

A FLUORIMETRIA PARA O CONTROLE DA CONTAMINAÇÃO INTERNA DOS TRABALHADORES EXPOSTOS A URÂNIO NATURAL E ENRIQUECIDO

Gaburo, J. C.; Todo, A. S.; Sordi G. M. A. A

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN-CNEN/SP
Travessa R, 400 – CEP 05508-900 – São Paulo, SP – Brasil

e-mail: janetegc@net.ipen.br

RESUMO

Este estudo faz parte do programa de revisão da monitoração individual interna dos trabalhadores do IPEN-CNEN/SP que manuseiam compostos de urânio. Os trabalhadores estão passíveis de serem expostos tanto a urânio natural como a urânio com diferentes composições isotópicas, alcançando até 20% em ^{235}U . As técnicas utilizadas para a determinação de urânio em urina são: a fluorimetria e a espectrometria alfa, com limites de detecção, respectivamente, de $1,0 \mu\text{gL}^{-1}$ e $1,0 \text{mBqL}^{-1}$. Baseado nas vantagens e desvantagens de cada técnica tornou-se extremamente importante identificar os grupos de trabalhadores que deveriam ser submetidos a ambas técnicas de análise. Neste estudo é proposto um valor limite de concentração de urânio na urina, μgL^{-1} , obtido pelo método fluorimétrico, acima do qual indique a necessidade de se efetuar a espectrometria alfa. A massa de urânio que resulta em um limite pré-determinado de dose efetiva comprometida é função da composição isotópica. Em consequência, a fração de excreção urinária prevista num determinado tempo após a incorporação também é função da composição isotópica e depende do tipo de solubilidade do composto quando inalado e do intervalo de monitoração considerado. No trabalho são determinadas as concentrações de urânio na urina em μgL^{-1} para os níveis de referência e limites de dose. Baseado nestes resultados foram adotados os procedimentos de uso da técnica fluorimétrica ou ambas, fluorimetria e espectrometria alfa.

I. INTRODUÇÃO

O urânio é um dos principais elementos do combustível nuclear e seus compostos são manuseados em quantidades apreciáveis em todas as fases do ciclo do combustível. No processo de obtenção do combustível nuclear pode-se manusear urânio com diferentes composições isotópicas. O urânio natural é composto pelos isótopos ^{238}U , ^{235}U e ^{234}U sendo todos emissores alfa e tóxicos ao homem tanto quimicamente quanto radiologicamente.

Para tanto, torna-se necessário estabelecer programas de monitoração para os trabalhadores com risco de exposição ocupacional.

Os métodos de monitoração baseados em amostragem de ar e levantamento da contaminação de superfície são amplamente utilizados, mas não são suficientes para indicar o nível de contaminação interna individual. Para este controle existem métodos diretos ou indiretos que permitem avaliar a atividade ou a concentração em atividade a partir dos resultados obtidos e por meio de modelos matemáticos

estimar a dose causada pela contaminação interna dos trabalhadores expostos.

Atualmente no IPEN-CNEN/SP os trabalhadores não são monitorados rotineiramente por métodos diretos, contador de pulmão, em virtude de não se dispor de detectores adequados para esta finalidade, portanto, apenas tem-se a opção de métodos indiretos. O programa de monitoração individual interna estabelecido aos trabalhadores do IPEN envolvidos no manuseio de compostos ditos solúveis, ou mesmo insolúveis de urânio, com risco de contaminação interna, limita-se a análise de urina pelo método fluorimétrico em meio sólido, com intervalo entre as monitorações de 90 dias.

Os resultados obtidos até então indicaram que a maioria das amostras analisadas apresentaram concentração de urânio abaixo do limite de detecção do método.

Se forem conhecidas a composição isotópica, a sua concentração no ar e o tempo de permanência do trabalhador no local de trabalho em presença de cada composição isotópica, o método fluorimétrico possui sensibilidade e rapidez necessária para a análise do urânio total.

De acordo com os relatórios dos supervisores de radioproteção da área, divisão do ciclo do combustível, os trabalhadores estão passíveis de serem expostos tanto a urânio natural como a compostos de urânio com diferentes composições isotópicas, alcançando até 20% de enriquecimento.

