



COPPE/UFRJ

ESTUDO DOS NÍVEIS DE EMANAÇÃO DE ^{222}Rn PRESENTES NOS
MATERIAIS RADIOATIVOS DE OCORRÊNCIA NATURAL - NORM

Márcia Valéria de Fátima da Encarnação Sá Miranda

Dissertação de Mestrado apresentada ao Programa de Pós-graduação de Engenharia Nuclear, COPPE, da Universidade Federal do Rio de Janeiro, como parte dos requisitos necessários à obtenção do título de Mestre em Engenharia Nuclear.

Orientadora: Verginia Reis Crispim

Rio de Janeiro

Abril de 2009

ESTUDO DOS NÍVEIS DE EMANAÇÃO DE ^{222}Rn PRESENTES NOS
MATERIAIS RADIOATIVOS DE OCORRÊNCIA NATURAL - NORM

Márcia Valéria de Fátima da Encarnação Sá Miranda

DISSERTAÇÃO SUBMETIDA AO CORPO DOCENTE DO INSTITUTO ALBERTO
LUIZ COIMBRA DE PÓS-GRADUAÇÃO E PESQUISA DE ENGENHARIA
(COPPE) DA UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO COMO PARTE
DOS REQUISITOS NECESSÁRIOS PARA A OBTENÇÃO DO GRAU DE MESTRE
EM CIÊNCIAS EM ENGENHARIA NUCLEAR.

Aprovada por:

Prof^a. Verginia Reis Crispim, D.Sc.

Prof. Ademir Xavier da Silva, D.Sc.

Dr. Luís Eduardo Barreira Brandão, D.Sc.

RIO DE JANEIRO, RJ - BRASIL

ABRIL DE 2009

Miranda, Márcia Valéria de Fátima da Encarnação Sá

Estudo dos níveis de emissão de ^{222}Rn presente nos materiais radioativos de ocorrência natural - NORM/
Márcia Valéria de Fátima da Encarnação Sá Miranda. - Rio de Janeiro: UFRJ/COPPE, 2009.

IX, 53 p.: il; 29,7 cm.

Orientadora: Verginia Reis Crispim

Dissertação (mestrado) – UFRJ/ COPPE/ Programa de Engenharia Nuclear, 2009.

Referências Bibliográficas: p. 50 - 53

1. NORM. 2. TENORM. 3. Indústria de petróleo. 4. Radônio. 5. CR-39. I. Crispim, Verginia Reis. II. Universidade Federal do Rio de Janeiro, COPPE, Programa de Engenharia Nuclear. III. Título.

*“De boas palavras transborda o meu coração:
ao Rei consagro o que compus”
(Salmo 45:1)*

AGRADECIMENTOS

“Então Ele me disse:

A minha graça te basta, porque o poder se aperfeiçoa na fraqueza...”

(II Co 12:9)

“... quando sou fraco, então é que sou forte.”

(II Co 12:10)

É com muita alegria que agradeço, em primeiro lugar, a Deus por tudo que me tem proporcionado, pois é Ele quem opera o querer e o efetuar sobre todas as coisas.

À minha família: meu amado esposo, José Alfredo, meus filhos queridos, Davi José e Ana Elizabeth. Pela paciência e por terem suportado comigo esse período, em que precisei ficar ausente em tantas ocasiões.

Aos meus pais, Miguel e Lauricéa. Pelo apoio que sempre me deram, estando presentes em todos os momentos em que precisei enfrentar dificuldades.

À Professora Verginia Reis Crispim. Pela orientação deste trabalho e por todo ensinamento transmitido com competência e paciência.

Aos professores do Programa de Engenharia Nuclear COPPE/UFRJ, pelo conhecimento precioso que transmitiram.

Aos meus queridos colegas. Em especial, à Clara Tereza Lima e ao Luciano Fontes, por toda ajuda e sugestões dadas.

Aos funcionários do Programa: Tânia, Jô, Reginaldo, Washington, Liliane, Rachel e Suzana. Pela dedicação com que executam seus trabalhos.

Aos meus amigos. Em especial, ao querido casal Dr. Rogério e Dra. Joana Gomes, que tanto me incentivaram e lutaram ao meu lado nessa jornada. À Dra. Márcia Ferreira de Oliveira e à Ana Zélia Marques Pereira, pelo incansável apoio.

Ao Dr. Luís Brandão e ao Dr. Ricardo Candeiro. Pela preciosa ajuda.

Ao Dr. Horst Monke. Pelo precioso incentivo.

Ao Engenheiro Sandro Gonçalves Silva. Pela indispensável colaboração.

À Comissão Nacional de Energia Nuclear. Pelo apoio dado.

Resumo da Dissertação apresentada à COPPE/UFRJ como parte dos requisitos necessários para a obtenção do grau de Mestre em Ciências (M. Sc.)

ESTUDO DOS NÍVEIS DE EMANAÇÃO DE ^{222}Rn PRESENTES NOS
MATERIAIS RADIOATIVOS DE OCORRÊNCIA NATURAL - NORM

Márcia Valéria de Fátima da Encarnação Sá Miranda

Abril/2009

Orientadora: Verginia Reis Crispim

Programa: Engenharia Nuclear

A presença de materiais radioativos de ocorrência natural (NORM – Naturally Occurring Radioactive Material), que contaminam instalações de óleo e gás, é um fato freqüente na indústria de petróleo, podendo ser severas o suficiente para causar a exposição de trabalhadores em níveis elevados de radiação. Por isso, resíduos contaminados precisam ser segregados, sendo ainda um problema sem solução satisfatória. Atualmente, a opção mais prática e econômica para o descarte desse material é estocá-lo em áreas da própria instalação com acesso controlado. Certos equipamentos utilizados na indústria do petróleo contêm incrustações e lamas que podem estar associadas a níveis importantes de radioatividade. As incrustações são tipicamente uma mistura de minerais de carbonatos e sulfatos, como a barita (BaSO_4), que incorpora facilmente o ^{226}Ra e ^{228}Ra nas suas estruturas. Objetivou-se medir as emanações do radônio, presente nessas amostras de NORM, por meio de câmaras de difusão que continham um detector de traços nucleares (CR-39). As imagens dos traços das partículas α emanadas pelo ^{222}Rn registrados no CR-39 foram observadas num microscópio ótico Nikon E400 e capturadas por uma câmera digital Nikon Coolpix 995 e armazenadas num banco de dados, para posterior contagem dos traços pelo programa computacional, Image Pro plus. Sendo a taxa de emanação de ^{222}Rn proporcional ao número desses traços, a metodologia permitiu que se comparasse os níveis de contaminação das amostras analisadas.

Abstract of Dissertation presented to COPPE/UFRJ as a partial fulfillment of the requirements for the degree of Master of Science (M. Sc.)

STUDY OF THE EMANATION LEVELS OF ^{222}Rn PRESENT IN NATURALLY OCCURRING RADIOACTIVE MATERIALS - NORM

Márcia Valéria de Fátima da Encarnação Sá Miranda

Abril/2009

Advisor: Verginia Reis Crispim

Department: Nuclear Engineering

The presence of Naturally Occurring Radioactive Material (NORM), contaminating oil and gas facilities, is a common fact in the petroleum industry, and can be severe enough to expose the workers to elevated levels of radiation. Thus, contaminated residues need to be segregated but, this is still a problem without a satisfactory solution. Currently, the most practical and economic option for discarding this material is to stock it in areas of the facility whose access is controlled. Certain equipment used in the petroleum industry has scale and sludge that could be associated to important levels of radioactivity. Typically, the scale is a mixture of carbonate and sulphate minerals, such as barite (BaSO_4), that easily incorporates ^{226}Ra and ^{228}Ra in its structures. The objective of this work was to measure the emanations of the radon present in these NORM samples, via diffusion chambers containing a nuclear track detector (CR-39). The images of particle α tracks emanated by ^{222}Rn registered on CR-39 were observed with a Nikon E400 optic microscope and captured by a Nikon Coolpix digital camera and then stored in a database, to later count the tracks using the computational program, Image Pro plus. Being that the emanation rate of ^{222}Rn was proportional to the number of these tracks the methodology permitted the comparison of contamination levels of the analyzed samples.

SUMÁRIO

RESUMO

ABSTRACT

CAPÍTULO 1	Introdução	1
1.1.	Generalidades	1
1.2.	Revisão bibliográfica	4
1.3.	Objetivo	8
CAPÍTULO 2	Fundamentos Teóricos	9
2.1.	História da contaminação com NORM	9
2.2.	Rádio e Radônio	10
2.3.	Produtos do decaimento do Radônio	12
2.4.	Descarte de resíduos contendo NORM	13
2.4.1.	Opções para o gerenciamento/descarte de resíduos contendo NORM	14
2.5.	Detecção do Radônio usando SSNTD	16
2.6.	Detectores e processo de revelação com ataque químico	18
2.7.	Ataque químico	22
2.8.	Processamento e análise de imagens	24
CAPÍTULO 3	Metodologia	29
3.1.	Coleta de amostras	30
3.2.	Preparo das amostras e arranjo experimental	32
3.3.	Exposição ao Radônio	34
3.4.	Etapa da revelação com ataque químico	35
3.5.	Aquisição de dados	36
3.6.	Avaliação dos dados	37
3.7.	Validação da contagem de traços nucleares usando programa Image Pro Plus ...	41
CAPÍTULO 4	Resultados	43
4.1.	Cálculo da taxa de exposição ao Radônio	43
4.2.	Resultado das contagens de traços	43
CAPÍTULO 5	Conclusões e Sugestões	47

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	50
---	-----------

Capítulo 1

Introdução

1.1. Generalidades

As práticas industriais, de um modo geral, têm a si associada a geração de resíduos. Esses resíduos muitas das vezes são tóxicos e, por isso mesmo, têm que ser gerenciados de forma segura. A presença de materiais radioativos de ocorrência natural (NORM – Naturally Occurring Radioactive Material) que contaminam instalações de óleo e gás é um fato freqüente na indústria de petróleo. Observa-se que algumas dessas contaminações podem ser severas o suficiente para causar a exposição do pessoal de manutenção e outros trabalhadores, em níveis elevados de radiação. Por isso, resíduos contaminados precisam ser separados dos não contaminados, para que o volume contendo a presença de NORM seja o mais baixo possível, devendo ser compactado e estocado em uma área controlada e com baixa ocupação.

O descarte do material contaminado com NORM tem sido um grande problema ainda sem solução satisfatória. Atualmente, a opção mais prática e econômica para o descarte do material contendo NORM tem sido a de estocá-lo em área de propriedade da própria instalação, mantendo o acesso a essa área controlado. Entretanto, existem outras opções em desenvolvimento e avaliação. O alto custo da disposição de resíduos contendo NORM está abrindo novas linhas de pesquisa e desenvolvendo métodos e técnicas de redução dos volumes de resíduo contaminado.

A partir da década de 80, uma grande ênfase vem sendo dada à presença de radionuclídeos naturais em níveis de concentração aumentados em relação à concentração inicial, em função de práticas tecnológicas. A esses materiais, nos quais resíduos e rejeitos industriais se encontram, dá-se o nome de TENORM (Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Material). O termo é usado para englobar todas as formas de materiais onde a radioatividade ocorrendo naturalmente teve seus níveis de concentração aumentados devido a práticas humanas, implicando no aumento potencial de exposições à radiação, se comparadas com o estado inalterado do bem. Então, pode-se dizer que, de acordo com a origem, esta contaminação recebe dois nomes: NORM e TENORM ou, ainda, TENR

(Technologically Enhanced Natural Radiation), sendo que o último é usado apenas, quando resulta de um processo tecnológico. [W. Goldammer, 2005] Neste trabalho, por uma questão de homogeneidade, optou-se pelo termo NORM, por ele englobar de forma mais geral os materiais aqui tratados.

No caso do petróleo, seus derivados são usados numa diversidade de situações, tais como: geração de energia elétrica, transporte, lubrificantes, etc. Alguns equipamentos utilizados na indústria do petróleo contêm incrustações e lamas que podem estar associadas a níveis importantes de radioatividade, o mesmo se observando para a indústria do gás. As incrustações são tipicamente uma mistura de minerais de carbonatos e sulfatos, um dos principais sendo a barita (BaSO_4) que incorpora facilmente o ^{226}Ra e ^{228}Ra nas suas estruturas.

O American Petroleum Institute estima que mais de 140.000 tambores (aproximadamente 28.000 m^3) de NORM contendo resíduos com concentrações superiores a 3.300 Bq/kg são acumulados anualmente nos EUA. Estimativas no Mar do Norte dão conta de que 20 toneladas de incrustações são geradas anualmente por cada poço de petróleo em atividade. A tabela 1.1 apresenta concentração de NORM em resíduos da indústria do petróleo e do gás. [American Petroleum Institute, 1996]

Tabela 1.1
Concentrações de Atividade Representativas de NORM na indústria do Petróleo/Gás
[Seitz, 1996]

Material	Concentração de Atividade [Bq/kg]
Incrustações em tubos, dutos e outros equipamentos	^{226}Ra – 10^3 a 15×10^6
Lamas em equipamentos utilizados na produção	^{226}Ra 10^4 a 10^6
Lamas e filmes em equipamentos usados na indústria do gás	^{210}Pb $\sim 4 \times 10^4$
Lamas no solo abaixo de tanques de estocagem de águas de processo	^{226}Ra 10^4 a 4×10^4

Para o gerenciamento desses resíduos, algumas estratégias têm sido utilizadas mundo afora, tais como: encapsulamento, espalhamento em solos, espalhamento em solos, após diluição com outros materiais, enterro, aterro industrial, deposição em instalações licenciadas, utilização de minas abandonadas, injeção em poços, deposição em fraturas geológicas, uso de estruturas geológicas profundas. Se for verdade que o nível de segurança aumenta com a adoção de cada uma dessas ações, o custo para tal

também aumentará. Assim, um nível ótimo de proteção associado a um custo praticado razoável deve ser alcançado.

Durante o processamento numa planta de gasolina, os níveis de radiação externa proveniente do radônio no propano, a cerca de 30 cm da bomba de líquidos, pode chegar a 25 mR/h. Níveis de radiação acima de 6 mR/h têm sido detectados, nas superfícies externas dos tanques de estocagem de propano. As lamas nas plantas de gasolina encontram-se freqüentemente contaminadas com vários milhares de pCi/g de ^{210}Pb . Vasos e equipamentos dessas instalações podem apresentar contaminação significativa com NORM. A contaminação tende a ser maior em áreas de maior turbulência, tais como bombas e válvulas. [P.R. Gray, Peter Gray & Assocs., 1991]

Quando os trabalhadores abrem um equipamento ou um vaso, algumas precauções devem ser tomadas para prevenir contaminação. Recomenda-se que os procedimentos de manutenção incluam o uso de respiradores, pulverização úmida e boa higiene para prevenir a inalação de material radioativo e outros.

Outras instalações são suscetíveis à contaminação com NORM. Por exemplo, as oficinas de manutenção, onde são realizados os reparos e a limpeza dos equipamentos.

Quando a planta estiver fora de serviço e quando suas utilidades forem desmanteladas ou vendidas, particularmente, as de processamento de etano e propano, qualquer equipamento com superfície interna contendo depósito com a presença de NORM deve receber especial consideração. Em muitos casos, a análise para ^{210}Pb deve ser requerida, a fim de se determinar se há contaminação e se é necessário o uso de técnicas especiais de manuseio. Um cuidado particular deve ser tomado na prevenção da exposição de um trabalhador à contaminação com NORM.

Resíduos contaminados precisam ser separados do lixo comum, para que o volume contendo a presença de NORM seja o mais baixo quanto possível, devendo ser compactado e estocado em uma área controlada e com baixa ocupação. Essa área deve ser monitorada com o uso de medidores de radiação.

Lamas de tubulações podem conter pequenas quantidades de ^{226}Ra , associadas a concentrações que podem variar de poucas centenas até vários milhares de pCi/g de produtos do decaimento do radônio. Essas lamas requerem os mesmos cuidados de manuseio dos rejeitos de baixa radioatividade. A própria tubulação pode estar contaminada, sendo necessário o uso de luvas e estocagem em área com acesso restrito.

Periodicamente, as bombas usadas nessas instalações são submetidas aos testes de vazamentos ou a qualquer outro tipo de checagem. A incrustação contaminada com NORM dentro da bomba, normalmente, está ligada quimicamente à estrutura metálica da bomba e não pode ser removida facilmente.

