

# Relatório Final



*Estudo dos métodos de observação de traços para determinação da atividade alfa de radônio-222 e filhos em ambientes de convívio humano.*



**UNICAMP**

Aluno: Guilherme Orelli Paiva 043856  
Orientador: Pedro José lunes

**Campinas, 15 de Junho de 2010.**

## **RESUMO**

Descoberto por Owens e Ernest Rutherford em 1899, o radônio (Rn-222) é um elemento químico radioativo, enquadrado na família dos gases nobres. É produto do decaimento radioativo do urânio-238 e difunde-se em ambientes de convívio humano através de materiais de construção, solos, água, podendo continuar seu processo de decaimento com emissão de partículas alfa, beta e gama, originadas dos chamados filhos do radônio. Este relatório trata por objetivo fazer uma revisão bibliográfica acerca dos métodos de observação dos traços de partículas alfa para a determinação da atividade alfa de radônio-222 e filhos em ambientes de convívio humano.

### **1. Introdução**

Durante os dois primeiros meses, o trabalho baseou-se na revisão bibliográfica sobre o tema, destacando a leitura dos artigos e palestras do Grupo de Cronologia da Universidade de Campinas. Na primeira etapa da pesquisa foi abordado o contexto histórico e o funcionamento dos principais tipos de detectores e também foram apresentadas as principais referências consultadas. Já na segunda etapa, estudou-se o procedimento de ataque químico, necessário para tratar os traços recolhidos após a exposição dos detectores.

### **2. Resultados obtidos**

#### **2.1 Histórico e características gerais**

Descoberto por Owens e Ernest Rutherford em 1899, o radônio (Rn-222) é um elemento químico radioativo, enquadrado na família dos gases nobres. É produto do decaimento radioativo do urânio-238 e difunde-se em ambientes de convívio humano através de materiais de construção, solos, água, podendo continuar seu processo de decaimento com emissão de partículas alfa, beta e gama, originadas dele próprio e dos chamados filhos do radônio.

Desde o século XVI, certo adoecimento de trabalhadores de minas tem sido observado e somente depois de algum tempo foi diagnosticado como câncer de pulmão. Por volta de 1950 finalmente houve o reconhecimento de que as altas taxas de câncer em mineiros estavam relacionadas à exposição aos

produtos de decaimento do radônio. A partir de então, uma preocupação crescente se estabeleceu com as doses, tanto ocupacionais como em residências, deste tipo de radiação a que as pessoas estão sujeitas

A contaminação ambiental por radônio e filhos tem sido bastante estudada em todo o mundo desde a década de 1980. Uma forte motivação para isso decorreu de estimativas feitas a partir da incidência de câncer nas vias respiratórias de mineiros, que sugeriam que da ordem de 10,000 casos de câncer das vias respiratórias por ano, nos Estados Unidos, seriam decorrência da dose tomada pela população em residências e locais de trabalho (Cohen, 1980). Outra forte motivação foram os dados da UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects on the Atomic Radiation) de 1988, que mostram que aproximadamente 70% da dose que o homem recebe, oriunda de radionuclídeos internamente depositados por ingestão e inalação, é devido ao  $^{222}\text{Rn}$  e seus filhos (UNSCEAR, 1988). O conhecimento destes fatos ocasionou, nas duas últimas décadas, um grande interesse da população, de pesquisadores e de autoridades de vários países com relação a este tipo de radiação ambiental, que está presente em ambientes de convívio humano. No entanto, a existência de uma correlação entre radônio e câncer não foi ainda comprovada.

As técnicas mais largamente utilizadas, para a medição da contaminação ambiental por radônio e filhos, a do carvão ativado (Cohen e Cohen, 1983) e as que utilizam plásticos detectores de traços de partículas alfa (Tommasino et al., 1986; Abu-Jarad, 1988), têm uma limitação em comum: funcionam com base na detecção apenas do radônio ambiental, o qual, por ser um gás nobre, não fica retido durante o processo de respiração e, conseqüentemente, não causa danos de radiação. A periculosidade potencial desta contaminação reside nos filhos do radônio-222 (Po-218, Pb-214, Bi-214 e Po-214), que devido às suas propriedades químicas, ficam retidos nas vias respiratórias.