Para o cálculo da dose comprometida efetiva necessita-se conhecer a composição isotópica do urânio. Esta composição pode ser determinada por várias técnicas, as mais conhecidas são: espectrometria de massa - ICPMS, análise por ativação e espectrometria alfa.

A técnica escolhida para complementação do programa de monitoração interna foi espectrometria alfa por causa da sua sensibilidade, simplicidade e disponibilidade.

O principal objetivo deste estudo é propor um valor limite de concentração de urânio na urina, μgL^{-1} , obtido pelo método fluorimétrico, acima do qual indique a necessidade de se efetuar a espectrometria alfa. Como a massa de urânio que resulta num limite pré-determinado de dose efetiva comprometida é função da composição isotópica, a fração de excreção urinária prevista também o será e dependerá das características de absorção do composto quando inalado e do intervalo de monitoração considerado. Portanto neste estudo serão determinadas as concentrações de urânio na urina em μgL^{-1} para os seguintes níveis de referência e limites de dose: nível de registro que coincide com o valor inferior do nível de investigação, limite anual médio sobre 5 anos e para o limite anual [1].

II. METODOLOGIA

De acordo com a Publicação 78 [2] da ICRP a Tabela 1 fornece os coeficientes de dose em sievert por bequerel incorporado para cada um dos três isótopos naturais do urânio e as características de absorção, a saber, compostos Tipos F (altamente solúvel), M (moderadamente solúvel) e S (insolúvel).

TABELA 1. Coeficiente de dose, $e(50)$, para isótopos naturais do urânio em SvBq^{-1} .

| Tipo de Absorção | ^{234}U SvBq^{-1} | ^{235}U SvBq^{-1} | ^{238}U SvBq^{-1} |
|------------------|--|--|--|
| F | $6,4 \times 10^{-7}$ | $6,0 \times 10^{-7}$ | $5,8 \times 10^{-7}$ |
| M | $2,1 \times 10^{-6}$ | $1,8 \times 10^{-6}$ | $1,6 \times 10^{-6}$ |
| S | $6,8 \times 10^{-6}$ | $6,1 \times 10^{-6}$ | $5,7 \times 10^{-6}$ |

Na Tabela 2 são apresentados os dados de Stradling e cols. [3] que fornecem a composição isotópica em termos de atividade para os três isótopos naturais de urânio e também a composição destes isótopos para o grau de enriquecimento de 3,5% e 93% em ^{235}U .

TABELA 2. Composição isotópica do urânio em termos atividade.

| Grau de Enriquecimento | ^{234}U (%) | ^{235}U (%) | ^{238}U (%) |
|--------------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|
| U-Natural | 48,9 | 2,2 | 48,9 |
| 3,5% em ^{235}U | 64 | 6,8 | 29,2 |
| 93% em ^{235}U | 75,4 | 24,3 | 0,3 |

Com as Tabelas 1 e 2, determinou-se a dose em sievert por bequerel, SvBq^{-1} , para o urânio natural e para os graus de enriquecimento de 3,5% e 93% em ^{235}U .

TABELA 3. Coeficiente de dose, $e(50)$ em SvBq^{-1} , do urânio para diferentes graus de enriquecimento e tipos de absorção.

| Tipo de Absorção | U-Natural SvBq^{-1} | 3,5% em ^{235}U SvBq^{-1} | 93% em ^{235}U SvBq^{-1} |
|------------------|---------------------------------|--|---|
| F | $6,1 \times 10^{-7}$ | $6,2 \times 10^{-7}$ | $6,3 \times 10^{-7}$ |
| M | $1,9 \times 10^{-6}$ | $1,9 \times 10^{-6}$ | $2,0 \times 10^{-6}$ |
| S | $6,3 \times 10^{-6}$ | $6,4 \times 10^{-6}$ | $6,6 \times 10^{-6}$ |

A Publicação 78 da ICRP [2] também fornece a excreção urinária diária por Bq incorporado de urânio para vários dias, a partir da incorporação, até um período de um ano.

Em virtude de se efetuar uma monitoração rotineira a cada 90 dias foram utilizados os valores da fração de excreção para este intervalo, considerando também os diferentes tipos de absorção. Estes valores previstos, de Bq na urina de 24 h por Bq de incorporação para a inalação de urânio, são $3,5 \times 10^{-4}$, $2,0 \times 10^{-4}$, $6,0 \times 10^{-6}$, respectivamente, para os tipos de absorção F, M, S.

