

ODREĐIVANJE PRIRODNIH ALFA RADIONUKLIDA U KOMERCIJALNO DOSTUPNOJ PITKOJ I MINERALNOJ VODI

*Martina Rožmarić Mačefat¹, Ljudmila Benedik², Matea Rogić¹ i Delko
Barišić¹*

¹ Laboratorij za radioekologiju, Institut Ruđer Bošković, Zagreb, Hrvatska

² Odsek za znanosti o okolju, Institut Jožef Stefan, Ljubljana, Slovenia
e-mail: rozmar@irb.hr

UVOD

Diljem svijeta obična vodovodna voda zamjenjuje se komercijalno dostupnim prirodnim izvorskim i mineralnim vodama koje se koriste i za proizvodnju raznih bezalkoholnih pića. Upravo zbog povećane potrošnje kao i činjenice da izlaganje prirodnim izvorima doprinosi više od 98 % ukupnom ozračenju populacije, potrebno je odrediti ukupnu efektivnu dozu primljenu konzumacijom ovih proizvoda te odrediti doprinose pojedinih prirodnih radionuklida ukupnoj efektivnoj dozi. Glavni doprinos daju radionuklidi uranijevog i torijevog radioaktivnog niza i to sljedećim redoslijedom: ^{210}Po > ^{228}Ra > ^{210}Pb > ^{226}Ra > ^{234}U > ^{224}Ra > ^{235}U . Uzimajući u obzir važnost vode za ljudski život kao i potrebu za što manjim izlaganjem zračenju nužna je njena radiološka kontrola. Tako su maksimalne dozvoljene koncentracije aktivnosti radionuklida u vodi za piće propisane od strane Svjetske zdravstvene organizacije [1] i iznose 10 Bq/L za ^{238}U , 1 Bq/L za ^{234}U , ^{224}Ra i ^{226}Ra te 0,1 Bq/L za ^{210}Po , ^{228}Ra i ^{210}Pb .

Stoga je cilj ovog rada određivanje koncentracija aktivnosti alfa emitera te procjena ukupne godišnje efektivne doze od alfa emitera koju odrasla osoba primi konzumacijom komercijalno dostupnih prirodnih izvorskih i mineralnih voda s područja Hrvatske.

MATERIJALI I METODE

U radu su analizirani uzorci komercijalno dostupnih prirodnih izvorskih i mineralnih voda proizvedenih u Hrvatskoj. [2]

Uranijevi radioizotopi prekoncentrirani su iz uzoraka sutaloženjem sa $\text{Fe}(\text{OH})_3$ te odijeljeni od smetajućih elemenata upotrebom UTEVA smole (Eichrom Industries Inc.) uz određivanje iskorištenja pomoću ^{232}U . [3] Za pripremu alfa izvora korištena je mikroprecipitacija s NdF_3 . [4,5]

Procedura za određivanje ^{226}Ra temeljila se na sutaloženju $\text{Pb}(\text{Ra})(\text{Ba})\text{SO}_4$ uz određivanje iskorištenja pomoću ^{133}Ba [6] dok je ^{210}Po određivan kao što je opisano u [2].

Za mjerenje aktivnosti korišteni su alfa spektrometri s PIPS poluvodičkim detektorima aktivne površine 450 mm^2 i efikasnošću od 28 % (IJS) odnosno 300 mm^2 i efikasnošću od 22 % (IRB). Alfa detektori su kalibrirani standardnim izvorom koji sadrži ^{238}U , ^{234}U , ^{239}Pu i ^{241}Am (Analytics). Za mjerenje ^{133}Ba korišten je koaksijalni HPGe detektor (IJS).

REZULTATI

Tablica 1. Koncentracije aktivnosti alfa emitera u prirodnim izvorskim (IV) i mineralnim (MV) flaširanim vodama proizvedenima u Hrvatskoj s izraženom proširenom mjernom nesigurnošću ($k = 2$)

Oznaka uzorka	$A(^{238}\text{U}) / \text{mBq L}^{-1}$	$A(^{234}\text{U}) / \text{mBq L}^{-1}$	$A(^{226}\text{Ra}) / \text{mBq L}^{-1}$	$A(^{210}\text{Po}) [2] / \text{mBq L}^{-1}$
IV1	$6,5 \pm 0,3$	$7,3 \pm 0,4$	$3,5 \pm 0,3$	$0,8 \pm 0,1$
IV2	$11,0 \pm 0,6$	$16,0 \pm 0,8$	$38,1 \pm 1,5$	$2,3 \pm 0,3$
IV3	$5,1 \pm 0,7$	$7,7 \pm 0,8$	$0,71 \pm 0,17$	$0,6 \pm 0,1$
IV4	$5,1 \pm 0,6$	$9,0 \pm 0,9$	$1,3 \pm 0,2$	$0,51 \pm 0,04$
IV5	$13,1 \pm 1,5$	$36,5 \pm 3,7$	$10,0 \pm 1,5$	$0,9 \pm 0,3$
IV6	$6,6 \pm 0,8$	$9,6 \pm 1,1$	$1,4 \pm 0,2$	$2,1 \pm 0,2$
IV7	$3,4 \pm 0,3$	$4,7 \pm 0,3$	$4,5 \pm 0,3$	$0,6 \pm 0,1$
IV8	$14,6 \pm 1,5$	$21,5 \pm 2,1$	$1,3 \pm 0,3$	$3,0 \pm 0,6$
IV9	$6,3 \pm 0,8$	$7,8 \pm 0,9$	$0,67 \pm 0,17$	$1,1 \pm 0,3$
MV1	$6,7 \pm 0,7$	$6,4 \pm 0,7$	$52,1 \pm 2,5$	$0,7 \pm 0,1$
MV2	$10,7 \pm 1,0$	$15,3 \pm 1,2$	$36,7 \pm 1,5$	$0,7 \pm 0,1$
MV3	$2,1 \pm 0,3$	$7,3 \pm 0,7$	$37,8 \pm 1,4$	$0,20 \pm 0,03$

