

7 Discussões

Os parâmetros de dissolução (f_r , s_r e s_s) estimados para os compostos de urânio DUA, TCAU e UO_2 simulam o comportamento cinético dos compostos estudados no pulmão humano. Os parâmetros determinados neste estudo foram comparados aos valores internacionais recomendados pela ICRP e que são adotados oficialmente pelo Brasil e aos valores encontrados na literatura.

Os valores determinados experimentalmente, nesse estudo, para os parâmetros de dissolução do urânio para o DUA foram de $f_r = 0,83$; $s_r = 0,51 \text{ d}^{-1}$ e $s_s = 0,0075 \text{ d}^{-1}$. A ICRP 66 (ICRP, 1994) classifica o DUA como um composto do tipo M (moderadamente solúvel) com parâmetros de dissolução $f_r = 0,1$, $s_r = 100 \text{ d}^{-1}$ e $s_s = 0,005 \text{ d}^{-1}$. Os resultados experimentais obtidos diferem dos valores adotados pela ICRP sugerindo que o comportamento da cinética de dissolução do U no DUA é diferente do recomendado internacionalmente. Os dados disponíveis na literatura para este composto apresentam valores que variam entre 0,71 a 0,85 para o f_r ; 0,61 a 0,78 d^{-1} para s_r e 0,019 a 0,005 d^{-1} para o s_s . (Hodgson et al, 2002; Ansoborlo et al, 2002; Stradling et al, 2002).

Os valores dos parâmetros de solubilidade para o TCAU foram $f_r = 0,65$; $s_r = 0,70 \text{ d}^{-1}$ e $s_s = 0,00089 \text{ d}^{-1}$. Assim como no caso do DUA, o TCAU apresentou valores distintos dos recomendados internacionalmente. Na literatura não foram encontrados dados sobre a solubilidade do urânio na forma de TCAU.

Os valores dos parâmetros para UO_2 foram $f_r = 0,19$; $s_r = 0,47 \text{ d}^{-1}$ e $s_s = 0,0019 \text{ d}^{-1}$, enquanto que os valores internacionais recomendados pela ICRP 66, que o classifica como um composto do tipo S, são de $f_r = 0,001$; $s_r = 100 \text{ d}^{-1}$ e $s_s = 0,0001 \text{ d}^{-1}$.

Comparando os valores de dissolução dos três compostos estimados neste estudo observa-se que o UO_2 apresentou a menor solubilidade. Os dados disponíveis na literatura de solubilidade de urânio na forma de UO_2 com pureza nuclear variam entre 0,01 a 0,02 para o f_r , 0,9 a 1,13 d^{-1} para s_r e $2,6 \times 10^{-4}$ a $8,6 \times 10^{-4} \text{ d}^{-1}$ para o s_s . (Ansoborlo et al, 2002; Stradling et al, 2002).

Estudos realizados sobre a solubilidade dos compostos de urânio mostram o comportamento biocinético representado por estes parâmetros de

dissolução são independentes da razão isotópica do radionuclídeo presente no composto (Hodgson et al, 2000; Hodgson et al 2001; Ansoborlo 2002). Deste modo, os resultados obtidos com os compostos de urânio (^{238}U) neste estudo também se aplicam aos compostos de urânio enriquecido.

Na tab. (11) são apresentados os parâmetros de solubilidade determinados por diferentes grupos de pesquisadores e os parâmetros obtidos neste estudo (Lima, 2008).

Tabela 11 parâmetros de solubilidade obtidos por diferentes autores.