Assim, a partir das doses efetivas comprometidas de 1,25 mSv, 5,0 mSv e 12,5 mSv correspondentes ao nível de registro, limite anual médio sobre 5 anos e limite anual por monitoração efetuada, pode-se estimar as atividades presentes na urina. Cabe salientar que são efetuadas 4 monitorações por ano. Os cálculos foram efetuados utilizando os valores da Tabela 3 para determinar a incorporação referente à dose desejada. Em seguida, obteve-se a atividade na urina utilizando os valores da incorporação e da fração de excreção.

Os valores obtidos em Bq excretados diariamente foram transformados em unidade de massa, μg , lembrando-se que estes valores diferem com a composição isotópica uma vez que a massa em função da atividade depende da meia vida do radioisótopo. Os valores da atividade específica [3] para o urânio natural e para o urânio enriquecido a 3,5% e 93% são respectivamente, $2,52 \times 10^4 \text{ Bqg}^{-1}$, $4,09 \times 10^4 \text{ Bqg}^{-1}$ e $3,02 \times 10^5 \text{ Bqg}^{-1}$. Finalmente a excreção urinária correspondente de 24 horas que é de 1,4 L para o homem referência [4], foi corrigido para 1 litro.

III. RESULTADOS

Os resultados obtidos num programa de monitoração individual para contaminação interna podem ser comparados com os níveis de referência e limites de dose utilizados para as diferentes ações que o serviço de proteção radiológica deverá por em execução. Partindo destes pressupostos as Tabelas 4, 5 e 6 apresentam os resultados para as concentrações de urânio na urina em μgL^{-1} para diferentes tipos de absorção em função do grau de enriquecimento que resultará em nível de registro, limite anual médio e limite anual.

A Tabela 4 fornece os valores limiares para as situações de investigação, uma vez que se pretende reduzir os níveis de radiação para valores inferiores ao nível de registro que se tornará o limite anual médio em futuro próximo.

TABELA 4. Valores de concentração de urânio total na urina de 24 h para diferentes tipos de absorção e grau de enriquecimento que resultará numa dose comprometida de 1,25 mSv/monitoração (Nível de Registro considerando 4 monitorações por ano).

| Grau de Enriquecimento | Tipo F μgL^{-1} | Tipo M μgL^{-1} | Tipo S μgL^{-1} |
|--------------------------|----------------------------|----------------------------|----------------------------|
| U-Natural | $2,8 \times 10^1$ | $5,3 \times 10^0$ | $4,7 \times 10^{-2}$ |
| 3,5% em ^{235}U | $1,7 \times 10^1$ | $3,2 \times 10^0$ | $2,9 \times 10^{-2}$ |
| 93% em ^{235}U | $2,3 \times 10^0$ | $4,1 \times 10^{-1}$ | $3,8 \times 10^{-3}$ |

A Tabela 5 reporta os valores anuais médios calculados sobre um período de 5 anos e representam os atuais limites médios. Sua utilidade reside no controle para que no período dos 5 anos não seja ultrapassado duas vezes o limite anual.

TABELA 5. Valores de concentração de urânio total na urina de 24 h para diferentes tipos de absorção e grau de enriquecimento que resultará numa dose comprometida de 5,0 mSv/monitoração (Limite anual médio de 20 mSv considerando 4 monitorações por ano).

| Grau de Enriquecimento | Tipo F μgL^{-1} | Tipo M μgL^{-1} | Tipo S μgL^{-1} |
|--------------------------|----------------------------|----------------------------|----------------------------|
| U-Natural | $1,1 \times 10^2$ | $2,1 \times 10^0$ | $1,9 \times 10^{-1}$ |
| 3,5% em ^{235}U | $6,9 \times 10^1$ | $1,3 \times 10^1$ | $1,1 \times 10^{-1}$ |
| 93% em ^{235}U | $9,2 \times 10^0$ | $1,6 \times 10^0$ | $1,5 \times 10^{-2}$ |

A Tabela 6 reporta os valores máximos admissíveis para um único ano e representam o limiar para uma situação considerada acidental. Esta situação invoca uma série de ações, fora da normalidade, por parte da proteção radiológica, por exemplo, a colocação em prática do plano de emergência radiológica.