Componentes de filtros podem estar também contaminados com altas concentrações de NORM e requerem um manuseio especial para se evitar a inalação da poeira radioativa e a contaminação do ambiente, durante a manutenção desses filtros e troca dos seus componentes.

Detecta-se uma contaminação por NORM, usando-se medidores de radiação do tipo Geiger-Müller ou sondas de cintilação. As radiações gama emitidas são suficientemente energéticas para serem detectadas. Já as radiações alfa emitidas pelo radônio e pelos produtos de seu decaimento não são facilmente detectadas. Para o ^{210}Pb , o ^{210}Bi e o ^{210}Po , usa-se uma sonda pancake para radiações alfa, junto à superfície contaminada.

Uma técnica que vêm sendo largamente utilizada para detecção de radônio é o método passivo de detecção que emprega detectores sólidos de traços nucleares (SSNTD – Solid State Nuclear Tracks Detectors). Dentre os detectores mais usados, encontra-se o alil diglicol carbonato ou carbonato diglicol alílico, $\text{C}_{12}\text{H}_{18}\text{O}_7$, conhecido comercialmente como CR-39. Esse método de detecção consiste em contar, com o auxílio de um microscópio óptico, os traços resultantes da interação de partículas alfa, ou de partículas carregadas positivamente, com o plástico (CR-39). Para a contagem desses traços, costuma-se fazer uso de ferramentas computacionais.

Após uma avaliação do problema, pode-se concluir que, apesar do risco potencial para o trabalhador e o meio ambiente, a contaminação por NORM é controlável.

1.2. Revisão bibliográfica

A contaminação por NORM na indústria de petróleo e gás começou a ser estudada por volta de 1971, quando a presença do radônio, em concentrações de risco à saúde do trabalhador, foi detectada no gás natural líquido (NGL), durante o seu processamento. Como contaminante de incrustações, presentes em tubulações e

equipamentos oriundos das operações de prospecção de petróleo, não havia nenhum registro, até a metade da década de 80, quando o problema foi registrado pela primeira vez no Mar do Norte. [P. R. Gray, Peter Gray & Assocs., 1991]

Desde então, o gerenciamento desse tipo de material contaminado por NORM passou a ser alvo do interesse das autoridades governamentais, da proteção radiológica, das empresas do ramo e do mundo acadêmico.

Relatórios e artigos têm sido publicados, registrando a preocupação com a contaminação por NORM presente no petróleo.

Em 1998, a Agência de Proteção Ambiental dos Estados Unidos da América (US EPA), através do documento Directive No. 92000.4-25, “Memorandum on Use of Soil Cleanup Criteria”, recomenda que os solos contaminados radioativamente sejam “limpos” até atingirem uma concentração de rádio de 5 pCi/g ou menos.

Em 1998, o relatório confeccionado pelo Escritório Nacional de Tecnologia do Petróleo, do Departamento de Energia americano (US DOE), DOE/BC/W-31-109-ENG-38-5, “Potential Radiological Doses Associated with the Disposal of Petroleum Industry NORM Via Landspreading”, apresentou um estudo sobre o descarte de NORM, proveniente da indústria de petróleo, via espalhamento em aterro, onde foi utilizado um código computacional (RESRAD computer code), para estimar as doses recebidas por trabalhadores e pelo público em geral. O relatório apresenta uma avaliação do risco radiológico potencial de doses e dos riscos resultantes de saúde para os trabalhadores e o público em geral. Ainda, dentro deste assunto, um outro relatório datado de 1999, DOE/BC/W-31-109-38-8, “An Assessment of the Disposal of Petroleum Industry NORM in Nonhazardous Landfills”, faz recomendações no tocante à regulação sobre as disposições de materiais contendo NORM, provenientes de petróleo.

Em 1999, o relatório DOE/ID/13223-2, intitulado “Radon Emanation from NORM-contaminated Pipe Scale, Soil, and Sediment at Petroleum Industry Sites”, apresenta um estudo das emanações de radônio em incrustações de tubos e em amostras de solos contaminados por NORM, provenientes de locais de produção de petróleo. O relatório conclui que as concentrações de rádio nas incrustações provenientes da indústria de petróleo, são similares às concentrações de rádio observadas nos rejeitos provenientes da mineração de urânio, entretanto, a fração de emanação de ^{222}Rn das incrustações, provindas das operações com o petróleo, é menor do que a fração de emanação de ^{222}Rn nos rejeitos da mineração de urânio.

Em 2001, Cassels & Waite, publicaram um artigo intitulado “Regulatory management of NORM wastes from petroleum exploration activities in the Northern territory”, onde descrevem as diversas opções de descarte e gerenciamento de NORM proveniente das atividades de exploração de petróleo.

Em 2003, a Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA), publicou dois documentos, o Technical Reports Series No. 419 e o Safety Reports Series No. 34, onde se aborda as questões associadas à proteção radiológica e o gerenciamento do resíduo contaminado por NORM, proveniente da indústria de petróleo.

No Brasil, em 2001, Luiz Ernesto de C. Matta estudou amostras contaminadas por NORM, coletadas na região da Bacia de Campos, no Estado do Rio de Janeiro, fazendo uma avaliação das exposições às radiações naturais que os trabalhadores envolvidos nas ações de exploração e produção de petróleo podem estar sujeitos. Matta concluiu que existem níveis elevados de radioatividade em algumas amostras do material proveniente de instalações de exploração e produção de petróleo e, que sem o controle adequado, a disseminação desse material contendo NORM pode levar a doses ocupacionais superiores aos limites de dose primários para indivíduos do público. No Brasil, os primeiros casos documentados de incrustações contaminadas por NORM apareceram em 1988, na Plataforma P-1 e, mais tarde, em 1990, na Plataforma P-2, ambas na região da Bacia de Campos.

O uso de detectores sólidos de traços nucleares (SSNTD), para a determinação dos níveis de emanção do radônio, tem sido largamente disseminado, sendo encontrados na literatura diversos trabalhos sobre o assunto. Um dos detectores do tipo SSNTD mais usados tem sido o CR-39. O polímero CR-39 é um plástico resultante da polimerização do monômero líquido, Carbonato de Diglicol Alílico ($C_{12}H_{18}O_7$), que foi inicialmente produzido, em 1933, para a fabricação de lentes; sua polimerização data de 1945, por Muskat e Strain; porém, somente em 1978, Cartwright, Shirk e Price comprovaram que era um ótimo detector de partículas carregadas.

Em 1997, Rio Doce estudou a emanção do radônio, proveniente de amostras cimento e gesso, usando detectores de CR-39 e câmaras de difusão.

Em 2000, A. J. Khan empregou detectores de CR-39 para determinar a concentração de radônio, no interior de residências, na Índia.

Também, em 2000, Rodrigo Silvestre Neman, em sua Dissertação de Mestrado, realizou a monitoração ambiental em residências de Campinas (SP), utilizando

detectores de CR-39. Foram medidas as atividades alfa, devido ao ^{222}Rn e filhos (^{218}Po e ^{214}Po) presentes no ar.

Em 2001, Khalid e colaboradores investigaram a concentração de radônio, em minas de carvão no Paquistão, empregando detectores de CR-39 e detectores de germânio hiper puro.

Também, em 2001, Al-Jaralah e colaboradores usaram a técnica de detecção de traços nucleares, com o CR-39, no estudo da emissão de radônio em granito, mármores e outros materiais cerâmicos usados na Arábia Saudita.

Em 2002, Misdaq empregou detectores de CR-39 e determinou a eficiência desses detectores em medidas de concentrações de radônio, usando um código computacional de Monte Carlo.

Em 2003, Geovane S. Araújo, analisou a emissão de ^{222}Rn em materiais de construção e em edificações, usando o CR-39 como detector de traços. Em sua Tese de Mestrado, Araújo fez a calibração da câmara de difusão, obtendo a reta de calibração para o detector CR-39, de onde foi obtida a equação de emissão do ^{222}Rn .

Também, em 2003, Ioannides e colaboradores realizaram a monitoração de localidades no nordeste e noroeste da Grécia, durante os meses de verão, com CR-39.

Mahmoud Kullab desenvolveu diversos estudos de monitoração de radônio no solo e na água, na Jordânia, bem como em materiais de construção, usando a técnica de dosimetria passiva com CR-39.

Em 2004, R. Banjanac e colaboradores aplicaram o método de dosimetria passiva, com o uso de detectores CR-39, para medidas de radônio no interior de escolas na Sérvia durante a primavera.

Em 2008, Carlos Eduardo L. dos Santos, em sua Dissertação de Mestrado, determinou a concentração de radônio em minas subterrâneas de fluorita e de carvão, no Estado de Santa Catarina, empregando dois tipos de detectores de traços nucleares, o LEXAN e o CR-39. As minas de carvão apresentaram valores de concentração de radônio baixo, a dose anual média de trabalhadores foi de 0,70 mSv/ano, enquanto as minas de fluorita apresentaram concentrações elevadas, superiores a 1000 Bq/m^3 .

Após a pesquisa bibliográfica, não foi encontrado nenhum trabalho, onde tenha sido usado o CR-39, como detector sólido de traços nucleares, para determinação dos níveis de emissão de ^{222}Rn proveniente de NORM de petróleo.

1.3. Objetivo

Este trabalho tem como objetivo realizar medidas de emissões do radônio, presente nos materiais radioativos de ocorrência natural (NORM) provenientes do petróleo, que contaminam instalações de óleo e gás. A emissão de radônio será avaliada através de um sistema de medidas constituído por um tubo cilíndrico e uma câmara de difusão contendo um detector de traços nucleares (SSNTD). Escolheu-se o CR-39 como detector devido a sua grande eficiência, sua estabilidade química, boa sensibilidade às partículas alfa, conservação de traços latentes com baixo desvanecimento, insensibilidade à radiação eletromagnética, disponibilidade no mercado e custo razoavelmente baixo.

As partículas alfa quando incidem sobre um detector de traços CR-39 formam traços latentes da ordem de nanômetros, não visíveis por microscopia óptica. Para que os traços latentes se tornem visíveis, é necessário fazer-se uma revelação química, em que se utilizam soluções alcalinas de hidróxido de sódio ou de hidróxido de potássio, que corrói as regiões danificadas numa velocidade maior do que a degradação do material plástico de base. Com essa revelação, os traços chegam a atingir diâmetros da ordem de 10^4 Å, tornando-se assim visíveis num microscópio óptico. Em nosso procedimento, optamos pelo uso da solução de hidróxido de sódio.

No presente trabalho, após a revelação química, procedeu-se à captura das imagens dos traços produzidos pelas partículas alfa, usando-se um microscópio óptico NIKON E400 e uma câmera fotográfica digital COOLPIX 995 da Nikon acoplada a um computador. A contagem do número de traços de partículas alfa emitidas pelos NORM presentes na amostra será realizada pelo programa computacional, Image Pro Plus. As imagens digitalizadas dos traços foram posteriormente armazenadas em meio digital, formando um banco de dados.

Capítulo 2

Fundamentos Teóricos

2.1. História da contaminação com NORM

O rádio é conhecido como traço contaminante de águas subterrâneas há muito tempo, mas como contaminante de incrustações não havia nenhum registro até a metade da década de 80, quando o problema foi registrado pela primeira vez no Mar do Norte. O ^{222}Rn é produto da série de decaimento do ^{226}Ra . A contaminação do gás natural com radônio já é conhecida há aproximadamente 100 anos. Entretanto, somente em 1971, o radônio foi encontrado no gás natural líquido (NGL), durante o processamento, em concentração que oferecia risco sério à saúde do pessoal da indústria, particularmente, o pessoal da manutenção. Certamente, antes de 1971, alguma quantidade de radônio já estava presente no NGL, mas foi o desenvolvimento de técnicas de extração profunda que resultou na obtenção de quantidades significativamente altas de radônio. Até a década de 90, à exceção do Relatório de Gesell, em 1975, e um artigo publicado em 1990 por Gray, a contaminação por NORM em instalações de gás, pelo radônio e os produtos do seu decaimento, não vinha sendo muito relatada na literatura.

A contaminação com NORM na indústria de petróleo e gás normalmente ocorre na forma de lamas, incrustações e filmes.

- Lamas e incrustações contaminadas podem conter urânio, tório, rádio e seus produtos de decaimento associados. A radioatividade apresentada pelas lamas e incrustações depositadas na tubulação é devida principalmente à presença de rádio, que co-precipita com o bário e o estrôncio na forma de sulfato. Outros isótopos das séries de decaimento do ^{238}U e do ^{232}Th também podem estar presentes. Esta contaminação pode apresentar valores acima de 10^5 pCi/g. Encontram-se as lamas e incrustações em equipamentos de processo e transporte como também em tubulações subterrâneas. Assim sendo, tubulações, filtros, lamas de poços, disposição/injeção de salmoura em poços e equipamentos associados podem conter NORM.
- Filmes, revestimentos e placas contendo NORM podem ser originados na produção ou no processamento do gás natural. Frequentemente, invisíveis a olho nu, esses filmes contêm radônio e seus produtos de decaimento, com o rádio

associado. Esses filmes são encontrados em tubulações de transporte, na cabeça do poço, em unidades de tratamento e bombas, em plantas de processamento ou outra instalação de produção de hidrocarbonetos leves.

2.2. Rádío e Radônio

O ^{226}Ra é o quinto produto na série de decaimento do ^{238}U e o ^{228}Ra é o quarto produto na série de decaimento do ^{232}Th , conforme mostram os esquemas de decaimento apresentados nas figuras 2.1 e 2.2.



Figura 2.1 – Série de decaimento do ^{238}U

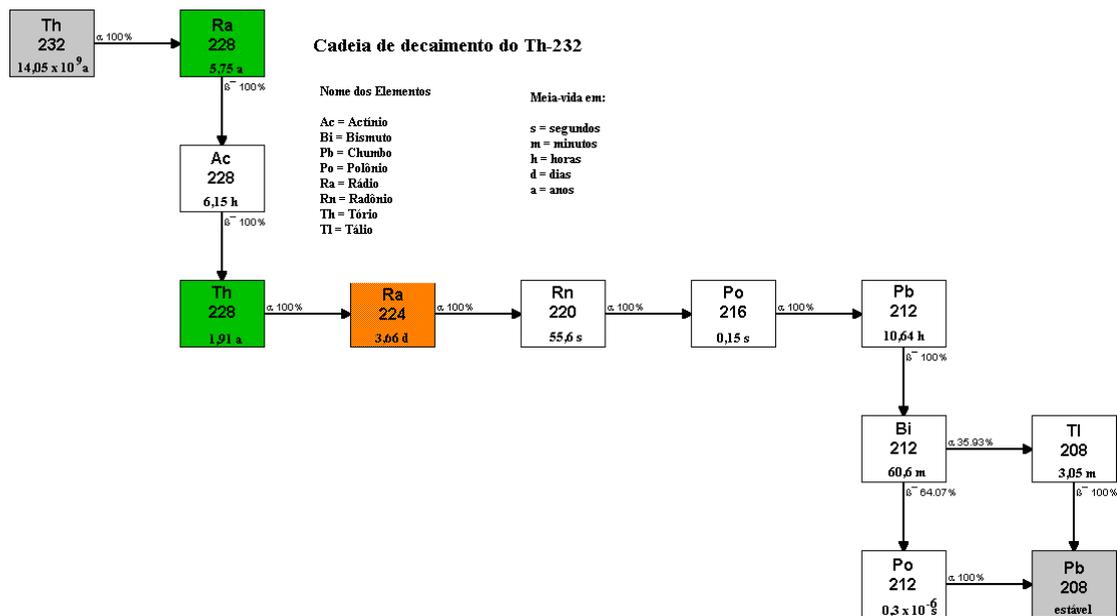


Figura 2.2 – Série de decaimento do ^{232}Th

O urânio e o tório encontram-se presentes numa grande variedade de solos e rochas, em diversas concentrações na crosta terrestre. Alguns sais de rádio, por exemplo, cloreto de rádio, são solúveis em água e, portanto, a água subterrânea pode dissolver o rádio das formações de tório e urânio. O rádio pode permanecer dissolvido na água tanto tempo quanto o contato com as formações de sulfato e carbonato permitir. A água contaminada com o rádio pode ser obtida junto com o óleo e o gás.