Composto	Parâmetros de absorção			Referência
	f_r	s_r (d^{-1})	s_s (d^{-1})	
DUA	0,83	0,51	0,0075	Lima, 2008
DUA	0,65	0,53	0,0135	Kalkwarf, 1983
DUA	0,86	1,19	0,049	Mansur, 1988
DUA	0,71	0,61	0,0019	Ansoborlo, 1998
TCAU	0,65	0,70	0,00089	Lima, 2008
UO ₂	0,19	0,47	0,0019	Lima, 2008
UO ₂	0,024	1,26	0,0006	Chazel, 2000.
UO ₂ Impuro	0,19	0,47	0,0044	Ansoborlo et al 2001
UO ₂ impuro	0,23	0,94	0,0073	Ansoborlo et al 2001
UO ₂	0,15	0,0064	0,00023	Metzer, 2004
UO ₂ (UK)	0,01	0,95	0,00061	Hodgson et al 2000
Referência (ICRP 1994) para U natural				
Tipo F	1,00	100	-	ICRP 66, 1994
Tipo M	0,1	100	5×10^{-3}	ICRP 66, 1994
Tipo S	0,001	100	1×10^{-4}	ICRP 66, 1994

Os valores apresentados na tabela apresentam grande variação entre si, contudo nenhum grupo de valor converge para os valores recomendado como referencia internacional. No entanto, é observada uma tendência de convergência entre os valores disponíveis na literatura e os valores experimentais determinados neste trabalho.

7.1. Curvas do percentual de urânio não dissolvido comparando com dados da literatura

Os parâmetros experimentais disponíveis na literatura determinados em experimentos *in vitro*, usando solução de Gamble como LPS foram usados para estimar a concentração de urânio não-dissolvido em uma base temporal variando de 10 minutos a 400 dias. Estas curvas foram comparadas a curva obtida usando os parâmetros experimentais deste estudo.

Na fig (43) são apresentadas as curvas que representam o percentual de urânio não dissolvido utilizando os determinados parâmetros de solubilidade (f_r , s_r e s_s) deste estudo e os disponíveis na literatura (Mansur, 1988; Kalkwarf, 1983; Ansoborlo, 1998).

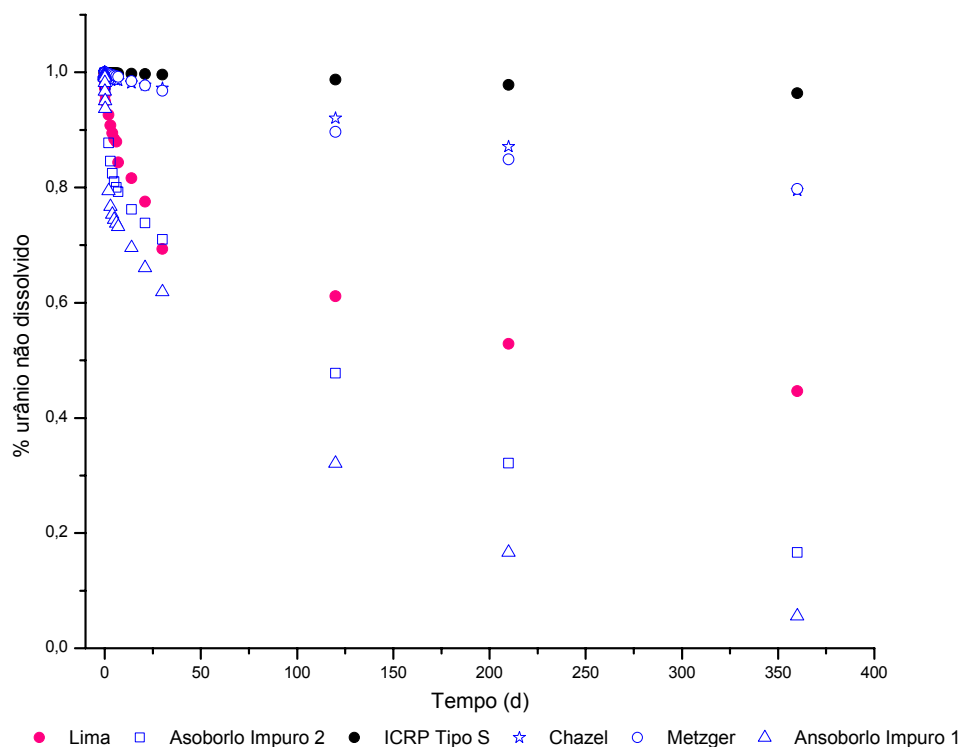


Figura 42 Percentual de urânio não dissolvido no DUA usando os valores de parâmetros de solubilidade determinados neste estudo, disponíveis na literatura e os recomendados pela ICRP para o composto tipo M.