TABELA 6. Valores de concentração de urânio total na urina de 24 h para diferentes tipos de absorção e grau de enriquecimento que resultará numa dose comprometida de 12,5 mSv/monitoração (Limite anual de 50 mSv considerando 4 monitorações por ano).

| Grau de Enriquecimento | Tipo F μgL^{-1} | Tipo M μgL^{-1} | Tipo S μgL^{-1} |
|--------------------------|----------------------------|----------------------------|----------------------------|
| U-Natural | $2,8 \times 10^2$ | $5,3 \times 10^1$ | $4,7 \times 10^{-1}$ |
| 3,5% em ^{235}U | $1,7 \times 10^2$ | $3,2 \times 10^1$ | $2,9 \times 10^{-1}$ |
| 93% em ^{235}U | $2,3 \times 10^1$ | $4,1 \times 10^0$ | $3,8 \times 10^{-2}$ |

IV. DISCUSSÃO E CONCLUSÃO

Considerando que o limite de detecção pelo método fluorimétrico é de $1 \mu\text{gL}^{-1}$ de urina, vê-se das Tabelas 4, 5 e 6 que, para o urânio natural e para todos os enriquecimentos considerados, para os Tipos F e M e em todos os níveis de dose efetiva comprometida examinados, o método fluorimétrico pode ser usado como discriminador para os trabalhadores que necessitarão do método mais sensível, isto é, a espectrometria alfa. A única exceção é para o Tipo M, enriquecimento 93%, Tabela 4, mas se for considerado que o enriquecimento máximo usado no IPEN é de 20%, o método fluorimétrico continua servindo como discriminador.

No caso do Tipo S, independentemente de ser urânio natural ou enriquecido, em todas as doses examinadas, o limiar de detecção pelo método fluorimétrico é superior aos resultados apresentados nas Tabelas 4, 5 e 6 e, portanto, não é útil como discriminador. Para estes trabalhadores recomenda-se efetuar a monitoração pelo método direto ou a análise de urina por espectrometria alfa.

Como conclusão final, lembrando-se que todos os trabalhadores do ciclo do combustível exercem suas atividades simultaneamente com os três tipos de absorção e com enriquecimentos de até 20%, é necessário efetuar um estudo nas áreas de trabalho para verificar se eles poderiam ser distribuídos em dois grupos, limitando aqueles que exerçam atividades com urânio natural e diferentes composições isotópicas de Tipo S, dos demais. Esta separação diminuiria muito os custos de análise e a força de trabalho (em homens-horas) para efetuá-las.

REFERÊNCIAS

- [1] International Commission On Radiological Protection. **1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection**. Oxford, Pergamon, 1991. (ICRP-60).
- [2] International Commission On Radiological Protection. **Individual monitoring for internal exposure of workers**. Oxford, Pergamon, 1998. (ICRP-78).
- [3] Stradling, G. N., Hodgson, A., Moody, J. C., Fell, T. P., Rance, E., **Exposure Limits and Assessment of Intake for Inhaled Soluble Uranium Compounds**, NRPB-M801, UK, 1997.

[4] [1] International Commission On Radiological **Report of the task group on reference man**. Oxford, Pergamon, 1974. (ICRP-23).

ABSTRACT

This study is a part of bioassay program revision applied to the uranium processing plants at IPEN-CNEN/SP. The workers of these facilities handle both natural uranium and uranium compounds with different isotopic composition which could reach up to 20% in ^{235}U . The most commonly employed techniques for the determination of uranium in urine at IPEN are fluorimetry and alpha spectrometry with detection limit of $1.0\ \mu\text{gL}^{-1}$ and $1.0\ \text{mBqL}^{-1}$, respectively. Based in advantages and disadvantages of each technique it is very important to identify the workers groups that should be submitted for these analysis. In this report a limiting value of uranium concentration in urine, μgL^{-1} , obtained by fluorimetry is proposed. All the results greater than these limiting value indicate the necessity to carry out a additional measurement by alpha spectroscopy. The uranium mass that result in a pre-determined limit committed effective dose is function of isotopic composition. Consequently, the predicted value of the measured of urinary excretion is function of isotopic composition also and depends of absorption characteristics when inhaled and of the monitoring interval considered. In this report the uranium concentration values for reference levels and limits doses are determined. Based on these results the procedures to use the fluorimetry or both fluorimetry and alpha-spectrometry were adopted.