O radônio é uma ocorrência natural, com mobilidade alta, sendo um gás radioativo, quimicamente inerte (gás nobre). O ^{222}Rn é produto da série de decaimento do ^{226}Ra . Da mesma forma que o rádio, o radônio encontra-se largamente distribuído na crosta terrestre. Relatórios recentes sobre a contaminação por radônio, em construções civis por todo o mundo, atestam a ampla distribuição de radônio no meio ambiente. Por ser um gás nobre, similar ao hélio e ao argônio, o radônio é extremamente não-reativo quimicamente. Uma vez formado pelo decaimento radioativo do rádio-226, o radônio é livre para migrar como um gás, sem poder ser capturado ou removido por reação química. Migrando através das rochas e do solo, o radônio é obtido com o gás natural, na cabeça do poço.

Quando o gás contaminado com radônio é processado, muito do radônio é removido com a fração mais leve. O ponto de condensação do gás radônio é um valor

intermediário entre os pontos de condensação do etano e do propano. Após o processamento subsequente, o radônio tende a acumular na corrente de destilação do propileno. Como era de se esperar, o radônio se concentra nas frações mais leves, sendo facilmente detectado por medidores de radiação. Como esta contaminação está contida e controlada no interior dos vasos, equipamentos e tubulações, geralmente, o radônio não oferece perigo à saúde dos trabalhadores e do público.

Existem outros isótopos do radônio, por exemplo, ^{220}Rn (torônio) que é um produto de decaimento do ^{232}Th , altamente instável. O ^{220}Rn e os outros isótopos do radônio, com exceção do ^{222}Rn , possuem meias-vidas tão curtas, que decaem, antes do gás ser produzido na cabeça do poço. Por tudo isso, o isótopo que predomina é o ^{222}Rn e, após aproximadamente 25 dias, 99% do radônio decai para o ^{210}Pb .

2.3. Produtos do decaimento do Radônio

O radônio, por si só, não é um material que ofereça perigo de irradiação externa. Sendo quimicamente inerte, não-reativo, não se acumula no corpo. Os riscos à saúde associados à exposição ao radônio são devidos aos produtos de seu decaimento. Esses materiais radioativos de meia-vida longa têm se tornado um problema crescente para a indústria, principalmente, para o pessoal exposto às superfícies e lamas contaminadas e outros resíduos. Problemas de instalações contaminadas e resíduos precisam ser reconhecidos e tratados. A presença de metais radioativos provenientes do decaimento do radônio não podem ser detectados pelo lado de fora do equipamento ou dos vasos contaminados. As radiações emitidas por esses materiais são rapidamente absorvidas pelas paredes do equipamento. O radônio, se presente em concentração suficiente, pode ser detectado externamente em vasos de estocagem, bombas, etc. A energia de sua radiação gama é detectada por medidores de radiação gama.

Esse material radioativo não oferece perigo à saúde, a menos que seja ingerido ou inalado, por exemplo, durante o reparo e a manutenção das instalações. Se inalado, a poeira ou o aerossol contendo NORM poderá se acumular nos pulmões, onde este material emitirá radiações alfa. Estudo com trabalhadores de minas de urânio indicam que a exposição prolongada a esses produtos do decaimento do radônio causa um aumento no risco de contrair câncer nos pulmões.

2.4. Descarte de resíduos contendo NORM

O descarte do material contaminado com NORM tem sido um grande problema ainda sem solução satisfatória.

Atualmente, a opção mais prática e econômica para o descarte do material contendo NORM tem sido a de estocá-lo em área de propriedade da própria instalação, mantendo o acesso dessa área controlado.

Algumas vezes, a diluição desse material contaminado com NORM é possível até abaixo do limite de isenção. Exemplos: solo moderadamente contaminado pode ser diluído em solo não contaminado, ou água contaminada com rádio pode ser diluída com água limpa. Se suficientemente diluído, o rejeito poderá ser disposto, utilizando-se os métodos comuns de disposição de lixo. A re-injeção da água contaminada com rádio está sendo considerada como uma solução.

O alto custo da disposição de rejeitos contendo NORM está abrindo novas oportunidades para a pesquisa e para o desenvolvimento de métodos e de técnicas de redução dos volumes de lixo contaminado. Por exemplo, se for possível realizar a remoção do rádio da água, de maneira economicamente viável, em níveis abaixo da isenção, os custos de disposição da água poderão ser bastante reduzidos. Nessa direção, existem linhas de pesquisa que trabalham com o uso de resinas e membranas para absorver ou separar o rádio da água e de outros líquidos. Existem, também, pesquisas para concentrar rádio e ^{210}Pb , e seus filhos radioativos, das lamas. Se economicamente viável, poderá ser uma solução para o descarte de grandes quantidades de resíduos contendo NORM. A descontaminação das instalações por jateamento de areia gera grandes volumes de lixo com NORM. Novos métodos de jateamento de areia estão em fase de desenvolvimento. As operações de raspagem de incrustações em tubos, da mesma forma, geram grandes quantidades de resíduos contendo NORM.

A tendência aponta para um maior controle e regulação dos resíduos com presença de NORM. Sem dúvida, o custo do descarte de material contendo NORM é alto.

Para o gerenciamento destes resíduos algumas estratégias têm sido utilizadas mundo afora, tais como: espalhamento em solos, espalhamento em solos, após diluição com outros materiais, enterro, aterro industrial, deposição em instalações licenciadas, utilização de minas abandonadas, injeção em poços, deposição em fraturas geológicas, uso de estruturas geológicas profundas.

2.4.1. Opções para o gerenciamento/descarte de resíduos contendo NORM

As medidas adotadas devem estar de acordo com as boas práticas de segurança e meio-ambiente, isto é, contemplarem as aplicações das melhores técnicas disponíveis e as melhores práticas de segurança e de preservação do meio-ambiente.

Apresenta-se abaixo uma lista de opções, as quais estão sendo discutidas mundialmente e avaliadas a aplicação de cada uma delas, de acordo com o quadro, a viabilidade e a necessidade de cada situação. [B. Cassels e A. Waite, 2001]

- **OPÇÃO 1: Encapsulamento.**

A primeira vantagem deste método é a segurança de ter todo o material confinado em poços, dentro de cilindros ou tambores selados, isolados com tampas de cimento. Uma outra forma, para depositar o material contaminado, é misturá-lo com o fluido de perfuração e bombeá-lo para o fundo do poço; da mesma maneira este é isolado com tampa de cimento. Além disso, apresenta custos menores em relação às outras opções.

- **OPÇÃO 2: Injeção em poços.**

Uma alternativa para o gerenciamento/descarte de NORM é a injeção em poços. Este método requer que o material contaminado com NORM seja injetado em reservatórios profundos, isolados entre camadas de xisto impermeáveis, acima e abaixo da zona de injeção. O poço é, então, cimentado e abandonado permanentemente. Relatórios de análises de risco e de impacto ambiental são elaborados. A zona de injeção não pode estar em zona potencial de exploração e prospecção de petróleo e, sim, dentro de uma zona já exaurida. A grande vantagem desta técnica é o fato dela permitir a disposição de concentrações altas de NORM.

- **OPÇÃO 3: Disposição “overboard” com a água de formação produzida.**

O objetivo é descartar para o meio ambiente concentrações de radionuclídeos naturais próximas ao valor da radiação de fundo e dentro dos limites permitidos pela legislação local. No caso das incrustações de sulfato de bário, elas são pouco solúveis em água, mas a sua solubilidade aumenta com o aumento da concentração de cloreto de sódio. Por exemplo, o volume de água no oceano é extremamente grande, então pode-se prever que não haverá dano ambiental, pois as partículas permanecerão no fundo do mar por um curto período, se dissolvendo em poucos dias.

- OPÇÃO 4: Aterros e enterros.

Resíduos contaminados com NORM costumam não ser aceitos em repositórios para rejeitos de baixa atividade (LLW), entretanto, existem alguns poucos locais específicos (na Austrália e nos E.U.A., por exemplo) que recebem este material.

Teoricamente, incrustações com a presença de rádio, com atividade específica de 4400 Bq/kg espalhadas sobre uma superfície com uma espessura máxima de 0,63 cm, resultaria numa taxa de dose de cerca de 0,85 microSv/h, uma média de 5 vezes maior que a radiação natural de fundo. Então, uma possível solução consiste em isolar este resíduo contaminado com NORM e espalhá-lo sobre uma área bem grande, cobrindo-a com aterro sem contaminação. Neste caso, a desvantagem é a inutilização de áreas imensas e a questão da responsabilidade do controle delas.

Uma outra solução que vem sendo utilizada é o enterro abaixo de 4,6 m de cobertura. Da mesma forma, este tipo de método impossibilita a utilização da área para outros fins. Uma terceira solução é no caso do resíduo apresentar baixas concentrações de radionuclídeos, o suficiente para não ser considerado legalmente radioativo, então, poderá ser descartado como lixo comum em aterros municipais.

- OPÇÃO 5: Descarte em minas abandonadas.

Propostas para a disposição de NORM em minas abandonadas, têm sido reconhecidas e aceitas internacionalmente. Entretanto, a questão da responsabilidade do controle desses repositórios tem dificultado essa opção.

- OPÇÃO 6: Armazenamento provisório.

O volume de resíduos contaminados com NORM, que surge anualmente dentro da indústria de petróleo, tem crescido rapidamente, consumindo o espaço destinado ao armazenamento dentro da instalação. Os custos financeiros para o descarte e/ou a contratação de repositórios privados são muito altos. As poucas instalações licenciadas para receber este tipo de rejeito são caras.

Os repositórios para rejeitos de baixa radioatividade não aceitam rejeitos com NORM provenientes da indústria de petróleo. O argumento usado é que o custo de estocagem é muito alto.

2.5. Detecção do Radônio usando SSNTD

Há mais de 50 anos, Young (1958) e Silk e Barnes (1959) publicaram os primeiros resultados sobre a técnica de detecção de radiação por traços nucleares em sólidos [W. Enge, 1980]. Essas investigações deram início ao desenvolvimento de novos detectores de traços na área de Física Nuclear. A simplicidade dessa técnica de detecção despertou o interesse da pesquisa fundamental sobre esses detectores sólidos de traços nucleares, SSNTD, e suas aplicações nos vários campos da ciência e da tecnologia.

Partículas pesadas ou fragmentos de fissão, ao passarem através de materiais plásticos, produzem danos em função de sua energia de ionização. No caso do radônio, emissor alfa, detectores sensíveis às partículas alfa podem ser usados, sendo os mais utilizados os seguintes polímeros: LR-115 (nitrato de celulose, $C_5H_8O_9N_2$), Mackrofol E ou Lexan (policarbonato, $C_{16}H_{14}O_3$) e CR-39 (carbonato diglicol alílico, $C_{12}H_{18}O_7$).

Os detectores sólidos de traços nucleares dividem-se em duas categorias: inorgânicos e orgânicos. Como esses detectores possuem propriedades físicas e químicas diferentes, foram propostos vários modelos para explicar o mecanismo de formação de traços latentes. No caso dos polímeros, que pertencem à categoria dos detectores sólidos orgânicos, as cadeias poliméricas são destruídas pelo processo primário de ionização e pelos elétrons que recuam, após a colisão com a partícula incidente (elétrons de recuo).

Segundo W. Enge, a radiação ionizante altera profundamente a estrutura molecular dos materiais poliméricos. Pode-se afirmar que a sensibilidade dos detectores plásticos está associada a desestruturação secundária das cadeias do polímero, devido aos elétrons de recuo, ocasionada pela energia da partícula alfa. Observa-se que quanto menor a energia da partícula alfa incidente, maior é o dano causado na estrutura, ou seja, a taxa de perda de energia pela partícula ($-dE/dx$), que representa a energia dissipada no material por unidade de comprimento, é inversamente proporcional a energia da partícula (E).

$$-dE/dx = 1/E \quad (2.1)$$

As partículas carregadas (prótons, dêuterons, alfas e íons pesados) depositam sua energia no material, em função dos seguintes parâmetros:

- Forças eletrostáticas entre as partículas e os elétrons que orbitam ao redor do núcleo alvo, o que pode resultar na alteração das órbitas características desses elétrons;
- Desaceleração das partículas, ao interagirem com o núcleo do material, resultando na emissão de radiação eletromagnética (Bremsstrahlung), desprezível em relação ao item anterior.

Neste trabalho, utilizou-se um detector sólido de traços que tem apresentado ótimos resultados, o polímero Carbonato Diglicol Alílico (A.D.C.), conhecido comercialmente como CR-39. Este detector oferece diversas vantagens quando comparado com os outros tipos de detectores, tais como: ser insensível à radiação eletromagnética, apresentar menos efeito de desvanecimento de traços latentes e possuir maior estabilidade química, além de estar disponível no mercado a um custo razoável.

Historicamente, o CR-39 foi sintetizado e polimerizado pela primeira vez por Muskat e Strain, em 1945. Alguns anos mais tarde, em 1950, Strain e seus colaboradores anunciaram um método modificado de polimerização para o CR-39, originando um plástico "termoset". Esses plásticos são caracterizados por sua dureza, infusibilidade e insolubilidade. O CR-39 é transparente, tem boas propriedades mecânicas e boa resistência química às radiações eletromagnéticas. Devido a essas propriedades, o CR-39 passou a ser largamente utilizado em diversas áreas, como, por exemplo, em parabrisas e janelas de aviões, janelas de observações, lentes oftalmológicas, chapas de proteção de vidro para soldadores, lentes e filtros fotográficos.

Entretanto, o uso do CR-39 como detector de traços deu-se após 1975. Os primeiros trabalhos publicados sobre o CR-39 como detector de traços datam de 1978. Nesse ano, Cartwright, Shirk e Price mostraram as qualidades singulares do CR-39, em termos do registro de traços de partículas nucleares, através de sua grande sensibilidade e alta resolução para detecção de partículas energéticas.

Como detector de traços nucleares, o CR-39 apresenta uma grande vantagem além de sua eficiência, que é o fato dele ser totalmente amorfo, o que faz com que os traços sejam bastante regulares. Outra vantagem é que, como o CR-39 é um plástico muito transparente, proporciona um bom contraste entre os traços e o próprio corpo do detector, facilitando a observação ao microscópio óptico. Adicionalmente a todas essas vantagens, podemos acrescentar o fato do CR-39 ser um plástico resistente contra

possíveis danos ocasionados por condições ambientais, como temperatura, umidade, ação corrosiva de poluentes, entre outros.

2.6. Detectores e processo de revelação com ataque químico

Os filmes, ou mais especificamente os registradores de imagem, podem ser os argênteos, à base de sais de prata, ou os detectores sólidos de traços nucleares (SSNTD), que ainda se classificam, como visto na seção anterior, como inorgânicos (mica e o vidro) e orgânicos (polímeros, tais como o CR-39, LR-115, Lexan e Makrofol E). Desses, um detector que tem se destacado é o CR-39, devido a sua grande eficiência, conforme também já observado anteriormente.

O registro da imagem por esse detector se deve à passagem de uma partícula carregada que, durante sua trajetória, produz danos decorrentes das suas interações coulombianas com os átomos do material. Esses danos são da ordem de 30 Å a 100 Å e são conhecidos como traços latentes, sendo visíveis apenas por um microscópio eletrônico, com um aumento da ordem de 10^5 x. Um critério para a formação do traço latente é a Perda de Energia Específica ($-dE/dx$), onde a partícula carregada deposita energia ao longo de sua trilha, quando penetra no polímero. Essa perda de energia possui um valor específico mínimo requerido, para que o dano seja severo e torne-se revelável como traço.

Para que os traços latentes se tornem visíveis ao microscópio óptico, é necessária a realização de uma revelação química, ou seja, revelação com ataque químico, que é o método mais usado para se obter o aumento do dano latente em detectores sólidos nucleares sólidos. Neste processo se utiliza, geralmente, uma solução de hidróxido de sódio que degrada as regiões danificadas numa razão muito maior que o material não danificado. Com essa revelação, os traços chegam a atingir diâmetros da ordem de 10^4 Å, na faixa do comprimento de onda da luz visível, tornando-se assim, os traços ampliados visíveis num microscópio óptico, com um aumento da ordem de 10^3 x.