A curva que representa o percentual de urânio não dissolvido ajustada com os parâmetros determinados neste estudo indicam que os parâmetros de solubilidade (f_r , s_r e s_s) para o DUA, processado no Brasil, estão compatíveis com os valores obtidos por outros grupos de pesquisadores. No entanto todas as curvas obtidas apresentam comportamento diferente da curva ajustada aos parâmetros da ICRP recomendado para esse tipo de composto (Tipo M).

A análise das curvas mostra que o uso dos parâmetros recomendados pela ICRP superestima a fração não solubilizada, deste modo, superestimando a dose para o indivíduo exposto a este tipo de composto.

Este estudo propõe como parâmetros de solubilidade para o DUA: 0,83, 0,51 d^{-1} e 0,0075 d^{-1} para f_r , s_r e s_s respectivamente.

Na figura (43) é apresentada a curva do percentual de urânio não dissolvido para o TCAU obtidos experimentalmente neste estudo e o valor recomendado pela ICRP para um composto tipo M (moderadamente solúvel).

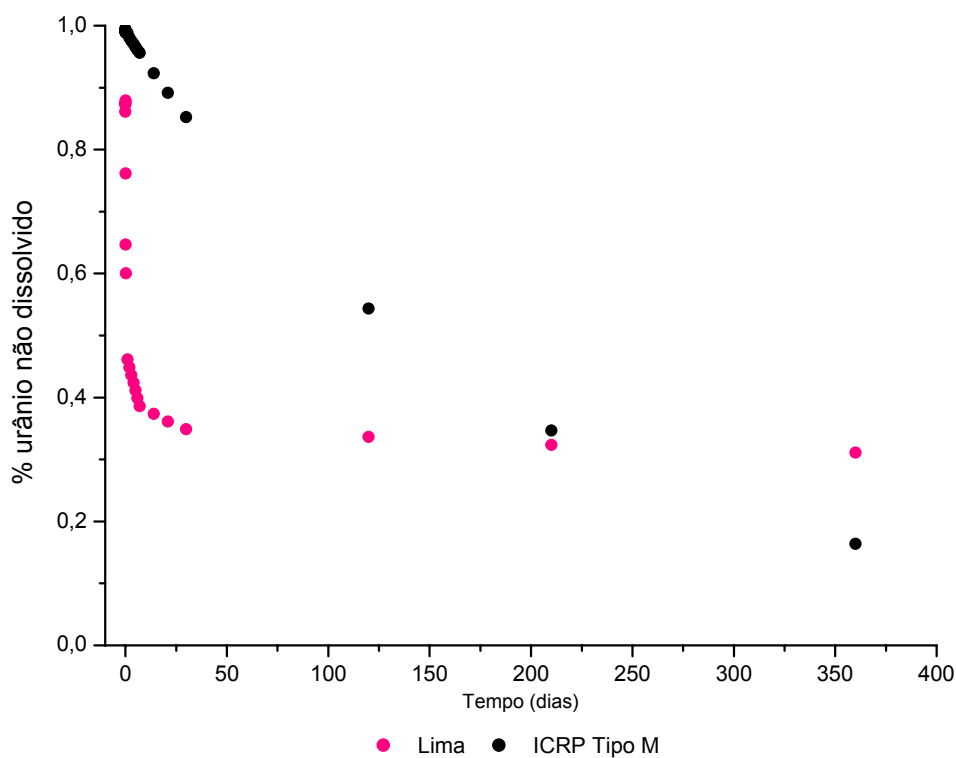


Figura 43 Percentual de urânio não dissolvido no TCAU usando os valores de parâmetros de solubilidade determinados neste estudo, disponíveis na literatura e os recomendados pela ICRP para o composto tipo M.

Para o composto TCAU não foram encontrados dados disponíveis na literatura para parâmetros de solubilidade.

