indivíduo, não apenas através da ingestão.

Sendo assim e tendo em vista os objetivos inicialmente propostos, é possível concluir que:

1. A técnica utilizada para determinar pequenas quantidades de urânio em alimentos é bastante precisa como pode ser observado através das incertezas obtidas nas concentrações. Podemos considerar os valores encontrados para as concentrações acurados e confiáveis, pois as amostras foram preparadas segundo um procedimento que minimiza as possibilidades de contaminação ou a perda de material. Além disso, os valores encontrados são comparáveis àqueles obtidos em estudos realizados em outros países, que utilizaram técnicas diversas.
2. A estimativa de concentração é confiável, pois na sua avaliação foi considerado o metabolismo do urânio, segundo as recomendações do modelo biocinético da ICRP. Por outro lado, a aproximação feita para volumes constantes leva a um valor de concentração subestimado, já que órgãos de indivíduos em desenvolvimento (bebês, crianças ou jovens) absorvem maior quantidade do radionuclídeo.
3. O valor dado pela ICRP para dose efetiva anual para a população em geral, devido à radiação natural é de 1 mSv ao ano. De acordo com este trabalho, a dose efetiva acumulada ao longo da vida associada ao consumo de alimentos seria de aproximadamente $13,2 \times 10^{-3}\text{ mSv}$. Este valor está bem abaixo do recomendado como limiar pela comissão internacional e portanto, podemos concluir que o risco associado à ingestão dos alimentos aqui pesquisados é também baixo. É importante lembrar também que no caso do urânio a dose se acumula através da absorção de partículas alfa, que depositam toda a sua energia dentro de um número reduzido de células. Nestas, a dose absorvida pode ser muito superior ao valor médio obtido.

Para um projeto futuro é interessante realizar um estudo com maior número de alimentos, verificando suas origens e condições de produção. Além disso, é interessante estender o modelo utilizado para volumes variáveis, para uma estimativa mais acurada e precisa da concentração.

Apêndice A

A.1 O mecanismo de formação de traços e o processo de revelação

A formação de traços, em determinados materiais devido à passagem de partículas carregadas foi explicada por Fleischer et.al. [28], que descreveu o mecanismo como um *ion explosion*.

A incidência da partícula carregada ioniza os átomos do material (figura A.1). Os íons formados se afastam de suas posições originais, devido à repulsão Coulombiana e ao se moverem deixam espaços vazios, que são denominados trilhas ou traços. A observação do traço no material detector depende de alguns fatores como a tensão mecânica, a constante dielétrica do material e a distância interatômica. Além disso, a observação dos traços depende também do tempo de difusão dos elétrons pois, se os íons se recombinaem facilmente, “apagam” o traço. Isso explica o fato de não se observarem traços em materiais condutores.

A visualização dos traços é feita submetendo-se o detector a um ataque químico, conhecido como revelação ou ampliação. Esse processo está baseado no fato de que os danos causados no detector tornam a região do traço quimicamente mais reativa ou seja, a velocidade de ataque do reagente (solução reveladora) ao longo da trajetória da partícula (V_p) é maior do que a velocidade de ataque na direção normal à superfície (V_s) (figura A.2). À medida que o reagente ataca a superfície do detector, a espessura dessa diminui. Até o

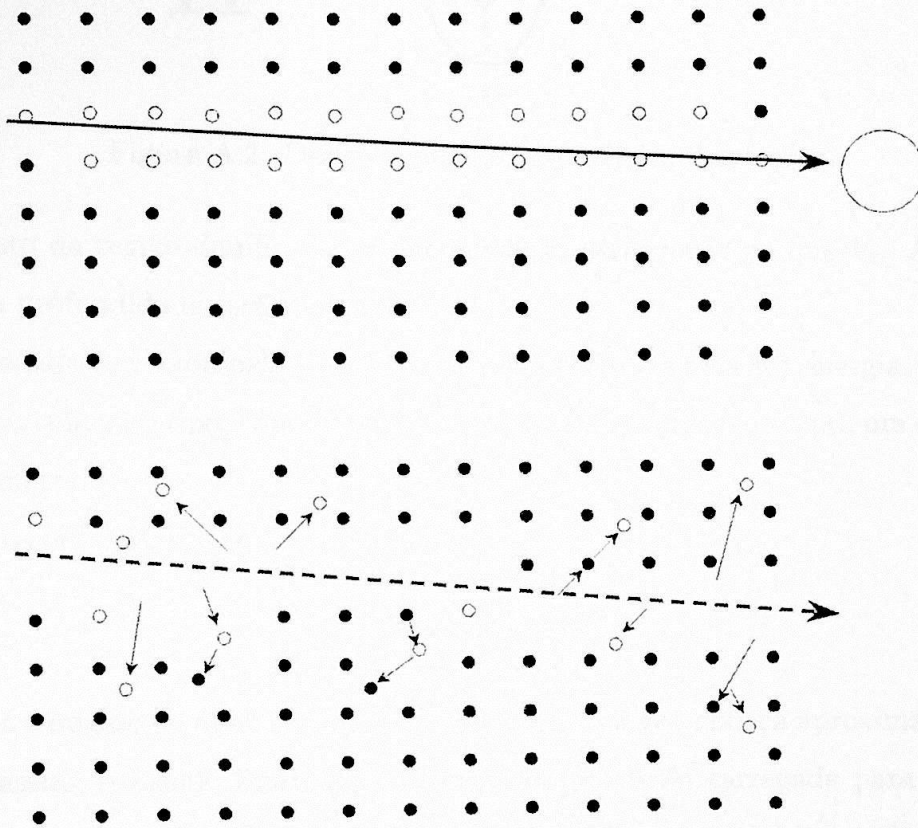


Figura A.1: Esquema do processo de ionização do material causado pela passagem de uma partícula carregada e a formação de traço devido à repulsão dos íons positivos.