Os plásticos detectores de traços de partículas alfa mais utilizados na medição da contaminação ambiental por radônio e filhos são o CR-39 e o LR-115. Tais detectores foram abordados neste relatório.

O *Grupo de Cronologia do IFGW/UNICAMP* desenvolveu uma técnica onde é possível a determinação da atividade alfa de  $^{222}\text{Rn}$  e filhos (Hadler e

Paulo, 1994). Esta técnica foi empregada em medidas de campo em Campinas-SP e Poços de Caldas-SP, que foram realizadas com apoio financeiro da FAPESP. O grupo também estuda a possível correlação entre câncer infantil e a atividade alfa dos filhos do  $^{222}\text{Rn}$ .

A metodologia desenvolvida pelo grupo se baseia em uma característica do detector plástico CR-39 que funciona como um espectrômetro alfa quando ela é aplicada. O detector plástico LR-115 não tem essa característica, porém, pode ser calibrado a partir do CR-39 para se efetuar a detecção de  $^{222}\text{Rn}$  e filhos em ambientes de convívio humano. O LR-115 tem a vantagem de minimizar os efeitos do *plate-out* dos filhos de  $^{222}\text{Rn}$  em sua superfície, ser de baixo custo e de fácil manipulação. Devido a facilidade de estabelecerem ligações com diversos outros átomos, os filhos do  $^{222}\text{Rn}$  ficam, na sua grande maioria, presos a aerossóis que acabam se depositando em superfícies materiais com as quais eventualmente colidem durante sua difusão. Tal processo na literatura recebe o nome de *plate-out*, o que gera uma depressão de suas concentrações, ou mais especificamente de suas atividades radioativas, nas proximidades dessas superfícies (Neman, 2000). O fato do LR-115 minimizar os efeitos do *plate-out* faz com que as medidas efetuadas com este detector necessitem apenas de densidade de traços e não de diâmetros e com isso sejam mais rápidas e precisas.

Atualmente, muitos grupos de pesquisa no mundo estão passando a utilizar o LR-115 em detrimento do CR-39. Isso fez com que várias empresas que fabricavam o CR-39 deixassem de produzi-lo, o que dificulta a sua compra e o deixa mais caro.

## **2.2 Sobre os detectores plásticos CR-39 e LR-115**

O CR-39 (Columbia Resin 39) é o detector plástico com maior eficiência de detecção. Ele é sensível a partículas alfa com energias da ordem de keV até dezenas de MeV e permite, além da obtenção da atividade alfa, medidas de energia e ângulos de incidência das partículas. Ele é também o detector plástico que apresenta melhor resistência contra danos causados por condições ambientais. Comercialmente o CR-39 se apresenta como um plástico rígido e opticamente transparente.



Figura 1: Montagem utilizada para detector CR-39, usado como espectrômetro alfa. O CR-39 é só o plástico transparente indicado pela seta.

Considerando-se as meias vidas no caso da contaminação do ar ambiental por  $^{222}\text{Rn}$  e filhos, é possível se demonstrar que as emissões alfa que ocorrem no ar, próximas à superfície de um CR-39, são devido ao  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$  e  $^{214}\text{Po}$ . É possível utilizar este detector como um espectrômetro alfa caso sejam considerados apenas os traços com excentricidade (quociente entre os diâmetros maior e menor) menor que 1.10 e condições de ataque químico padrão (solução 6,25 N de NaOH, 70 °C, 400 minutos) (Hadler e Paulo, 1994).

Ao considerar apenas os traços com excentricidade menor ou igual a 1.10, torna-se possível distingui-los de forma mais adequada em 3 tipos: i) traços claros formados devido a emissões alfa no ar a uma grande distância do detector; ii) traços devido a emissões alfa no ar a uma distância intermediária do detector e iii) traços escuros formados devido a emissões alfa muito próximas ao detector e emissões alfa de radionuclídeos depositados sobre o detector, ou seja, traços de plate-out (estes dois são muito semelhantes).