A revelação dos traços, sob o ponto de vista microscópico, se desenvolve, a partir da dissolução química preferencial, ao longo e ao redor da trajetória da partícula, conforme mostra a figura 2.3. Devido à reatividade na região danificada ser maior do que na região não danificada, ela é rapidamente dissolvida. Essa maior reatividade ocorre ao longo do traço, tanto nos casos onde há quebras de ligações químicas (polímeros), como nos casos em que a rede cristalina é destruída (minerais). Ao se

atingir o limite de aproximadamente 50 Å, que é o limite entre a região danificada e a não danificada, a taxa de dissolução diminui e a solução começa a atacar também as regiões não danificadas em torno do traço, começando, assim, o ataque químico, que causa o aumento das dimensões do traço.

Sob o ponto de vista macroscópico, a revelação do traço se dá simultaneamente ao longo do traço, com uma velocidade V_t , que é função das condições de ataque, isto é, temperatura, tempo e concentração da solução de revelação, e dos parâmetros da partícula incidente, isto é, carga, massa e energia. A dissolução química do material não danificado se dá numa velocidade V_g , que é menor que V_t . V_g é a velocidade com a qual as paredes internas dos traços e a superfície do detector são dissolvidas, sendo função do material do detector e das condições de revelação, conforme ilustra a figura 2.3.

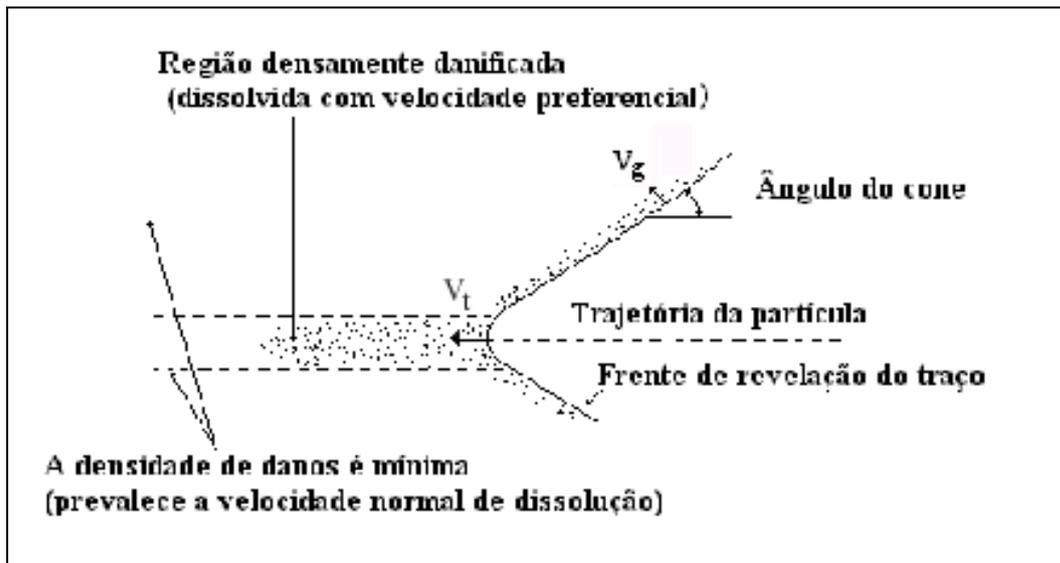


Figura 2.3 - Representação esquemática do perfil microscópico do traço de uma partícula no detector. [W. Eng, 1980]

A geometria dos traços revelados depende da relação entre essas duas velocidades. Se $V_t > V_g$, os traços vão adquirir uma forma cônica, que, ao serem vistos num microscópio, poderão apresentar uma forma circular ou elíptica (figura 2.4). Nos casos em que $V_t \gg V_g$ os traços adquirirão uma geometria cilíndrica (figura 2.5). As formas circulares e elípticas dependem do ângulo de incidência da partícula: normal, no primeiro caso, e oblíqua à superfície, no segundo caso.

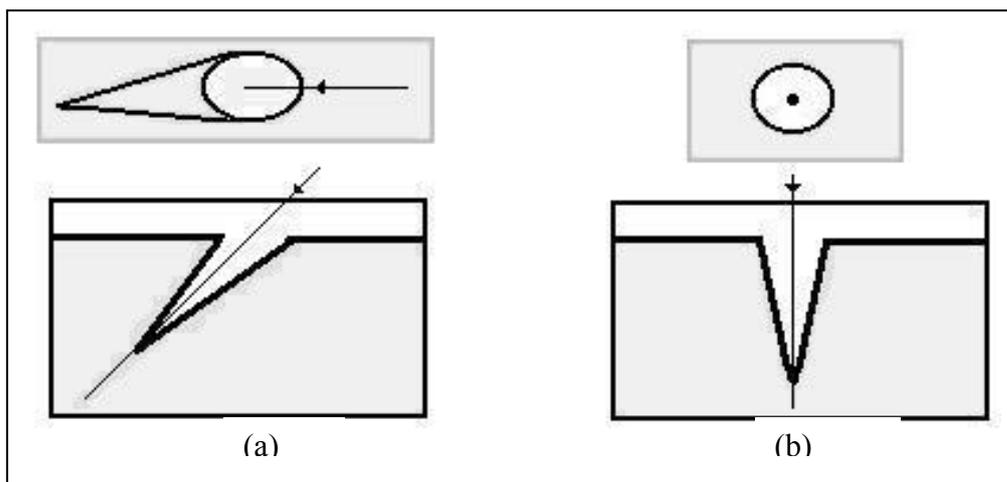


Figura 2.4 - Forma cônica para $V_t > V_g$, para partículas com: (a) incidência oblíqua e (b) incidência normal a superfície do detector. [W. Eng, 1980]

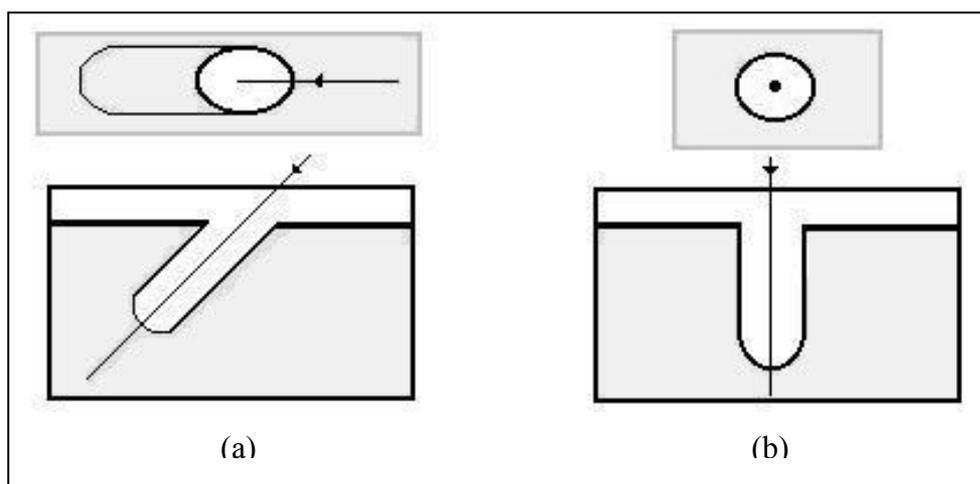


Figura 2.5 - Forma cilíndrica para $V_t \gg V_g$, para partículas com: (a) incidência oblíqua e (b) incidência normal a superfície do detector. [W. Eng, 1980]

A formação do cone, durante a revelação, em torno da trajetória da partícula, pode ser entendida, quando se aplica o princípio de Huygens [W. Eng, 1980; J. D. R. Lopes, 2001]. Supondo que a velocidade de revelação na superfície do detector atue uniformemente em todas as direções, após um tempo total de revelação, t , a superfície removida por uma quantidade $V_g \times t$ representa a nova superfície do detector, como demonstrado na figura 2.6. O mesmo conceito é aplicado à trajetória da partícula.

Entretanto, o processo de revelação do material não pode começar, antes que a solução tenha alcançado um dado ponto, através da velocidade de revelação do traço, ao longo do mesmo. Isso significa, por exemplo, que, após um terço do tempo total t de revelação, o vértice do cone deve estar a $V_t(1/3).t$ distante da superfície. O material poderá somente ser revelado durante o tempo restante ($= 2t/3$), no qual o material será removido, de acordo com a esfera de raio $V_g(2t/3)$.

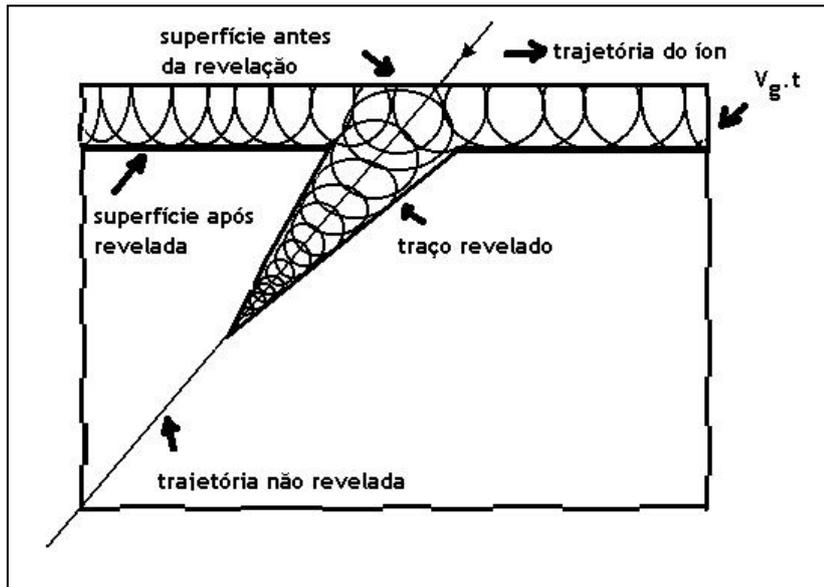


Figura 2.6 - Vista lateral de um traço revelado, onde o princípio de Huygens é aplicado para descrever a formação de cones. [W. Eng, 1980]

Para ilustrar, supomos um caso em que o traço resultasse perpendicular à superfície do detector. Ao ser exposta ao ataque químico, a região sem dano será dissolvida com uma velocidade V_g , perpendicular à superfície; uma velocidade de ataque através da trilha será V_t , maior que V_g , que poderá ser expressa por:

$$V_g = h/t \quad \text{onde } h \text{ é a camada dissolvida, em relação à superfície original do detector, e } t \text{ é o tempo de ataque}$$

$$V_t = L/t \quad \text{onde } L \text{ é a extensão do traço dissolvido e } t \text{ é o tempo de ataque}$$

A figura 2.7 mostra que o material da superfície é removido após algum tempo de ataque químico, resultando em um comprimento de traço visível, L , e num diâmetro

D; decorrentes da competição entre os efeitos V_g e V_t . [Fleischer, Price e Walker, 1975]

Pela geometria do traço, obtêm-se os parâmetros relativos ao ataque químico:

$$L = (V_t - V_g) t;$$

$$D = 2 V_g t \left((V_t - V_g) / (V_t + V_g) \right)^{1/2}$$

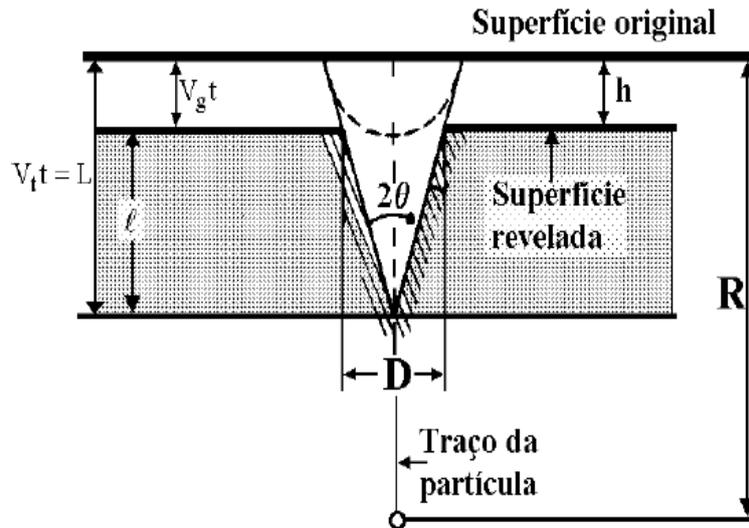


Figura 2.7 – Parâmetros envolvidos na formação do traço da partícula. [Fleischer, Price e Walker, 1975]

Essa hipótese geométrica de formação do traço, leva em conta as variações nas taxas de ataque e os diferentes graus de dano; e possibilita a conclusão de que o ângulo de incidência deve ser menor que um ângulo crítico θ_c , para que seja possível a visualização da imagem do traço após a revelação com ataque químico. De acordo com Durrani e Bull, 1987, o ângulo crítico é fornecido pela seguinte equação:

$$\theta_c = \arcsen (V_g / V_t)$$

2.7. Ataque químico

Na técnica de revelação dos traços em detectores plásticos, o agente químico mais utilizado é uma solução aquosa de NaOH, numa faixa de concentração variando

entre 1 a 12 M, sob temperatura entre 40°C e 70°C. Em alguns casos, costuma-se adicionar etanol à solução reveladora, pois o álcool possui a capacidade de diminuir o limiar de ionização para qual o traço se torna revelável.

A título de exemplo, são mostradas, na tabela 2.1, os parâmetros de revelação para alguns detectores plásticos.

Tabela 2.1

Parâmetros de revelação adotados para alguns detectores. [Durrani e Bull, 1987]

Detector	Revelador (mol)	Temperatura (°C)	T (h)
LR-115	NaOH (2,5 M)	60	1,54
CR-39	NaOH (6,25 M)	70	6,5
Makrofol-E	80% de KOH (6 M) +20% C ₂ H ₅ OH	70	7,5

O limite de detecção da partícula alfa no plástico pode ser determinado pela sua perda de energia, limitada entre os valores mínimo (E_{MIN}) e máximo (E_{MAX}). Observa-se, através da figura 2.8, um limiar dessa perda, $(dE/dx)_{Th}$, desde a energia mínima, na qual os traços são reveláveis, até o limite de maior energia das partículas alfa, [Durrani e Bull, 1987; Araújo,2003].

Na prática, E_{MIN} e E_{MAX} correspondem à formação de traços visíveis no detector. Sendo E_{MIN} a energia mínima necessária para a visualização dos traços e E_{MAX} a energia, a partir da qual a densidade dos traços reveláveis se torna tão baixa que os diâmetros dos traços são insuficientes para serem reconhecidos, nesse caso, há a necessidade de um tempo de revelação maior.

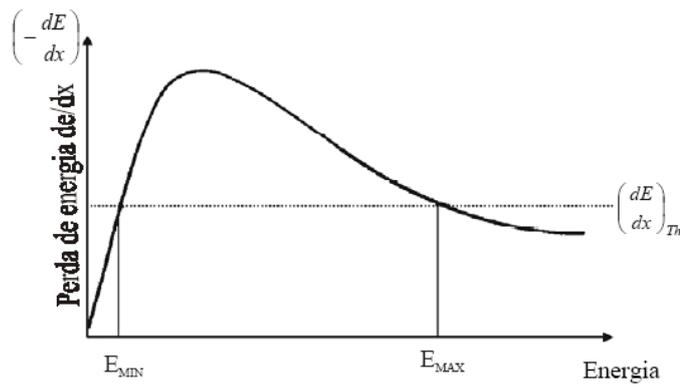


Figura 2.8 – Variação da energia sobre o qual o traço é revelável. [Durrani e Bull, 1987]

2.8. Processamento e análise de imagens

Algumas aplicações e alguns tipos de imagens requerem uma interação visual bastante intensa. A capacidade humana para processar e interpretar imensas quantidades de dados de natureza visual motiva o desenvolvimento de técnicas e dispositivos, de modo a estender ainda mais essa capacidade e essa sensibilidade. O conhecimento de como reage o sistema visual humano e de algumas técnicas disponíveis, para melhor adequar a imagem à aplicação, são importantes para se desenvolver soluções computacionais automatizáveis. Neste sentido, a área de Processamento e Análise de Imagens permite viabilizar um grande número de aplicações, tanto no domínio do aprimoramento de informações picturais para interpretação humana, quanto no domínio da análise automática por computador de informações extraídas de uma imagem ou cena.

O processamento de imagens propriamente dito aborda temas variados como realce, filtragem, restauração, análise, reconstrução, a partir de projeções, e compressão de imagens.