No entanto, os estudos sobre exposição de trabalhadores nas etapas de filtração do TCAU e redução do urânio para a formação do pó de UO_2 mostrou que os trabalhadores incorporam urânio e que a inalação de partículas é uma das principais vias de incorporação. (Castro, 2005; Santos, 2006).

A curva que representa o percentual de urânio não dissolvido para o UO_2 , usando os parâmetros determinados por diferentes grupos de pesquisadores são apresentados na figura (44).

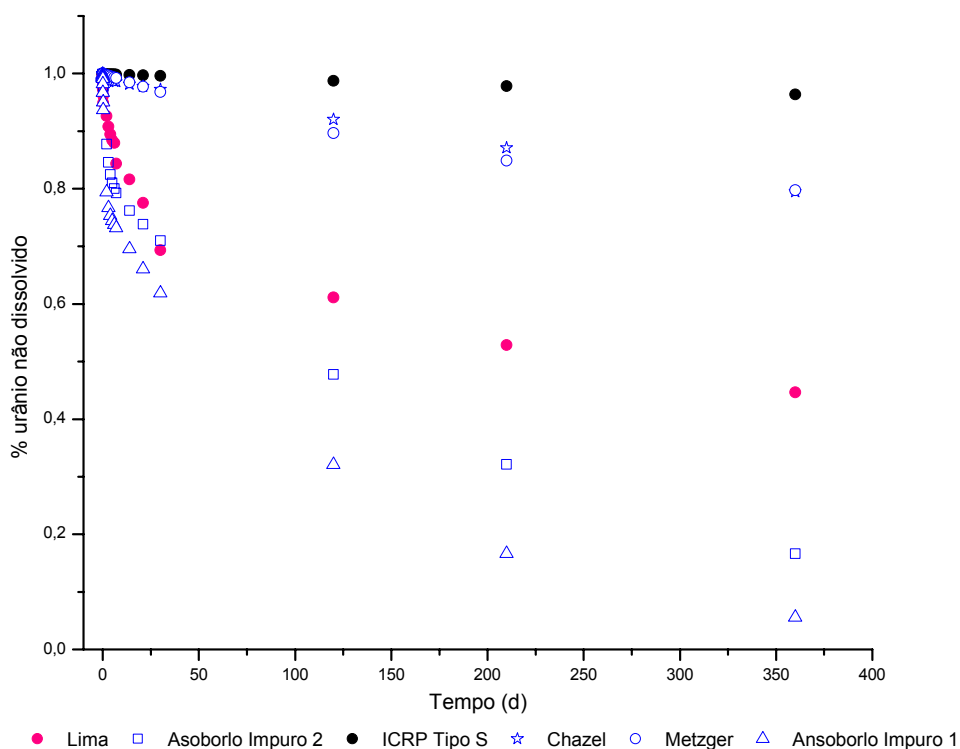


Figura 44 Percentual de urânio não dissolvido no UO_2 usando os valores de parâmetros de solubilidade determinados neste estudo, disponíveis na literatura e os recomendados pela ICRP para o composto tipo S.

O resultado da comparação da curva obtida com os parâmetros deste estudo com as demais obtidas com os parâmetros disponíveis na literatura indicam que os parâmetros de solubilidade (f_r , s_r e s_s) para o UO_2 processado no Brasil estão compatíveis com os valores obtidos por outros grupos de pesquisa, quando o composto é impuro. Neste estudo, foi usado um composto de urânio

com traços de impurezas. A análise das curvas mostra que tanto os valores disponíveis na literatura com os parâmetros recomendados pela ICRP indicam que este composto de urânio é insolúvel.

Este estudo propõe como parâmetros de solubilidade para o urânio na forma de UO_2 : 0,19, 0,47 d^{-1} e 0,0019 d^{-1} para f_r , s_r e s_s respectivamente.

7.2. Simulação da excreção urinária diária após a incorporação

Os parâmetros de dissolução determinados para os compostos de DUA, TCAU e UO_2 e os disponíveis na literatura foram usados para simular a excreção urinária diária em indivíduos supostamente expostos a partículas contendo urânio.