Na figura 2 está representada a relação entre a energia de incidência e o tamanho dos traços gerados. Energias grandes geram traços menores e vice-versa (traços tipo iii são menores que tipo ii).

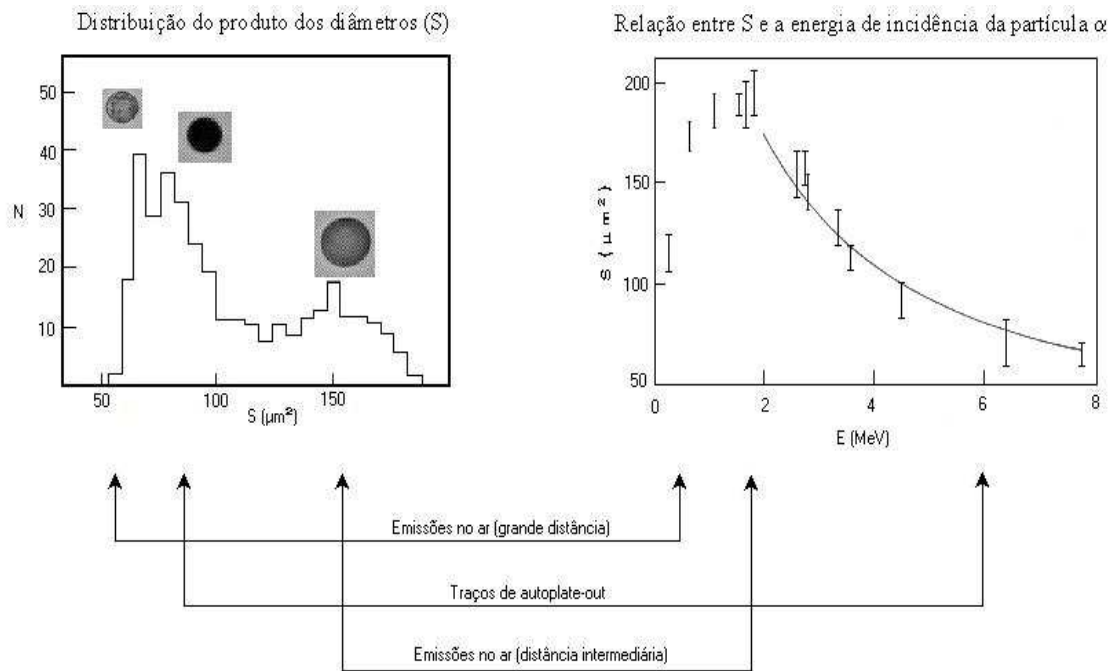


Figura 2: Relação entre a distribuição do tamanho dos traços no detector externo e as energias de incidência das alfa geradoras. (Hadler e Paulo, 1994).

Na figura 2 observa-se a distribuição de S com 2 picos, sendo a separação entre eles próxima de  $S = 120 \mu\text{m}^2$ . Desta forma, os traços do tipo (ii) que estão no segundo pico são facilmente separados dos (i) e (iii) presentes no primeiro pico.

Para se discriminar os dois tipos de traços do primeiro pico, claros (correspondendo ao tipo iii acima) e escuros (correspondendo ao tipo i acima), utiliza-se o fato de que traços mais escuros correspondem a uma alta energia de incidência da partícula alfa, ao passo que traços mais claros correspondem a energia de incidência mais baixa. Com isso os traços do primeiro pico são separados tomando-se o nível de cinza dos mesmos, pois traços claros têm nível de cinza menor que os traços escuros (Hadler e Paulo, 1994).