Operações de pré-processamento são aplicadas em uma imagem para se alcançar como resultado outra imagem com características realçadas, mais adequadas para prosseguir com as demais etapas de processamento necessárias, existindo inúmeras técnicas de realce de imagens.

Com o objetivo de facilitar a análise das imagens dos traços, bem como um melhor entendimento de seu processamento, algumas definições e conceitos são apresentados abaixo [Pavim e Roloff, 2005]:

Processamento de Imagens: refere-se ao processamento digital de imagens, através de um computador ou dispositivo eletrônico, onde as entradas e saídas do processamento são imagens. Em geral, são operações de realce, restauração, transformação ou compressão de imagens. Enquadra-se este tipo de operação de processamento como de “baixo” ou até “médio nível”. Um exemplo seria a aplicação de um filtro na imagem para realçar as bordas de seus objetos.

Visão Computacional: refere-se ao processamento digital de imagens para a extração de características importantes, que auxiliem na compreensão da imagem e na tomada de decisões inteligentes. Enquadra-se este tipo de operação de processamento como de “alto nível”, sendo comum a utilização de técnicas de inteligência artificial para o processamento dos dados. Um exemplo seria o reconhecimento e a classificação de um objeto da imagem.

Análise de Imagens: refere-se ao processamento digital de imagens onde somente as entradas do processamento são imagens. As saídas costumam apresentar uma descrição ou representação diferente da imagem ou alguma característica sua. Diz-se que a análise de imagens encontra-se em nível intermediário ao processamento de imagens e à visão computacional, enquadrando-se como operações de “médio nível”, podendo até atingir operações de “alto nível”. Um exemplo seria a visualização dos dados de uma imagem, a partir de seu histograma, que descreve as características de luminosidade da cena ali representada.

Reconhecimento de Padrões: refere-se às operações inteligentes na interpretação de sinais. Está intimamente ligado à visão computacional, mas não necessariamente processa apenas informações visuais para realizar o reconhecimento de características de um ambiente, pelo fato de existirem outros tipos de sensores dos quais poderia fazer uso, como, por exemplo, um sensor acústico para reconhecimento de voz. Em visão computacional, trata-se da interpretação e reconhecimento de objetos e características específicas em uma imagem.

Inteligência Artificial: refere-se à modelagem de sistemas inteligentes e análise de aspectos ligados à inteligência. É normalmente usada junto à visão computacional para a obtenção, reconhecimento e classificação de objetos e características nas imagens. Em geral é aplicada em três etapas: percepção, cognição e ação. A etapa de percepção

traduz os sinais provenientes do ambiente em símbolos; a de cognição manipula esses símbolos e a de ação traduz o resultado desses símbolos em ações que devem ser aplicadas de volta ao ambiente. O campo de visão computacional é considerado por alguns autores como sendo uma sub-área de IA.

Quanto à morfologia da imagem, temos as seguintes técnicas:

Dilatação: é a aplicação de um elemento estruturante de forma concêntrica sobre um conjunto definido de pontos (brancos ou pretos) em uma imagem, de maneira que o elemento estruturante adicione informação sobre a vizinhança destes pontos. Ou seja, pode-se imaginar que o elemento estruturante desliza sobre um conjunto de pontos dilatando sua vizinhança numa proporção que varia conforme as dimensões do elemento estruturante. Esta operação é utilizada principalmente para preencher intervalos e lacunas indesejáveis na imagem.

Erosão: é o inverso da dilatação. A aplicação do elemento estruturante ocorre analogamente à operação anterior, porém, ao invés de dilatar a vizinhança do ponto percorrido inserindo informação, o elemento retira informação (gerando erosão nas áreas percorridas). Esta operação é utilizada principalmente para eliminar detalhes irrelevantes, como ruídos, e abrir intervalos ou lacunas em regiões de conexão indesejada.

Abertura: é derivada das operações de dilatação e erosão. O operador de abertura aplica uma erosão seguida de uma de dilatação na imagem. Essa sequência de operações visa eliminar pequenos ruídos na imagem e abrir lacunas em regiões de fraca conexão entre objetos, através da erosão, e posteriormente tenta restaurar as dimensões reais de objetos da imagem através da dilatação. Os ruídos e fracas conexões eliminados com a erosão não retornam à imagem após a dilatação.

Fechamento: também derivada das operações de dilatação e erosão, trata-se da operação inversa da abertura, aplicando primeiramente uma dilatação seguida de uma erosão. Esta sequência de operações visa restaurar conexões fracas entre objetos da imagem.

A figura 2.9 ilustra o princípio de funcionamento dos operadores morfológicos básicos aplicados em uma imagem binária. A partir destas ferramentas básicas, outros algoritmos morfológicos são desenvolvidos, como, por exemplo, algoritmos para extração de bordas, preenchimento de regiões, extração de componentes conexos, afinamento, engrossamento e desbaste de regiões e esqueletonização.

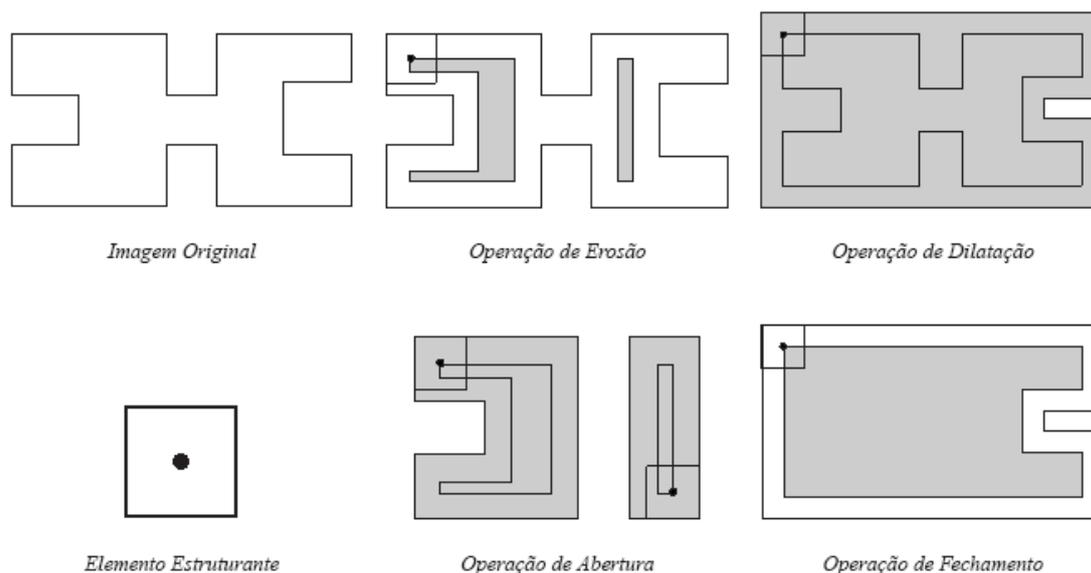


Figura 2.9 – Princípio de funcionamento de operadores morfológicos. [Gonzalez e Woods, 2002]

Temos ainda as técnicas de segmentação, muito utilizadas nos processos para tratamento de imagens:

Segmentação: o objetivo das técnicas de segmentação consiste em dividir a imagem em suas diversas partes constituintes ou segmentos (objetos e regiões). O nível ou quantidade de divisões aplicadas na imagem varia conforme a aplicação e, em geral é realizada até atingir um nível de separação suficiente entre os objetos de interesse na cena analisada. As técnicas de segmentação dão um passo à frente das técnicas de morfologia matemática, quanto à classificação, enquadrando-se dentre as técnicas de médio e alto nível de processamento de imagens.

Os algoritmos de segmentação baseiam-se principalmente em duas propriedades do nível de intensidade luminosa das imagens: a **descontinuidade** e a **similaridade**. Quanto à descontinuidade, a idéia está em dividir a imagem em regiões, de acordo com as mudanças abruptas do nível de intensidade luminosa em seus pontos, por exemplo, cantos e arestas de objetos na imagem. Já por similaridade, a imagem é dividida em regiões, de acordo com algum padrão de similaridade entre estas regiões, como, por exemplo, o nível de intensidade luminosa, a cor e a textura.

Dentre as técnicas de segmentação mais conhecidas, destacam-se a detecção de descontinuidades, a detecção de limiares (*thresholding*), a segmentação baseada em regiões e a segmentação por divisores de água (*watersheds*).

A detecção de limiares (*thresholding*) é uma das técnicas de segmentação mais simples e fáceis de se aplicar, sendo usada constantemente em qualquer aplicação de processamento de imagens. A técnica procura agrupar os diferentes objetos e regiões da imagem, conforme a similaridade de tonalidades (nível de intensidade luminosa) entre os mesmos.

A segmentação por divisores de água (*watersheds*) abrange conceitos de todas as demais técnicas de segmentação para realizar a divisão da imagem em partes distintas. O nome dado à técnica provém do seu princípio de funcionamento, que consiste em visualizar qualquer imagem em uma representação tri-dimensional da mesma, considerando as coordenadas espaciais x e y nos planos horizontal e vertical, respectivamente, e ainda o nível de intensidade luminosa dos pontos nestas coordenadas no plano perpendicular aos demais, provendo a idéia de profundidade na imagem.

Em geral, esta técnica é aplicada para a extração e separação de objetos de características ligeiramente uniformes do fundo da imagem. É muito comum, inclusive, aplicar este tipo de algoritmo ao gradiente das imagens, ao invés delas próprias, pois isto facilita a identificação de regiões de baixos valores de gradiente.

Por último, tem-se as mais importantes operações de pré-processamento no domínio espacial, as operações de filtragem, que se baseiam nos princípios de convolução de máscaras pré-configuradas para realçar características específicas das imagens. As operações de filtragem dividem-se entre operações de suavização (*smoothing*) e ênfase (*sharpening*). Em geral, operações de suavização procuram atenuar o nível de ruído nas imagens, removendo pequenos detalhes e suavizando contornos. Já as operações de ênfase procuram destacar detalhes da imagem, principalmente, cantos e arestas.

Capítulo 3

Metodologia



Neste capítulo, são apresentados os procedimentos seguidos em todas as etapas da investigação, desde a fase da coleta de amostras até a fase em que foram realizadas as medidas de emanações do radônio, usando-se o método passivo de detecção com detectores plásticos de traços nucleares, com posterior contagem desses traços produzidos pelas partículas alfa emitidas pelo radônio. Através de um processo semi-automatizado, que consiste na contagem do número de traços de alfa devido ao NORM presente na amostra, determinado com a ajuda de um programa computacional, após a captura das imagens registradas no detector, usando-se um microscópio óptico e uma câmera fotográfica digital acoplada a um computador.

As amostras contendo materiais radioativos de ocorrência natural (NORM), provenientes do petróleo, que contaminam instalações de óleo e gás, foram obtidas a partir de sucatas oriundas de unidades da indústria de petróleo encaminhadas à indústrias metalúrgicas, onde se detectou a presença de radiação. A emanação de radônio foi avaliada através de um sistema de medidas constituído por um tubo

cilíndrico e uma câmara de difusão contendo um detector de traços nucleares (SSNTD), por períodos de 7, 14 e 30 dias. Escolheu-se o CR-39 como detector devido a sua grande eficiência e vantagens já evidenciadas no capítulo anterior.

Para se determinar a exposição do CR-39 ao ^{222}Rn emanado das amostras, num período de 7, 14 e 30 dias, usou-se as mesmas condições de revelação do detector de traços adotadas por Araújo G. S. (2003), ou seja, os detectores CR-39 foram submetidos à revelação com ataque químico em solução aquosa de NaOH , 6.25 N, mantidos na temperatura de 70°C durante 5 horas, em banho térmico. Após a revelação com ataque químico, os traços produzidos pelas partículas α tornaram-se visíveis ao microscópio óptico NIKON E400, com os seguintes aumentos: lente ocular 10x e objetiva 40x. As imagens desses traços no CR-39 foram capturadas com uma câmera digital COOLPIX 995 da Nikon. O número de traços devido ao NORM contido nas amostras foi determinado com a ajuda do programa Image Pro Plus 6.2 Processing & Analysis Software.

3.1. Coleta de amostras

A coleta de amostras foi realizada a partir de denúncias feitas à Divisão de Indústrias da CNEN (Comissão Nacional de Energia Nuclear), órgão responsável pelo licenciamento e fiscalização do uso e das condições de segurança radiológica de fontes de radiação na área da indústria. As amostras foram retiradas de incrustações existentes em parte de tubulações e de equipamentos considerados como sucatas e que se encontravam em local específico para armazenamento de materiais contendo NORM.

A coleta das amostras para este trabalho foi realizada dentro dos padrões de radioproteção vigentes no País, de acordo com as Normas CNEN. Usou-se EPI adequado ao tipo de coleta realizada, a saber: macacão, luvas, máscaras, óculos de segurança e capacete, além de dosímetros do tipo filme (para radiação gama) e medidor de radiação adequado a este tipo de operação. Nas figuras 3.1 e 3.2 mostram-se fotografias de partes de um tratador de óleo e de um tubo prata em T, para se ilustrar de onde foram coletadas as amostras analisadas.



Figura 3.1 – Fotografia de parte de um tratador de óleo

As taxas de dose foram medidas nos locais de coleta com um medidor de radiação da marca Exploranium, modelo GR 130. O material de cada amostra analisada foi moído num moinho de disco com pratos de ferro da marca H. G. Herzog, modelo HSM100.

As amostras 1 e 2 foram retiradas do tratador de óleo visualizado na fotografia da figura 3.1. A amostra 3 foi retirada do tubo prata em T, mostrado na figura 3.2. A amostra 4 foi coletada de uma incrustação contida num tubo verde e prata em L. As taxas de dose medidas e relativas a cada uma das amostras foram respectivamente: 0,8 $\mu\text{Sv/h}$ (para as amostras 1 e 2), 10 $\mu\text{Sv/h}$ (para a amostra 3) e 6 $\mu\text{Sv/h}$ (para a amostra 4).



Figura 3.2 – Fotografia de parte de um tubo prata em T

3.2. Preparo das amostras e montagem experimental

Após as amostras serem moídas, procedeu-se à montagem do arranjo experimental.

A instrumentação utilizada para medir a concentração de radônio, no desenvolvimento da presente investigação, pode ser considerada relativamente simples, sendo necessários um detector sólido de traços nucleares (SSNTD), tendo sido escolhido o CR-39, pelas características apresentadas no capítulo anterior, e uma câmara de difusão. Acoplado a cada câmara de difusão, um filtro de papel impede a entrada de outros radioisótopos, exceto o ^{222}Rn , no interior dela.

Nos experimentos realizados na presente pesquisa, aplicou-se o arranjo experimental usado por G. S. Araújo, 2003, constituído de um tubo de PVC com 250 mm de comprimento e 50 mm de diâmetro, contendo uma câmara de difusão com raio de 15 mm, mostrado na figura 3.3.

O aumento do nível de exposição ao radônio, decorrente de materiais do tipo NORM, foi medido mediante a colocação de um volume de cada amostra coletada desse material num dispositivo cilíndrico de PVC, como descrito no parágrafo anterior, aonde se encontra acoplada uma câmara de difusão, na parte superior do tubo, que contém, em

seu interior, um filtro permeável ao ^{222}Rn , posto em contato íntimo com um detector de traços nucleares, CR-39, cuja abertura fica voltada para a amostra, que se encontra no fundo do tubo, conforme o desenho esquemático mostrado na figura 3.3.