Em todas as simulações, foi utilizado o programa computacional *Activity and Internal Dose Estimates* – Versão 2 (AIDE-2), assumindo uma incorporação única (*single intake*) de 1 Bq e AMAD igual a $1\mu m$. Os parâmetros de dissolução utilizados para cada composto são apresentados na tabela 10.

Na figura (45) são apresentadas as curvas da excreção urinária diária estimada supondo a incorporação de 1 Bq, usando os parâmetros de solubilidade do DUA.

A excreção urinária diária foi simulada usando os parâmetros de dissolução determinados neste estudo e os parâmetros disponíveis na literatura e os recomendados pela ICRP. A ICRP classifica o DUA como um composto tipo M.

Estas curvas representam a concentração de urânio na excreção urinária diária em uma base temporal após a data da incorporação ($t=0$).

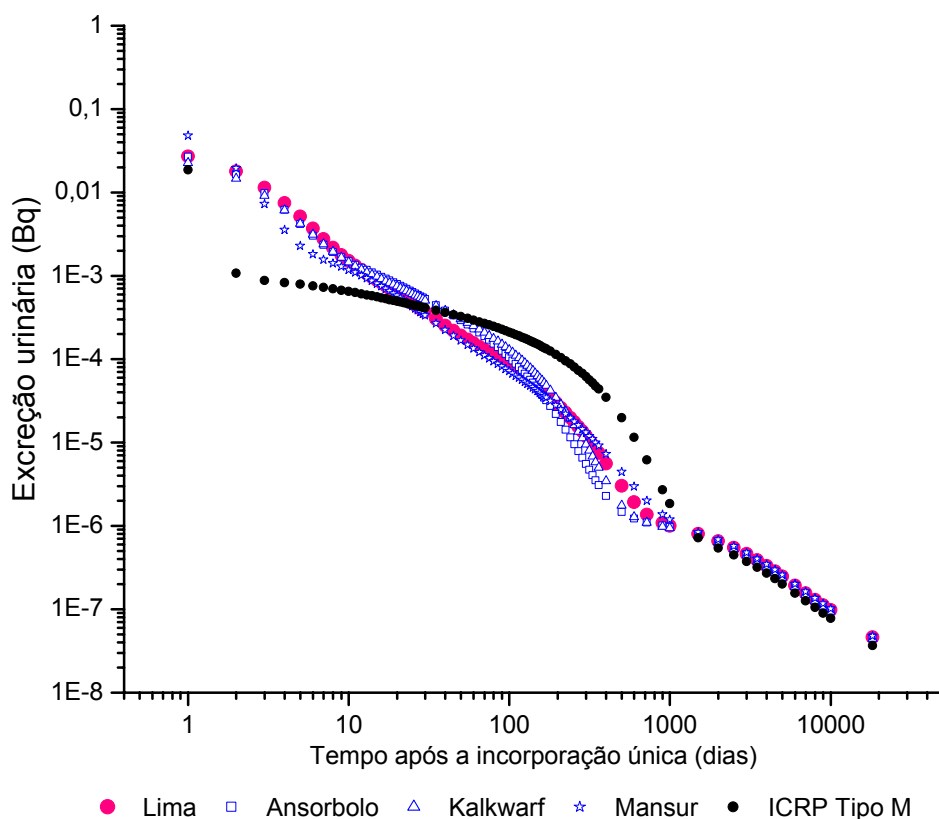


Figura 45 Curvas da excreção urinária diária supondo incorporação de 1Bq e os diferentes parâmetros de dissolução determinados para o DUA.

Nas primeiras 24 horas todos os valores de excreção urinária convergem para 0,04 Bq.

A variação da concentração na urina estimadas usando os parâmetros determinados nesse estudo em relação a concentração estimadas usando os parâmetros da literatura (exceto os parâmetros da ICRP) foi menor que 10%.

Até 20 dias após a incorporação, a excreção urinária diária obtida usando os parâmetros da ICRP são inferiores a excreção estimada usando os parâmetros disponíveis na literatura e os parâmetros determinados neste estudo. Indicando que os parâmetros internacionais não representam o comportamento observado experimentalmente.

Após este período inicial, estes parâmetros superestimam a concentração.