Uma vez separados os três tipos de traços presentes no detector externo, a concentração alfa total no ar,  $A_T$ , é dada por (Hadler e Paulo, 1994):

$$A_T = \frac{\rho_{i,ii}}{eg.t_e} \quad (1)$$

onde  $t_e$  é o tempo de exposição em anos e  $\rho_{i,ii}$  é a densidade de traços do tipo i e ii em  $\text{cm}^{-2}$ . A eficiência geométrica de detecção,  $eg$ , é calculada para um volume efetivo de ar diante do detector onde todas emissões que ocorrem dentro do mesmo e alcançam o detector, geram traços com excentricidade  $\leq 1.10$ . Numericamente  $eg = 0.160 \pm 0.016 \text{ cm}$  (Hadler e Paulo, 1994).

O LR-115 (Kodak-Pathé), figura 3, é um nitrato de celulose que se apresenta como um plástico bastante flexível e de cor avermelhada. Ele só possui sensibilidade para partículas alfa com energias entre aproximadamente 1 e 4 MeV. Isso diminui bastante a eficiência deste detector quando comparado ao CR-39, porém, o limite superior da sua faixa de sensibilidade o torna bastante conveniente para a detecção dos filhos do  $^{222}\text{Rn}$  quando são considerados os efeitos do plate-out. Isso porque as partículas alfa com energias maiores que 4 MeV, emitidas pelos filhos do  $^{222}\text{Rn}$  (todos os emissores alfa da cadeia do  $^{222}\text{Rn}$  possuem energias maiores que 5.4 MeV) depositados em sua superfície ou que estiverem em suas proximidades (distâncias menores que 2 cm) não são registradas.



Figura 3: LLR – 115, detector plástico bastante flexível e de cor avermelhada.

A densidade de traços no LR-115 devido a radônio e filhos em um ambiente de convívio humano pode ser escrita como:

$$\rho_{LR-115} = \varepsilon A_T \quad (2)$$

onde  $\varepsilon$  é um fator de eficiência de detecção com as características dos traços, o ângulo crítico de detecção e a energia de entrada das partículas alfa.

### **2.3 Ataque químico**

Tanto o CR-39 como o LR-115 precisam sofrer um ataque químico para revelar os traços de partículas alfa por eles detectado. Na literatura é apresentado um ataque químico padrão para cada um desses detectores, sendo que para o CR-39 o ataque químico mais utilizado é uma solução de NaOH a 6,25 N, 70 °C e 400 minutos, enquanto no LR-115 utiliza uma solução 2,5 N de NaOH, 60 °C e 110 minutos. Contudo, há trabalhos que estudam a influência do tempo do ataque químico e da temperatura do processo.

Um primeiro teste com o *ataque padrão* de detectores LR-115 presentes no Grupo de Cronologia do IFGW [lotes I e II fabricados em 1987] fez com que esses se soltassem do substrato, isto é, se dissolvessem. Isso motivou alguns experimentos para determinar outros parâmetros de ataque químico para o LR-115 tal que revelasse os traços sem danificar o detector. Um primeiro experimento foi a exposição de detectores LR-115 dos lotes I, II, III e IV em areia monazítica, de forma que o detector estivesse voltado para a areia. Embora a série de decaimento alfa seja a série do tório, a energia das partículas são suficientes para gerar traços. Em um dos detectores foi feito um ataque químico com solução de NaOH 6,25 N a 23 °C. Inicialmente foi feito um ataque químico de 6 horas e verificado a densidade de traços. Depois foi feito um ataque de mais 3 horas, totalizando 9 horas e verificando a densidade de traços. Isso se repetiu totalizando 12, 14, 16 18 e 20 horas de ataque químico, sempre verificando a densidade de traços de forma a otimizar o tempo de ataque químico.

Novos testes estão sendo realizados para definir o ataque a ser utilizado sem que haja riscos em danificar os detectores que foram expostos nos ambientes e convívio humano.

Após a exposição e ataque químico, os detectores são analisados em um sistema de microscopia automatizada, acoplado a um monitor de vídeo e uma câmera digitalizadora. Com um aumento de 63x, todas as imagens contendo traços são digitalizadas em arquivos bitmap (bmp) e posteriormente armazenadas em CD's. (Neman, 2000)

### **2.4 Condições ambientais e concentração de radônio e filhos**



Alguns fatores ambientais influenciam na concentração de radônio e filhos em ambientes de convívio humano. São eles: ventilação, umidade, gradiente de temperatura, presença de aerossóis (composição atmosférica local), presença de campos eletrostáticos. É certo que a ventilação seja o mais relevante deles.