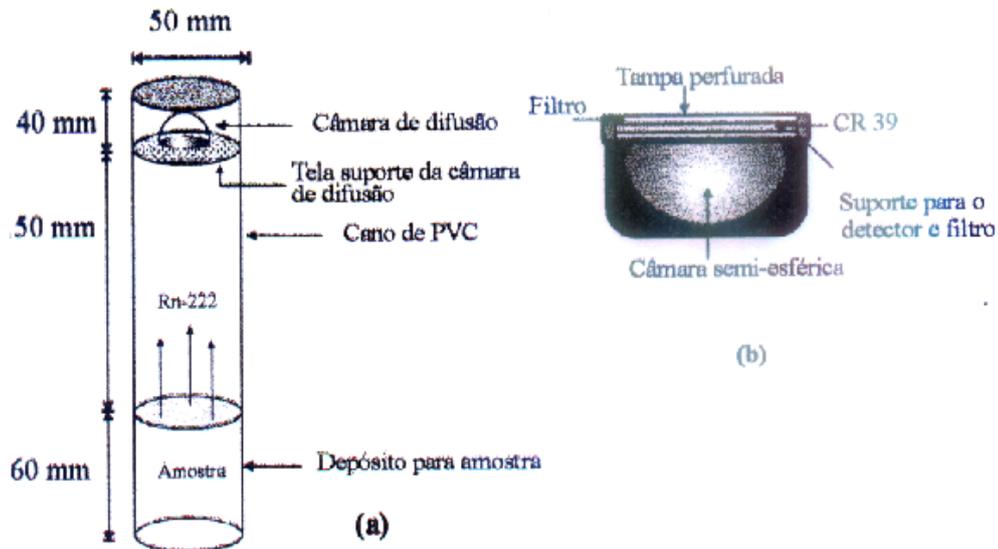


Figura 3.3 – Desenho esquemático do dispositivo usado para medir a concentração de ^{222}Rn emanado pelo material do tipo NORM.

- (a) dispositivo cilíndrico fechado, mostrando a amostra e a câmara de difusão posicionadas.
- (b) secção transversal da câmara de difusão.

O ^{222}Rn emanado da amostra se difunde pelo interior do tubo e atinge o CR-39, no qual as partículas α provenientes do decaimento radioativo registram seus traços. O detector sólido de traços nucleares, CR-39, fabricado pela Pershore Molding, UK, foi usado com 625 μm espessura. Para a execução dos experimentos, a placa original de CR-39 foi cortada em pequenos quadrados com 1 cm^2 de área.

A câmara de difusão, confeccionada em fibra de carbono, tem a forma semi-esférica com 15 mm de raio, permitindo que uma membrana permeável seja acoplada no detector, que funciona como um filtro, conforme mostrado na figura 3.4. A espessura dessa membrana foi determinada, de forma a atrasar a difusão, garantindo, assim, que o ^{220}Rn decaia, antes de atravessá-la. Segundo Ramachadran (1988), esse filtro permite a passagem do ^{222}Rn e evita a passagem do ^{220}Rn para o volume sensível da câmara, numa taxa significativa. Além disso, o filtro também protege o detector da umidade e impede a movimentação de ar dentro da câmara.

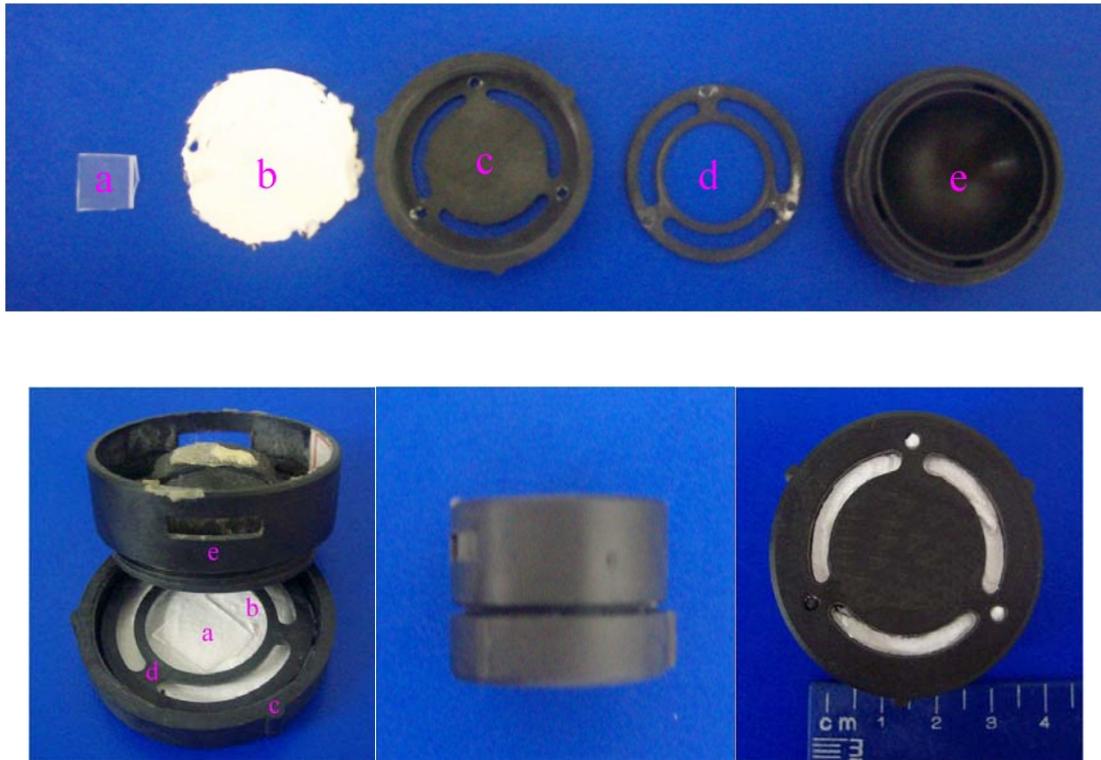


Figura 3.4 – Detalhes da câmara de difusão: (a) detector CR-39; (b) filtro; (c) tampa perfurada; (d) suporte para o detector e o filtro; (e) câmara semi-esférica de raio 1,5 cm.

3.3. Exposição ao radônio

A quantidade medida por um dosímetro de radônio é a concentração de ^{222}Rn em tempo integral. Segundo Urban (1986), a exposição ao radônio, X_{Rn} , em unidades de Bq d m^{-3} , pode ser expressa pela equação 3.1:

$$X_{\text{Rn}} = \int_0^T C(t) dt \quad (3.1)$$

onde:

T é o tempo de irradiação, em dias (d);

$C(t)$ é a concentração de ^{222}Rn , medida pelo sistema mostrado na figura 3.3.

Segundo D. Mazur (1999), a densidade de traços nucleares é proporcional à exposição ao radônio e à concentração de radônio, sendo dada por:

$$C = (N - N_B) / kstM \quad (3.2)$$

onde:

N é o número de traços;

N_B é o número de traços relacionado à radiação de fundo (background);

k é o fator de calibração, em kBq h m⁻³;

s é a área de um campo ótico;

t é o tempo de exposição em horas (h);

M é o número contado de campos.

Para obter o fator de calibração, k, Araújo, G. S. (2003), expôs o detector de traços, CR-39 (625 µm de espessura), a uma concentração conhecida de ²²²Rn, a partir de uma fonte padrão secundário de ²²⁶Ra. Sendo a concentração de ²²²Rn constante no interior do tubo cilíndrico, pode-se considerar que a exposição sobre o CR-39 será constante. Assim sendo, o número de traços revelados no detector plástico estará relacionado à exposição devido ao ²²²Rn. A reta de calibração para o CR-39 foi obtida por Araújo, G.S., ao relacionar o número de traços no CR-39 à exposição ao ²²²Rn. A equação da reta, ajustada aos pontos correspondentes pelo método dos mínimos quadrados, resultou em:

$$X = 0,1713 (N - N_B) - 11,987 \quad (3.3)$$

As amostras 1, 2, 3 e 4 foram expostas por períodos de 7, 14 e 30 dias, respectivamente, totalizando 12 experimentos. Paralelamente, também foram providenciados os experimentos referentes à radiação de fundo (BG) correspondentes, utilizando, para tal, a câmara de difusão, com o CR-39 e o filtro, para 7, 14 e 30 dias, respectivamente, totalizando 3 experimentos.

3.4. Etapa da revelação com ataque químico

Para se determinar a exposição do CR-39 ao ²²²Rn emanado das amostras 1,2,3 e 4, nos períodos respectivos de 7, 14 e 30 dias, empregando-se a equação (3.3), usou-se

as mesmas condições de revelação do detector de traços adotadas por Araújo, G.S. (2003), ou seja, os detectores CR-39 foram submetidos à revelação com ataque químico em solução aquosa de NaOH, 6.25 N, mantidos na temperatura de 70°C durante 5 horas, em banho térmico, numa unidade de banho termostatizado da marca QUIMIS, modelo 215D2. Após a revelação com ataque químico, os traços produzidos pelas partículas α tornaram-se visíveis ao microscópio óptico NIKON E400, com os seguintes aumentos: lente ocular 10x e objetiva 40x. As imagens desses traços no CR-39 foram capturadas com a câmera digital COOLPIX 995 da Nikon. O número de traços devido ao NORM contido nas amostras foi determinado com a ajuda do programa Image Pro Plus 6.2 Processing & Analysis Software.

3.5. Aquisição de Dados

Os dados foram obtidos, a partir de exposições do detector CR-39 às amostras contendo NORM provenientes de petróleo, conforme se descreveu na seção 3.1. Cada amostra permaneceu emanando radiação α sobre os detectores de traços, por períodos de 7, 14 e 30 dias, respectivamente. Em cada uma dessas exposições, foi utilizado o arranjo experimental descrito na seção 3.2. Um total de quatro amostras foram analisadas, podendo ser descritas como se segue:

- 1) Am 1: material proveniente de um tratador de óleo, mostrado na figura 3.1, e encaminhado como sucata para uma siderúrgica. O material após ser raspado das superfícies internas do tratador de óleo, foi previamente moído, tomando a forma de um finíssimo pó (talco), com o objetivo de tornar o meio mais homogêneo e para facilitar a emanação do gás radônio. Depois de moído, o material foi disposto no arranjo experimental ilustrado na figura 3.3 (seção 3.2), colocado no depósito ao fundo do tubo de PVC, onde também se colocou o detector CR-39 dentro da câmara de difusão, localizada na parte superior do tubo. Cada detector CR-39 (foram três detectores) sofreu a exposição ao material da amostra Am 1, nos três períodos mencionados, identificados como: 7 dias (detector 1); 14 dias (detector 2); 30 dias (detector 3).
- 2) Am 2: este material foi retirado de uma outra parte do mesmo tratador de óleo (figura 3.1), de onde foi coletada a amostra Am 1. Da mesma forma que se obteve a amostra Am 1, o material da amostra Am 2, após ser coletado do

tratador de óleo, foi previamente moído, tomando a forma de um talco, visando-se os mesmos objetivos. Depois de moído, o material foi disposto no arranjo experimental ilustrado na figura 3.3 (secção 3.2), colocado no depósito ao fundo do tubo de PVC, onde, também, se colocou o detector CR-39 dentro da câmara de difusão, localizada na parte superior do tubo. Cada detector CR-39 (foram três detectores) sofreu exposição ao material Am 2, sendo identificados como: 7 dias (detector 4); 14 dias (detector 5); 30 dias (detector 6).

- 3) Am 3: este material foi coletado do tubo prata em T (figura 3.2), proveniente de uma refinaria, tendo sido enviado como sucata para uma siderúrgica. Seguindo a mesma metodologia aplicada nos casos anteriores, a amostra foi moída e disposta no arranjo experimental da figura 3.3, onde o detector de CR-39 permaneceu exposto. Da mesma forma que nos casos anteriores, foram expostos três detectores por períodos diferentes, a saber: 7 dias (detector 7); 14 dias (detector 8); 30 dias (detector 9).
- 4) Am 4: este material foi coletado de um tubo verde e prata em L, proveniente de uma refinaria, tendo sido também enviado como sucata para uma siderúrgica. Seguindo a mesma metodologia aplicada nos casos anteriores, a amostra foi moída e disposta no arranjo experimental da figura 3.3, onde o detector de CR-39 permaneceu exposto. Da mesma forma que nos casos anteriores, foram expostos três detectores por períodos diferentes, a saber: 7 dias (detector 10); 14 dias (detector 11); 30 dias (detector 12).

Para se calcular a radiação de fundo (BG), três detectores CR-39 em suas respectivas câmaras de difusão foram expostos ao ar livre, em locais radiologicamente neutros, por períodos de 7 dias (BG1), 14 dias (BG2) e 30 dias (BG3).

3.6. Avaliação dos Dados

Após o período de exposição, cada placa de CR-39 foi submetida à revelação química, com ataque químico, nas condições descritas na secção 3.4, realizada na unidade de banho termostatizado com a posterior captura de imagens, através do conjunto microscópio-câmera digital, cujas disposições físicas podem ser vistas nas figuras 3.4 (a) e (b), respectivamente.



(a)



(b)

Figura 3.4 – Fotografias mostrando as disposições físicas de: (a) Unidade de banho termostatizado da marca QUIMIS modelo 215D2; (b) microscópio óptico NIKON E400 acoplado à câmera digital COOLPIX 995 da Nikon.

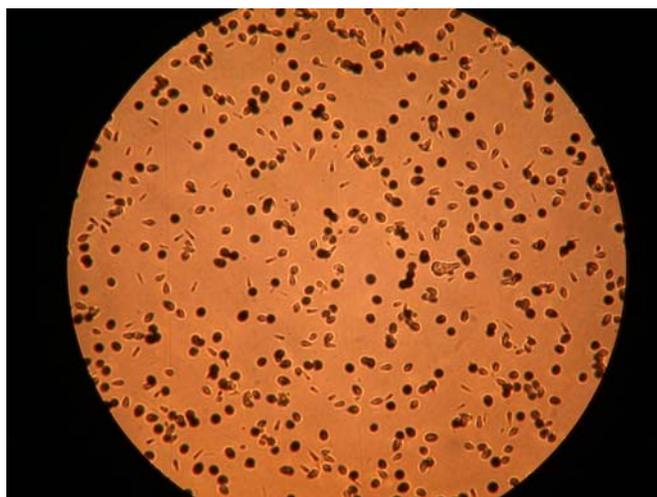


Figura 3.5 – Imagem de traços de partículas alfa, observada no microscópio óptico Nikon E400 com ampliação de 400 vezes.

Imagens, como a representada na figura 3.5, foram capturadas por uma câmera digital COOLPIX 995 da Nikon e arquivadas em pastas do computador, para posterior avaliação e procedimentos de contagem dos traços pelo programa computacional Image Pro Plus.

Dentre os recursos disponíveis no Image Pro Plus, algumas funções se destacaram para permitir a contagem dos traços e uma maior velocidade de análise. Primeiramente, foi usada a função “Enhance-Equilize-Best Fit”, para melhorar o realce da imagem. Em seguida, aplicou-se o filtro “Process-Filters-Enhancement-HiGauss”, uma função gaussiana que diminui o ruído na imagem. Após este pré-processamento, foram aplicados dois operadores morfológicos: “Erode e Dilate”. O operador “Erode” foi utilizado para eliminar detalhes irrelevantes, e abrir intervalos em regiões de conexão indesejada. Já o operador “Dilate” é utilizado, principalmente, para preencher as lacunas indesejáveis na imagem. Por fim, a contagem de traços é feita na função “Count /Size”, com os seguintes parâmetros e respectivas funções:

“smoothing” - suavização para remover pequenos detalhes, suavizando os contornos.

“Fill holes ” – que preenche os furos dos objetos.

“Select Measurement-area” – limita a área dos objetos contados.

“Watershed Split” – segmentação por divisores de água, aplicado para a extração e separação de objetos com características ligeiramente uniformes do fundo da imagem.

A título de exemplo a imagem vista na figura 3.6, após ser processada digitalmente, através do programa computacional Image Pro Plus, resultou na imagem observada na figura 3.7, de onde se procedeu a contagem dos traços, após a aplicação dos recursos disponibilizados pelo programa, conforme descritos nesta seção.

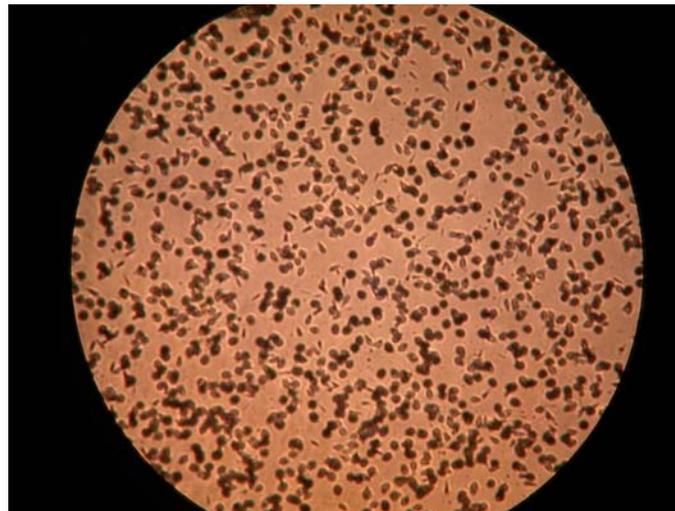


Figura 3.6 – Imagem de traços de partículas alfa, relacionada a uma das amostras de NORM analisadas.