A análise das curvas de excreção urinária diária mostra que os fatores de solubilidade para o DUA apresentados neste estudo (Lima, 2008) estão compatíveis com os resultados de excreção diária disponíveis na literatura.

Para o TCAU não existem dados disponíveis na literatura. As curvas de excreção urinária usando parâmetros determinados neste estudo e os recomendados pela ICRP foram determinadas.

Na figura (46) são apresentadas as curvas que representam a excreção urinária diária após uma incorporação única de 1 Bq.

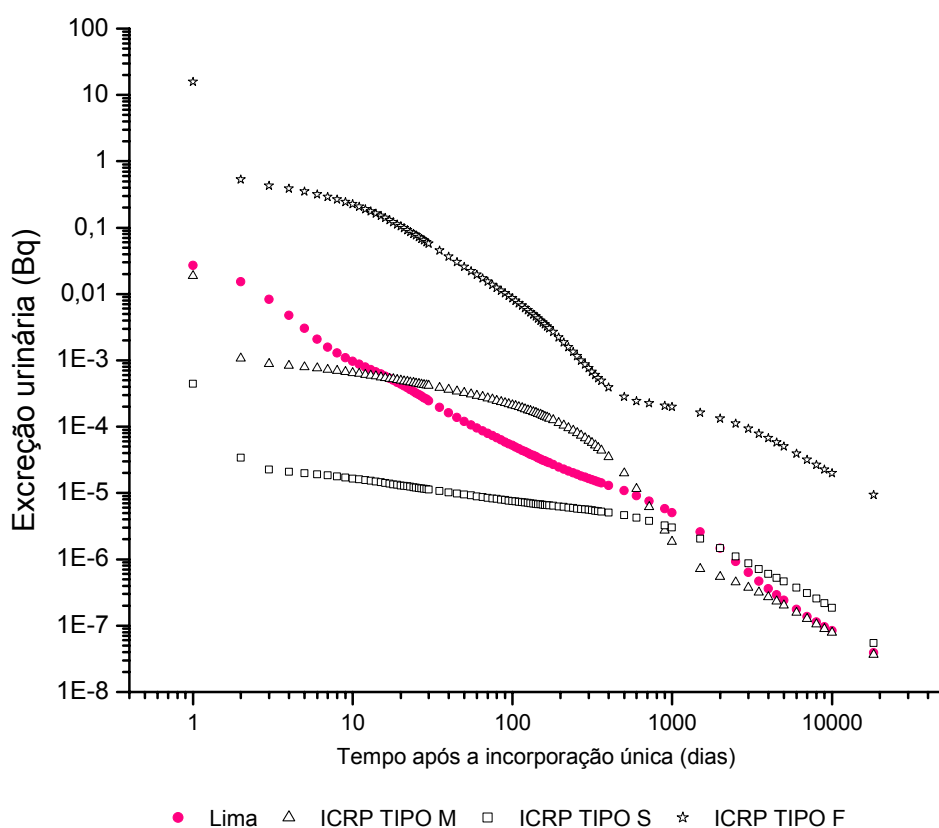


Figura 46 Curvas da excreção urinária diária supondo incorporação de 1Bq e os diferentes parâmetros de dissolução determinados para o TCAU.

A curva obtida com os parâmetros recomendados pela ICRP, que classifica esse composto como tipo M. Após o período inicial, o uso destes parâmetros superestimam a concentração e após 1000 dias todos os valores tendem a convergir.

A análise das curvas indica que os parâmetros recomendados pela ICRP não representam o comportamento observado experimentalmente para compostos de TCAU.

Na figura (47) são apresentadas as curvas que representam as excreções urinárias diárias estimadas para UO_2 , utilizando os parâmetros de dissolução apresentados na tabela (10), com uma incorporação única de 1 Bq e AMAD de $1\mu m$.