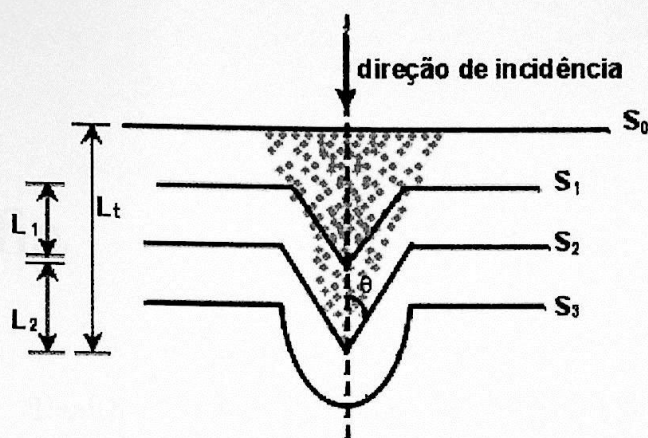


Figura A.2: Desenvolvimento geométrico dos traços.

último ponto da região danificada, a velocidade V_p será maior do que V_s . A partir daí, $V_p = 0$ e a profundidade será constante.

A velocidade V_p é dada pelo tipo de partícula incidente e pela sua energia, a velocidade V_s é determinada pelo tipo, concentração e temperatura do reagente para um determinado material detetor.

A relação entre V_p e V_s é dada por:

$$\frac{V_s}{V_p} = \sin \theta = cte, \quad (\text{A.1})$$

onde θ é o ângulo de abertura do cone, que é a forma geométrica aproximada do traço.

Sendo assim, o ângulo limite de incidência da partícula carregada para que o traço seja observável deve ser $\phi_L = \theta$. Para valores de $\phi_L < \theta$ o traço não é visível.

Bibliografia

- [1] D. J. Rees, "Health Physics: Principles of Radiation Protection" (London: Butterworths) (1962).
- [2] E. I. Hamilton, Health Physics **22** 149 (1972).
- [3] G. A. Welford, R. Baird, Health Physics **13** 1321 (1967).
- [4] B. L. Tracy, F. A. Prantil, J. M. Quinn, Health Physics **44**(5) 469 (1983).
- [5] H. S. Dang, V. R. Pullat, K. C. Pillai, Health Physics **62**(6) 562 (1992).
- [6] P. Singh et al., Radiation Measurements **26**(5) 683 (1996).
- [7] I. M. Fisenne, G. A. Welford, Health Physics **50**(6) 739 (1986).
- [8] J. D. T. Arruda-Neto et al., Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry **221** 97 (1997).
- [9] R. S. Amaral, "Dose na população da região urano-fosfática pernambucana devido à presença de urânio e ^{226}Ra nos cultivares", Tese de Doutorado - IPEN (1994).
- [10] M. E. Wrenn et al., Health Physics **48**(5) 601 (1985).
- [11] P. Morrow et al., Health Physics **43**(6) 859 (1982).
- [12] J. D. T. Arruda-Neto et al., Applied Radiation and Isotopes **54** 947 (2001).

- [13] M. V. M. Guevara, "Estudo da incorporação de urânio em ossos de ratos *Wistar* e cães *Beagle*, utilizando técnicas nucleares", Tese de Doutorado - IFUSP (2002).
- [14] R. W. Leggett, J. D. Harrison, *Health Physics* **68**(4) 484 (1995).
- [15] P. A. Assimakopoulos et al., *Health Physics* **69**(3) 410 (1995).
- [16] I. M. Fisenne, P. M. Perry, G. A. Welford, *Analytical Chemistry* **52** 777 (1980).
- [17] J. B. Hursh et al., *Health Physics* **17** 619 (1969).
- [18] Z. Karpas et al., *Health Physics* **74**(3) 337 (1998).
- [19] I. S. Eve, *Health Physics* **10** 773 (1964).
- [20] E. I. Hamilton, *Nature* **227** 501 (1970).
- [21] International Commission on Radiological Protection, ICRP publication 69 (Oxford:Pergamon Press) (1994).
- [22] International Commission on Radiological Protection, ICRP publication 60 (Oxford:Pergamon Press) (1990).
- [23] P. A. Assimakopoulos, K. G. Ioannides, A. A. Pakou, *Health Physics* **61**(2) 245 (1991).
- [24] F. Garcia et al., *Physics in Medicine and Biology* **44** 10 (1999).
- [25] R. W. Leggett, *Health Physics* **67**(6) 589 (1994).
- [26] R. E. Lapp, H. L. Andrews, "Nuclear Radiation Physics" (New York:Prentice-Hall) (1954).
- [27] F. H. Attix, W. C. Roesch, "Nuclear Physics" (Massachusetts:Addison - Wesley) (1955).

-
- [28] R. L. Fleischer, P. B. Price, R. M. Walker, *Journal of Applied Physics* **36**(11) 3645 (1965).
- [29] R. L. Fleischer, A. C. Delany, *Analytical Chemistry* **48**(4) 642 (1976).
- [30] P. B. Price, R. M. Walker, *Physics Letters* **3**(3) 113 (1962).
- [31] Pesquisa de Orçamentos Familiares (POF), IBGE (1996).
- [32] T. Hashimoto, *Analytica Chimica Acta* **56** 347 (1971).
- [33] K. Endo, T. Doke, *Nuclear Instruments and Methods* **111** 29 (1973)
- [34] P. B. Price, R. M. Walker, *Journal of Applied Physics* **33**(12) 3407 (1962).