O resultado verificado na cidade de São Paulo é menor que a média mundial, é aproximadamente 1/3 da concentração média encontrada na Europa e, é comparável a outros valores na América do Sul. Foi feita uma análise das concentrações [de radônio] obtidas de acordo com as características das residências e posição geográfica na cidade. Os resultados apontam que locais com maior ventilação, mais afastadas do solo e com piso de carpete ou madeira apresentam menores níveis de contaminação ambiental. Por outro lado, menor taxa de ventilação, localização em andares térreos e pisos de cimento ou cerâmica contribuem para o aumento das concentrações. Houve pequena variação das concentrações com relação à posição geográfica na cidade, sendo que as maiores concentrações foram encontradas no extremo sul da cidade nos distritos de Parelheiros e Grajaú. Não foi encontrada correlação entre a concentração total de emissores alfa e a taxa de dose gama. A média geométrica da concentração de filhos de radônio no ar resultou em 77 Bq.m<sup>-3</sup>. O valor encontrado para a contribuição dos filhos de radônio na concentração total de emissores alfa é muito significativo, aproximadamente 70% do total, maior que o verificado em estudo similar. Também não foi encontrada forte correlação entre a concentração de <sup>222</sup>Rn e a de filhos no ar, o que indica a necessidade da determinação das duas componentes para uma dosimetria mais adequada. (Silva, 2005)

Resultados indicam que a “fonte de radônio” vem do material ( tijolos e concreto são de longe o materiais mais importantes usados na construção de residências em Campinas) de revestimento das paredes, chão/solo e teto das habitações. Este resultado está de acordo com a literatura (Soroka and Molchanov, 1998; Durrani and Ilic, 1997) e uma imediata consequência é que a mitigação de radônio em ambientes fechado pode ser efetuada utilizando revestimento interno adequado. (Hadler et al. 2008)

A influência da adequação do revestimento interno é um problema que precisa ser entendido melhor. Não obstante, o fato de habitações sem revestimento mostrarem altas atividades indica que há eficiência do revestimento (pintura) interno para prevenir a exalação de radônio das paredes e teto. Há trabalhos na literatura mostrando alguns tipos de pinturas sendo usadas para reduzir a taxa de liberação de radônio dos materiais de construção. (Abu-Jarad, 1989).

A comparação dos resultados entre casas e apartamentos indica que o solo parece ser uma significativa fonte de radônio, mas não obstante, a principal fonte de radônio são os materiais de construção que envolvem o ambiente. (Hadler et al. 2008)

### **3. Conclusão**

Ventilação, umidade, gradiente de temperatura, presença de aerossóis (composição atmosférica local), presença de campos eletrostáticos são fatores ambientais que influenciam a concentração de radônio e filhos em ambientes de convívio humano. A periculosidade potencial desta contaminação reside nos filhos do radônio-222 (Po-218, Pb-214, Bi-214 e Po-214), que devido às suas propriedades químicas, ficam retidos nas vias respiratórias, podendo acarretar câncer.

O CR-39 e o LR-115 são os plásticos detectores de traços de partículas alfa mais utilizados na medição da concentração ambiental por radônio e filhos. Ambos precisam sofrer um ataque químico para revelar os traços de partículas alfa por eles detectado (existem ataques padrões para cada tipo de detector).

#### **Comentários do Orientador**

“Relatório aprovado.”

#### **BIBLIOGRAFIA**

Abu-Jarad F.A. (1988). Application of nuclear track detectors for radon related measurements. *Nucl. Tracks Rad. Meas.*, 15, 525-534.