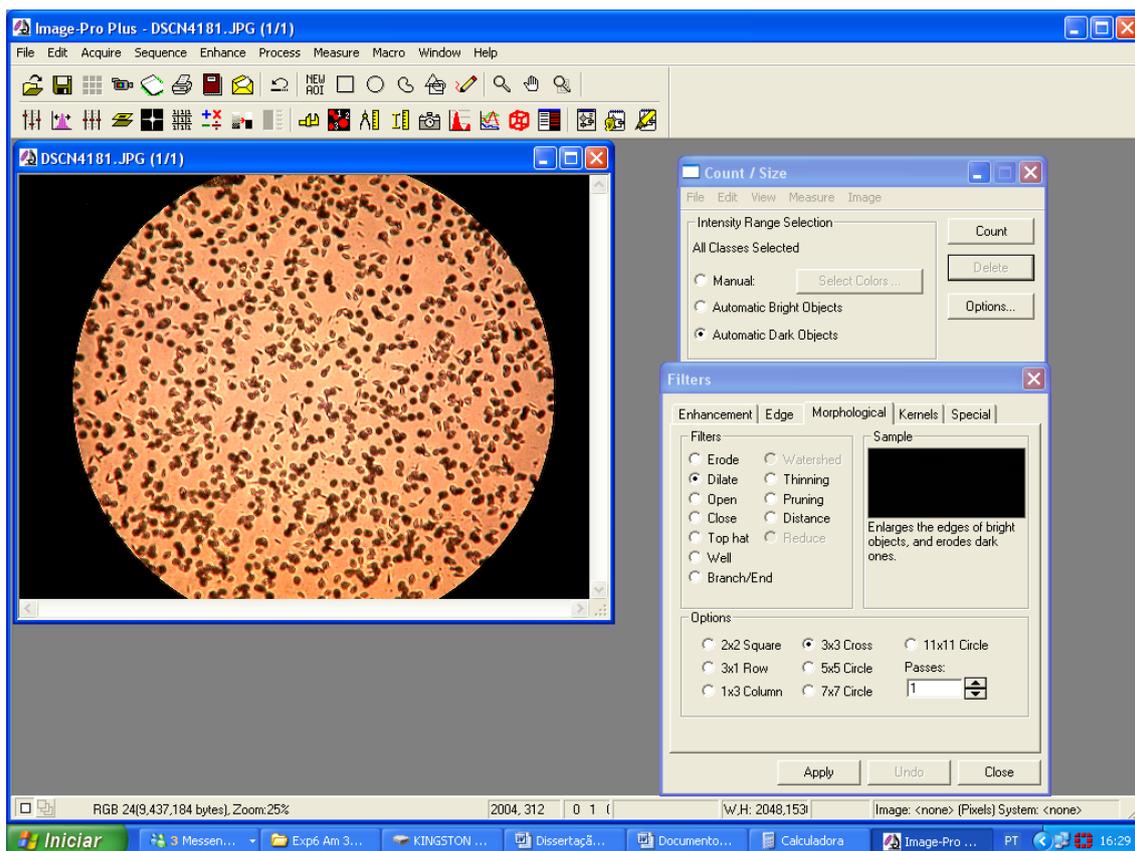


Figura 3.7 – Imagem obtida após processamento digital realizado com o Image Pro Plus e visão global da tela fornecida por este programa computacional.

3.7. Validação da contagem de traços nucleares usando o programa computacional Image Pro Plus

A validação do emprego do programa Image Pro Plus, na contagem automática dos traços nucleares, foi conduzida da seguinte forma:

- Primeiro, foram selecionadas 14 imagens de diferentes níveis de densidade de traços (baixa, média e alta);
- Os traços presentes em cada imagem foram contados manualmente por três pessoas diferentes;
- Em seguida, as 14 imagens selecionadas foram submetidas ao processamento digital e contagem automática pelo programa Image Pro Plus;
- Para cada imagem, foi feita a média das contagens realizadas manualmente pelas três pessoas e calculado o desvio padrão médio;
- A seguir, foi calculado o erro da contagem do programa em relação à média da contagem manual, para cada imagem;

- Finalmente, foi calculada a dispersão relativa (D.R.) em %.

Apresenta-se abaixo a tabela 3.1, com os dados estatísticos referentes à etapa de validação do Image Pro Plus.

Tabela 3.1 – Dados referentes às contagens realizadas na validação do programa Image Pro Plus.

Imagem	IPP	X	σ	Er_{IPP}	Dispersão relativa (%)
1	49	53	1,6	4	$(4/49) \times 100 = 8,16$
2	49	53,7	1,9	4,7	9,59
3	65	68,7	4,8	3,7	5,69
4	69	73,7	0,9	4,7	6,81
5	74	75,3	3,3	1,3	1,76
6	93	99,3	3,1	6,3	6,77
7	45	42,3	1,3	2,7	6,00
8	30	31	0,8	1,0	3,33
9	32	31,3	0,5	0,7	2,19
10	29	29	0,8	0	0
11	31	27,7	0,5	3,3	10,65
12	25	27,3	0,5	2,3	9,2
13	36	33,3	2,5	2,7	7,5
14	22	25	0,8	3	13,63

IPP – contagem automatizada realizada pelo Image Pro Plus;

X – média das contagens realizadas manualmente por três pessoas diferentes;

σ - desvio padrão da média das contagens;

Er_{IPP} – erro da contagem IPP.

Capítulo 4

Resultados

Nas seções deste capítulo, serão apresentados os resultados obtidos, decorrentes das exposições descritas no capítulo 3. Amostras contendo NORM proveniente de petróleo foram investigadas e os resultados encontrados estão apresentados e discutidos nas seções que se seguem.

4.1. Cálculo da exposição ao Radônio

Como já visto no capítulo 3, o ^{222}Rn emanado das amostras de material do tipo NORM coletadas atinge o CR-39, onde as partículas α provenientes de seu decaimento radioativo registram seus traços. Empregando-se a equação 3.3, obtêm-se as exposições ao radônio, correspondentes a cada uma delas.

$$X = 0,1713 (N - N_B) - 11,987 \quad (3.3)$$

onde:

N é o número de traços por cm^2 ;

N_B é o número de traços relacionado à radiação de fundo (background) por cm^2 ;

X é obtido em kBq.h/m^3 .

Substituindo-se os valores das densidades superficiais de traços de partículas α emanadas pelo ^{222}Rn contido nas amostras de material do tipo NORM analisadas, apresentados na tabela 4.2, na equação 3.3, obtêm-se as exposições ao radônio correspondentes, listadas na última coluna da tabela 4.2.

4.2. Resultado das contagens de traços

Após o período de exposição dos detectores CR-39 às emanações α provindas do ^{222}Rn , durante 7 dias, 14 dias e 30 dias, contido nas amostras Am 1, Am 2, Am 3 e Am 4, conforme descritos na seção 3.5, registraram-se as densidades superficiais de traços (número de traços de partículas α em 1 cm^2 de detector) na tabela 4.2.

Tabela 4.2 – Densidades superficiais de traços de partículas α emanadas pelo ^{222}Rn contido nas amostras.

Tipo de Amostra	Período (dias)	Densidade de superficial de traços (# traços/cm ²)	Exposição ao ^{222}Rn [kBqh/m ³]
Am 1	7	2313 ± 151	228,18 ± 35,97
	14	6541 ± 427	768,46 ± 95,24
	30	6591 ± 430	468,85 ± 115,97
Am 2	7	2476 ± 161	256,10 ± 37,69
	14	4649 ± 303	444,36 ± 74,00
	30	3930 ± 256	13,02 ± 86,16
Am 3	7	393553 ± 25660	67247,60 ± 4405,66
	14	788549 ± 51413	134726,43 ± 8829,14
	30	1113175 ± 72579	190026,70 ± 12475,09
Am 4	7	18863 ± 1230	3063,20 ± 220,81
	14	31896 ± 2080	5111,80 ± 378,40
	30	54074 ± 3526	8602,70 ± 646,31
BG 1	7	911 ± 59	-
BG 2	14	1985 ± 129	-
BG 3	30	3784 ± 247	-

Podemos, ainda, colocar os resultados obtidos nos experimentos realizados sob a forma de gráficos, para facilitar a visualização e proporcionar uma leitura simultânea de todos os resultados das quatro amostras investigadas. Seguem, então, as figuras: 4.1, referente aos 12 experimentos das quatro amostras, simultaneamente; 4.2, referente somente às amostras Am 1 e Am 2; 4.3, referente à amostra Am 3 e 4.4, referente à amostra Am 4.

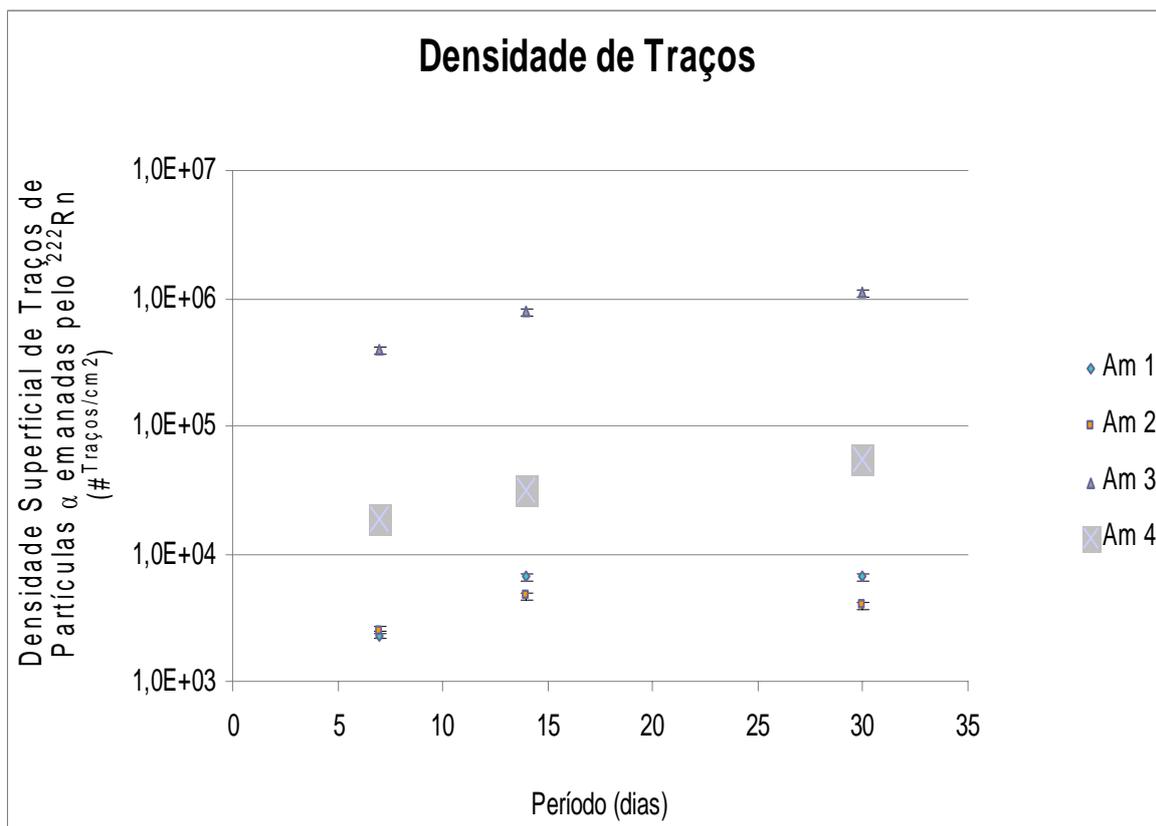


Figura 4.1 – Densidades superficiais de traços de partículas alfa emanadas pelo ^{222}Rn contido nas amostras Am 1, Am 2, Am 3 e Am 4.

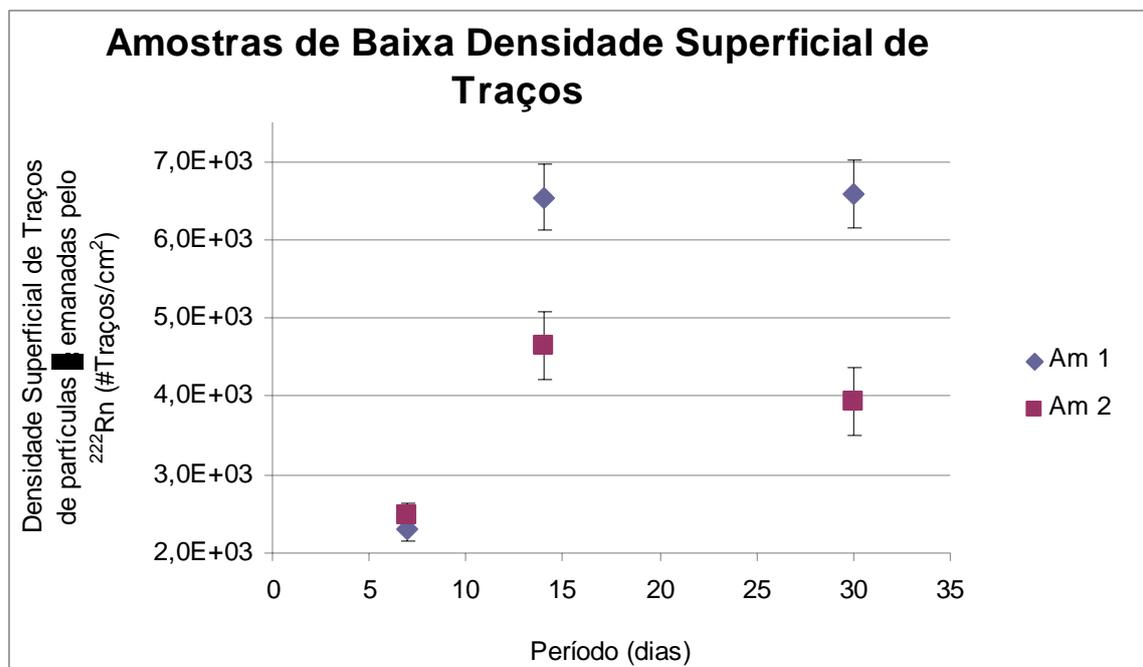


Figura 4.2 – Densidades superficiais de traços de partículas alfa emanadas pelo ^{222}Rn contido nas amostras Am 1 e Am 2.

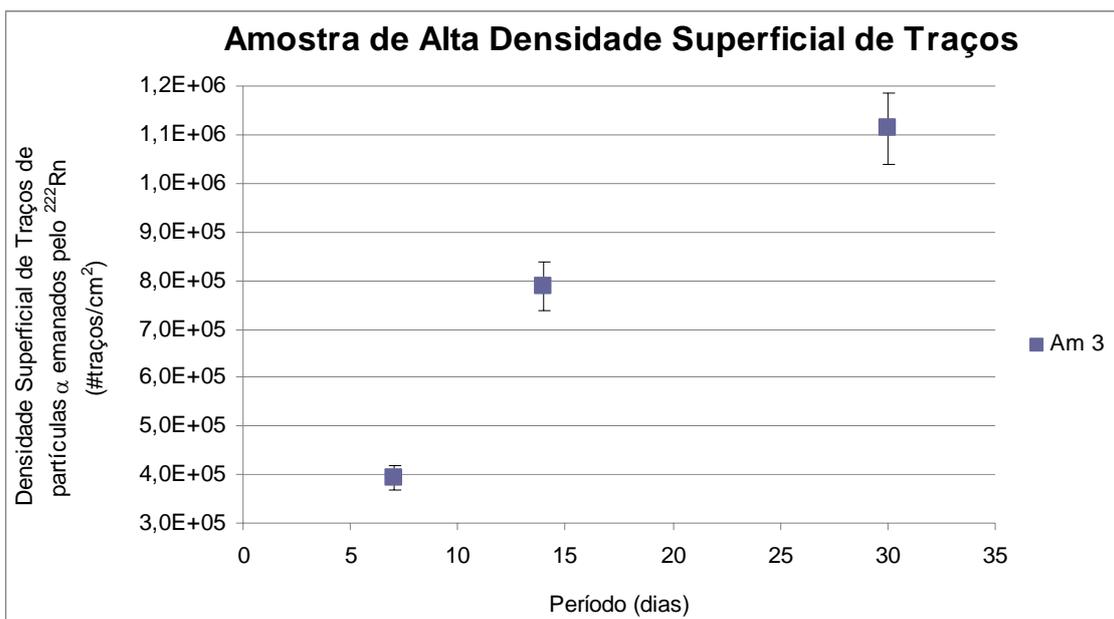


Figura 4.3 – Densidades superficiais de traços de partículas alfa emanadas pelo ^{222}Rn contido na amostra Am 3.