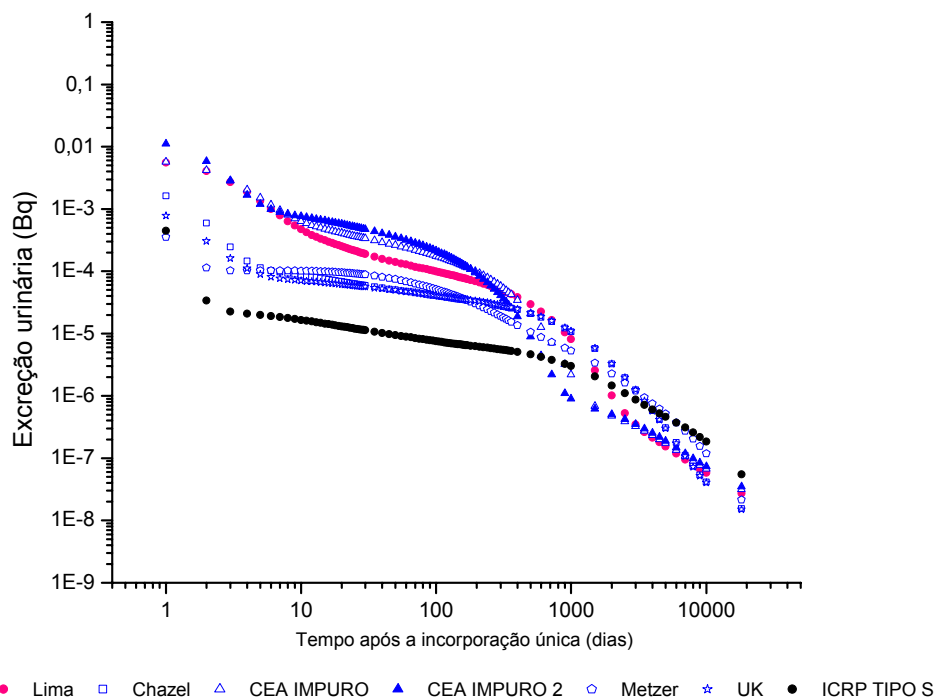


Figura 47 Curvas da excreção urinária diária supondo incorporação de 1Bq e os diferentes parâmetros de dissolução determinados para o UO_2 .

A análise deste conjunto de curvas mostra a influência da pureza do composto na solubilidade e conseqüentemente na concentração da urina. As curvas ajustadas usando os parâmetros de dissolução obtidos com os compostos puros apresentam um comportamento diferente das curvas obtidas com os parâmetros de dissolução para os compostos impuros.

As curvas obtida com os parâmetros neste estudo são semelhantes ao grupo de curvas dos compostos impuros. As variações observadas neste grupo de curvas pode ser atribuída a variação na composição das impurezas.

Os resultados obtidos usando os parâmetros de dissolução adotados pela ICRP subestimam a excreção urinária diária quando comparada aos valores

obtidos nesse estudo e na literatura. Os valores convergem após aproximadamente 1 ano.

Os fatores de solubilidade para o UO_2 apresentados neste estudo (Lima, 2008) estão compatíveis com os resultados de excreção diária encontrados na literatura para compostos impuros.

7.3. Excreção urinária trabalhadores FCN-Resende

As amostras de aerossóis foram coletados usando um IC que foi localizado alternadamente junto ao filtro do TCAU e ao forno do leito fluidizado.

Os resultados da concentração de urânio na fração respirável indica que os trabalhadores desta etapa do processo estão expostos a uma concentração média de $5,85 \times 10^{-4} \mu\text{g}/\text{m}^3$ que corresponde a $64 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Considerando que este trabalhador permanece na área de trabalho durante 8 h o volume de ar inalado neste período é $9,6 \text{ m}^3$, considerando o trabalhador sob condição de trabalho sem esforço e com a taxa de respiração do homem padrão (ICRP 66, 1994). A concentração de urânio nas amostras de urina fornecidas pelos trabalhadores foram $4,86 \times 10^{-10} \text{ g}/\text{L}$ ($6,0 \times 10^{-6} \text{ Bq}/\text{L}$) e $7,82 \times 10^{-10} \text{ g}/\text{L}$ ($9,7 \times 10^{-6} \text{ Bq}/\text{L}$).