Abu-Jarad, F., 1989. Radon measurements inside houses using nuclear track etch detectors. In: Proceedings of the International Workshop on Radon

Monitoring in Radioprotection, Environmental Radioactivity and Earth Sciences, ICTP, Trieste, Italy, April 3–14. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., Singapore, pp. 445–456.

Alexander FE, Mckinney PA and Cartwright RA, 1990. Radon and leukaemia. *The Lancet*, 335: 1336-7.

Butland BK, Muirhead CR and Draper GJ, 1990. Radon and leukaemia. *The Lancet*, 335: 1338-1339.

Cohen BL, 1993. Relationship between exposure to radon and various types of cancer. *Health Physics*, 65: 529-531.

Durrani, S.A., Ilic, R., 1997. Radon Measurements by Etched Track Detectors: Applications in Radiation Protection, Earth Sciences and the Environment. World Scientific Publishing Co., London.

Hadler J.C. e S. R. Paulo (1994). Indoor Radon Daughters Contamination Monitoring: the Absolute Efficiency of CR-39 Taking into Account the Plate-out Effect and Environmental Conditions. *Radiation Protection Dosimetry*, 51, 283-296.

Hadler J.C., R.S. Neman, P.J. Nunes, O.L.S. Pereira and S.R. Paulo (2008). Indoor radon and radon daughters survey at Campinas-Brazil using CR-39: Final Results. *Radiation Measurements*, In Press, Available online 29 March 2008.

Henshaw DL, Eatough JP, Richardson RB, 1990. Radon: A causative factor in the induction of myeloid leukaemia and other cancers in adults and children? *The Lancet*, 335: 1008-1012.

Lucie NP, 1989. Radon exposure and leukemia. *The Lancet*, ii: 99-100.

Lucie NP, 1990. Radon and acute lymphoblastic leukemia. *Leukemia and Lymphoma*, 1: 213-216.

Muirhead CR, Butland BK, Green BMR and Draper GJ, 1992a. Childhood leukemia and natural radiation in Britain. *The Lancet*, 337: 503-504.

Neman R. S. (2000), *Medida da contaminação radioativa do ar ambiental por radônio-222 e filhos em residências de Campinas – SP, Brasil*. Disponível em <http://webbif.ifi.unicamp.br/tesesOnline/teses/IF1267.pdf>, acessado em 18/05/2010.

Pershagen G., Z.-H. Liang, Z. Hubrek, C. Svensson e J.D. Boyce Jr. (1992). Residential radon exposure and lung cancer in Swedish women. *Health Physics*, 63, 179-186.

Pershagen G., G. Akerblom, O. Axelson, B. Clavensjo, L. Damber, G. Desai, A. Enflo, F. Lagarde, H. Mellander, M. Svartengren and G.A. Swedjemark (1994). Residential Radon Exposure and Lung Cancer in Sweden. *New Eng. J. Med.*, 330, 159-164.

Pobel D and Viel JF, 1997. Case-control study of leukaemia among young people near La Hague nuclear reprocessing plant: the environmental hypothesis revisited. *British Medical Journal*, 314: 101-106.

Richardson S, Monfort C, Green M, Draper G and Muirhead C, 1995. Spatial variation of natural radiation and leukemia incidence in Great Britain. *Statistics in Medicine*, 14: 608-624.

Silva, A, 2005. Radônio e filhos em residências da cidade de São Paulo. Disponível em <http://www.teses.usp.br/teses/disponiveis/43/43134/tde-24042009-113144/>, acessado em 15/06/2010.

Soroka, Y., Molchanov, A., 1998. Radiation and radon survey of Akchatau (Kazakhstan) and experience with radon remedial measures. *Radiat. Protect. Dosim.* 78, 231–236.

Tommasino L., D.E. Cherouati, J.L. Seidel e M. Monin (1986). A plastic-bag sampler for passive radon monitoring. *Nucl. Tracks Rad. Meas.*, 12, 681-684.

UNSCEAR(1988). *Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation 1988*, Report to the General Assembly, United Nations, New York.

Viel J.F., 1993, Radon exposure and leukemia in childhood. *International Journal of Epidemiology*, 22: 627-631.