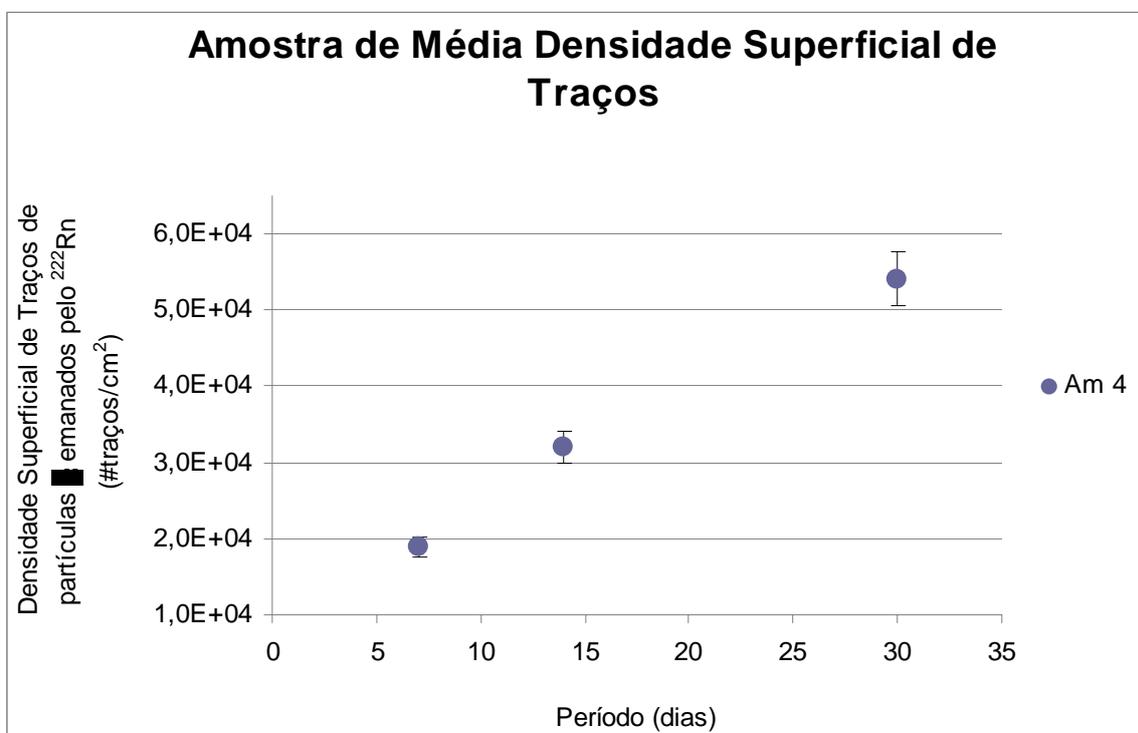


Figura 4.4 – Densidades superficiais de traços de partículas alfa emanadas pelo ^{222}Rn contido na amostra Am 4.

Capítulo 5

Conclusões e Sugestões

Contaminações com NORM foram observadas em equipamentos provenientes da indústria do petróleo, que foram descartados e comercializados para reciclagem.

A presença de rádio e radônio em equipamentos da cadeia produtiva de óleo e gás produz materiais contaminados com resíduos radioativos que podem resultar em potencial risco de exposição dos trabalhadores, tanto da área de petróleo quanto na área de reciclagem metálica.

Com a finalidade de se validar o emprego do programa Image Pro Plus para a contagem automática de segmentos, identificados como traços nucleares, em todos os experimentos desta investigação, foi conduzido o seguinte procedimento: antes de se realizar as contagens diretamente com o programa, selecionaram-se quatorze imagens. Os traços presentes nelas foram contados por três pessoas diferentes, antes de se efetuar as contagens com o programa Image Pro Plus. A comparação entre o número médio de contagens de traços por meio manual e por meio automático constatou a adequação do programa Image Pro Plus para efetuar as contagens dos traços de partículas alfa emanadas pelo ^{222}Rn presente nas amostras contaminadas por NORM.

Pelas contagens de traços nas amostras 1 e 2 obtidos, entretanto, observou-se uma discrepância nos valores da taxa de exposição do CR-39 ao radônio, no período de 30 dias, quando comparado aos resultados encontrados, relativos aos períodos de 7 e 14 dias, quando se utilizou o programa Image Pro Plus. Em princípio, tal fato gerou certa dúvida quanto à veracidade da contagem realizada pelo Image Pro Plus. Ao se proceder a uma contagem manual por microscopia ótica, na área total do detector, comprovou-se a redução do número de traços de partículas alfa nas duas amostras (1 e 2) para uma exposição de 30 dias, levando-se a crer na provável ocorrência de um vazamento do gás radônio na câmara; ou, ainda, em função da meia-vida curta do ^{222}Rn (3,8 dias), em relação ao período de 30 dias.

As amostras 1 e 2, provenientes de tratador de óleo, oriundo de uma instalação de petróleo, apresentaram uma taxa de emissão de ^{222}Rn pouco acentuada em relação à radiação natural presente no meio ambiente. Tal fato já era esperado, uma vez que o levantamento radiométrico, utilizando medidor de radiação Exploranium modelo GR-

130, no local onde foram colhidas as amostras registrou pouca variação, perante o nível de radiação natural na região.

Uma grande densidade de traços nas amostras 3 e 4 foi observada, devido a taxa de emanção elevada, em função dessas amostras possuírem uma alta concentração de NORM, que leva a suspeitar que está se propagando a contaminação com NORM até a refinaria, uma vez que as referidas amostras são provenientes de incrustações coletadas de tubulações oriundas de uma refinaria e enviadas como sucatas para uma indústria siderúrgica.

Durante a investigação, observou-se que, quando se trata de amostras que apresentem alta densidade de traços com diferentes morfologias (aglomerações de traços, etc), e defeitos na ordem de grandeza da área dos traços (arranhões e/ou traços com morfologia semelhante ao de uma partícula alfa), há uma limitação no reconhecimento pelo programa Image Pro Plus, ocasionando contagens espúrias. Apesar de ter sido determinada uma limitação para a área ocupada por cada traço, alguns defeitos do plástico são da ordem de grandeza dos traços de partículas alfa e, portanto, não se podem utilizar filtros digitais nas imagens obtidas por área varrida, sob pena de se deixar de contabilizar os traços nucleares de interesse. O sistema de contagem de traços teria uma maior confiabilidade, para o caso de amostras muito contaminadas, se fosse empregada uma metodologia capaz de diferenciar os defeitos inerentes ao plástico daqueles decorrentes das partículas alfa, como aquelas que empregam técnicas de Inteligência Artificial.

Como não se tem a garantia de que as amostras são provenientes da mesma cadeia de tratamento, leva-se a crer que dependendo do campo ou poço em que é feita a extração do petróleo, pode ocorrer uma contaminação por NORM em toda a cadeia, chegando até a refinaria, como se observou, nas amostras 3 e 4, oriundas de uma refinaria.

No caso das amostras provenientes da estação de pré-tratamento e bombeamento de óleo e gás, não se observou uma elevada emanção de radônio, ficando praticamente ao nível da radiação natural, demonstrando a possibilidade de não ter ocorrido uma contaminação por NORM nas amostras, ou dela ser desprezível. Provavelmente, tal resultado foi obtido devido a cada amostra ser proveniente de poços com formações geológicas distintas em que se encontra o reservatório de petróleo.

Tendo sido o método eficiente para a análise das amostras em foco, quando há de baixa a média concentração de traços de partículas alfa, com morfologias bem definidas,

havendo apenas uma limitação, quando a amostra possui uma alta concentração de traços de partículas alfa e diferentes morfologias, sugere-se que:

- Seja realizada uma análise por meio de técnicas de Inteligência Artificial, para o caso de amostras com alta densidade de traços e morfologias diferentes, eliminando assim as contagens espúrias;
- Seja realizado um estudo de toda a cadeia, desde a extração até a distribuição do petróleo, em poços distintos de diferentes campos, com respectivos estudos geológicos dos mesmos, a fim de se verificar se há contaminação e qual o nível da mesma.

A legislação nacional atual é incipiente no tocante ao licenciamento de locais de gerenciamento e armazenamento de NORM e TENORM, limitando-se apenas a uma posição regulatória à norma de Licenciamento de instalações radiativas, definindo somente a jurisdição da matéria para a CNEN. Dessa forma, faz-se necessário o estabelecimento de um marco regulatório para a referida prática.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

AL-JARALAH, M. I. *et al.* “Determination of radon exhalation rates from tiles using active and passive techniques”. *Radiation Measurement* 34, pp 491-495, 2001.

AMERICAN PETROLEUM INSTITUTE, *A Naturally Occurring Radioactive Material (NORM) Disposal Cost Study*. API Publication 7100, Washington, D.C., 1996.

ARAÚJO, G. S. *Estudo dos níveis de emissão do ²²²Rn de alguns materiais de construção civil e áreas públicas*. Tese de Mestrado, COPPE/UFRJ, Rio de Janeiro, 2003.

BANJANAC, R. *et al.* "Indoor radon measurement by nuclear track detectors: application in secondary schools". *Facta Universitatis* vol. 4 n. 1, pp93-100, 2006.

CAMPOS, M. P.; PECEQUILO, B. R. S. “Exposure assessment due to building materials in ordinary houses at São Paulo, Brazil”. *Rev. Bras. Pesq. Des.*, vol. 5, n. 2, 2003.

CASSELS, B.; WAITE, A. “Regulatory management of NORM wastes from petroleum exploration activities in the Northern Territory”. *Radiation Protection in Australia* 18 (1), pp 16-34, 2001.

DURRANI, S. A.; BULL, R.K. *Solid state nuclear track detection principles, methods and applications*. Pergamons Press, Grã-Bretanha, 1987.

ENGE, W. “Introduction to Plastic Nuclear Track Detectors”. *Nuclear Tracks*, vol. 4, Nº 4, pp 283-308, Pergamons Press, Grã-Bretanha, 1980.

FLEISCHER, L. R. “Radon in the environment – opportunities and hazards”. *Nuclear Tracks Radiation and Measurement*, vol. 14, n. 14, pp 421-435, Grã-Bretanha, 1998.

GAZINEU, M.H.P.; ARAÚJO, A.A.; BRANDÃO, Y.B.; HAZIN, C.A.; GODOY, J.M.O. “Radioactivity concentration in liquid and solid phases of scale and sludge generated in the petroleum industry”. *Journal of Environmental Radioactivity* 81, pp 47-54, 2005.

GAZINEU, M.H.P.; HAZIN, C.A. “Radium and potassium-40 in solid wastes from the oil industry”. *Applied Radiation and Isotopes* 66, pp 90-94, 2008.

GOLDAMMER, W. “Demonstrate the safety of disposal facilities for mining and minerals processing waste”. In: *International Conference on the Safety of Radioactive Waste Disposal (IAEA)*, pp. 271-281, Tokyo, Japan, 3-7 Oct. 2005.

GRAY, P.R.; GRAY, P. & Assoc. “NORM contamination in the petroleum industry”. In: *SPE 22880, 66th. Annual Technical Conference and Exhibition of the Society of Petroleum Engineers*, pp. 637-644, Dallas, Texas (U.S.A.), Oct. 6-9, 1991.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, *Extent of environmental contamination by Naturally occurring radioactive material (NORM) and technological options for mitigation*. Technical Reports Series, n. 419, IAEA, Vienna, 2003.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, *Neutron Monitoring for Radiological Protection*. Tech. Rep. Series, n. 252, IAEA, Vienna, 1985.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, *Radiation Protection and the Management of Radioactive Waste in the Oil and Gas Industry*. Safety Reports Series, n. 34, IAEA, Vienna, 2006.

IOANNIDES, K. *et al.* “Soil gas radon: a tool for exploring active fault zones”. *Applied Radiation and Isotopes* 59, pp. 205-213, 2003.

JAMIL, K. *et al.* “Estimation of radon concentrations in coal mines using a hybrid technique a calibration curve”. *Journal of Environmental Radioactivity* 54, pp. 415-422, 2001.

KHAN, A. J. *et al.* “Calibration of a CR-39 plastic track detector for the measurement of a radon and its daughters in dwellings”. *Nuclear Track Radiation Measurement*, vol. 17, n. 4, pp. 497-502, 1990.

KULLAB, M. “Assessment of radon-222 concentrations in buildings, building materials, water and soil in Jordan”. *Applied Radiation and Isotopes* 62, pp. 765-773, 2005.

LOPES, J. D. R. *Caracterização morfológica e análise quantitativa de bactérias in vitro por técnicas nucleares de medidas*. Tese de Doutorado, COPPE/UFRJ, Rio de Janeiro, 2001.

MATTA, L. E. de C. *Aspectos radiológicos ocupacionais relacionados à presença de radionuclídeos naturais em estações de extração e produção de petróleo*. Tese de Doutorado, COPPE/UFRJ, Rio de Janeiro, 2001.

MAZUR, D.; JANIK, M.; OLKO, P.; WAKON, J.S. “Measurements of radon concentration in soil gas by CR-39 detectors”. *Radiation Measurement* 31, pp. 295-300, 1999.

MISDAQ, M. A. “Radon, thoron and their progenies measured in different dwelling rooms and reference atmospheres by using CR-39 and LR-115 SSNTD”. *Applied Radiation and Isotopes* 59, pp. 273-280, 2003.

MISHRA, R. *et al.* “A better understanding of the background of CR-39 detectors”. *Radiation Measurement* 40, pp. 325-328, 2005.

MOHANKUMAR, M.N. “Concerns on the health effects of low-dose ionizing radiations from naturally occurring radioactive materials (NORM)”. In: *JAERI-Conf 2005*, pp. 187-193, Japan, 2005.

NEMAN, R. S., *Medida da contaminação radioativa do ar ambiental por ^{222}Rn e filhos em residências de Campinas-SP, Brasil*. Tese de Mestrado, IFGW/UNICAMP, Campinas, 2000.

PAVIM, A. X.; ROLLOF, M. L. *Curso de Processamento e Análise de Imagens*. ENECA, Florianópolis, 2005.

RIO DOCE, A. P. C. *Determinação da taxa de exalação de ^{222}Rn em materiais de construção*. Tese de Mestrado, COPPE/UFRJ, Rio de Janeiro, 1997.

SANTOS, C. E. L. dos. *Determinação dos processos de enriquecimento e das concentrações de radônio em minas subterrâneas de fluorita e carvão do Estado de Santa Catarina: critérios para avaliação dos riscos radiológicos*. Dissertação de Mestrado, IG/UFRGS, Porto Alegre, 2008.

SMITH, K.P.; BLUNT, D.L.; Williams, G.P.; ARNISH, J.J.; PFINGSTON, M.; HEBERT, J.; HAFFENDER, R.A. *An assessment of the disposal of petroleum industry NORM in Nonhazardous landfills*. U.S. Department of Energy, DOE/BC/W-31-109-ENG-38-8, 1999.

SMITH, K.P.; BLUNT, D.L.; ARNISH, J.J. *Potential radiological doses associated with the disposal of petroleum industry NORM via Landspreading*. U.S. Department of Energy, DOE/BC/W-31-109-ENG-38-5, 1998.

U. S. ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY, *Evaluation of EPA's Guidelines for Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Materials (TENORM)*. EPA 402-R-00-01, 2000.

VEIL, J. A. *Update on cavern disposal of NORM-contaminated oil field wastes*. Ground Water Protection Council 98 Annual Forum, ANL/EA/CP-97318, 1998.

WHITE, G.J.; ROOD, A.S. *Radon emanation from non-contaminated pipe scale, soil, and sediment at petroleum industry sites*. U.S. Department of Energy, DOE/ID/13223-2, 1999.