O código computacional *Activity and Internal Dose Estimates* – Versão 2 (AIDE-2) foi usado para estimar a concentração de urânio esperada na urina de cada trabalhador usando os parâmetros de solubilidade para o TCAU determinados neste estudo. O código também foi usado para simular a situação de exposição usando os parâmetros recomendados pela ICRP 66. Em ambas as situações foi considerada a condição de incorporação como contínua, a atividade incorporada foi determinada considerando a concentração de urânio na fração respirável determinada nas amostras coletadas usando o amostrador de IC, que o trabalhador permanece na área durante 8 h e o AMAD igual a $1 \mu\text{m}$.

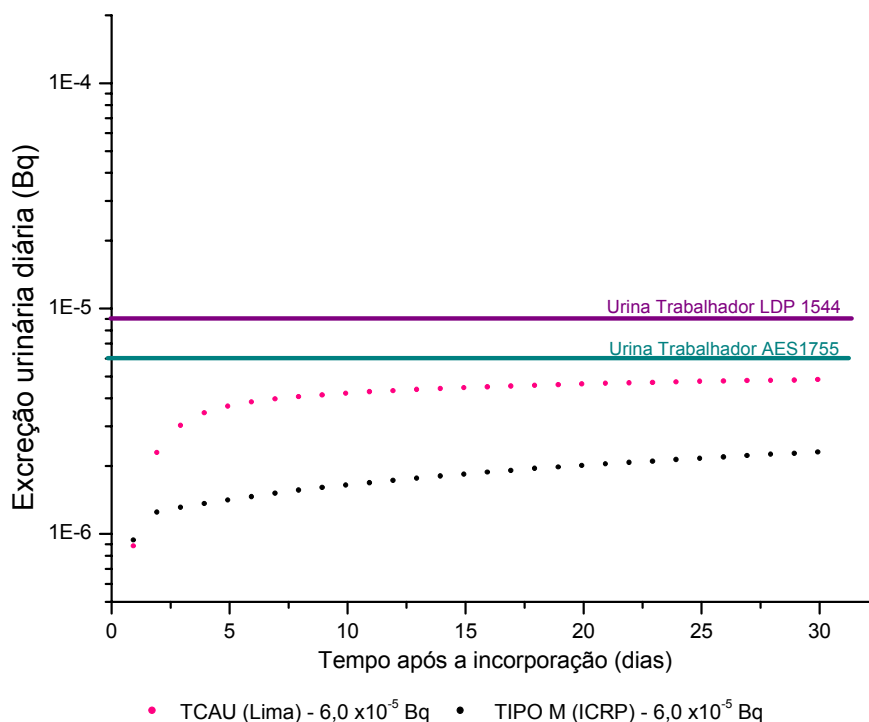


Figura 48 Curvas da concentração de urânio na urina considerando incorporação contínua de 60 μ Bq e os parâmetros de incorporação específicos da FCN.

A razão observada na concentração de urânio nas amostras de urina dos trabalhadores foi cerca de 0,6. Esta variação é devido a características fisiológicas de cada indivíduo e a rotina de trabalho que nunca são idênticas. Contudo ambas as concentrações estão na mesma ordem de grandeza.

Os resultados da simulação com os parâmetros de dissolução determinados neste estudo para o TCAU são $f_r = 0,65$, $s_r = 0,70 \text{ d}^{-1}$ e $s_s = 0,00089 \text{ d}^{-1}$, possibilitaram uma melhor estimativa da concentração esperada quando comparado os parâmetros recomendados pela ICRP.

A razão entre valores das concentrações de urânio nas amostras de urina dos trabalhadores e os estimados com os parâmetros da ICRP e os determinados neste estudo foram 2,6 e 3,4 (ICRP) e 1,3 e 1,6 (Lima, 2008).

Estes resultados demonstram a necessidade de determinar parâmetros específicos para cada instalação e etapa do processo e que o conhecimento específico das condições de exposição dos trabalhadores, como a especiação química do composto e a concentração incorporada são informações importantes para o cálculo de dose devido a incorporação de partículas contendo urânio.