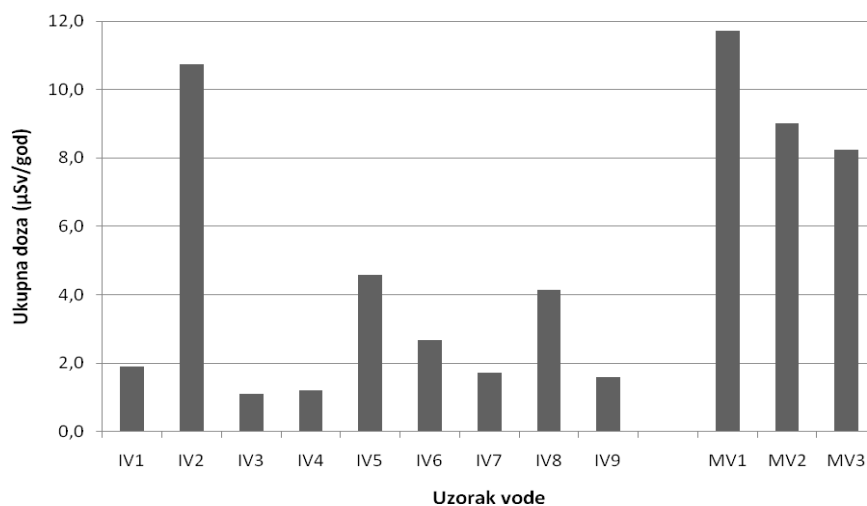
Iz rezultata prikazanih u Tablici 1. vidljivo je da su koncentracije aktivnosti ^{238}U u rasponu (2,1 - 14,6) mBq/L dok su za ^{234}U (4,7 - 36,5) mBq/L. Vrijednosti koncentracija aktivnosti u prirodnim izvorskim i mineralnim vodama bitno se ne razlikuju, a također su i znatno niže u

odnosu na dozvoljene vrijednosti. [1,7] Koncentracije aktivnosti ^{226}Ra kreću se u rasponu (0,67 - 52,1) mBq/L pri čemu su najviše izmjerene u mineralnim vodama te samo jednoj prirodnoj izvorskoj vodi (IV2) čiji je izvor u području sjeverne Hrvatske koje je poznato po termalnim izvorima.

Na temelju dobivenih rezultata za koncentracije aktivnosti alfa emitera prikazanih u Tablici 1. procijenjene su primljene godišnje efektivne doze za odrasle. Prema WHO [1] pretpostavljena je godišnja konzumacija od 730 L vode (prosječno 2 L vode dnevno) i za račun su uzeti dozni faktori za relevantne radionuklide koji su dani u Tablici 2. [8]

Tablica 2. Dozni faktori (mSv Bq^{-1}) za određene radionuklide (odrasli)

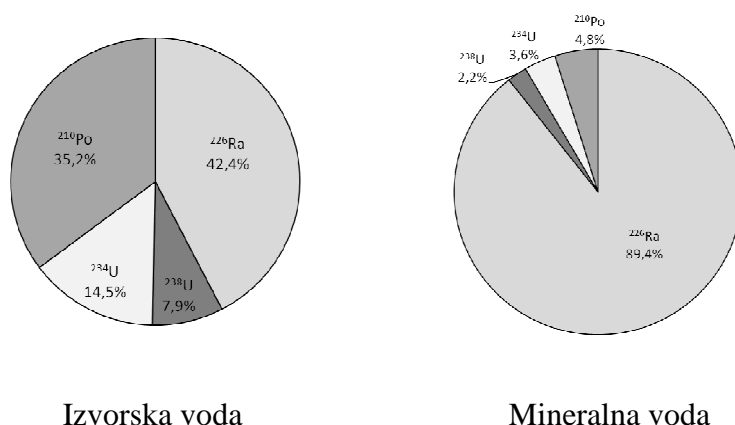
radionuklid	^{238}U	^{234}U	^{226}Ra	^{210}Po
dozni faktor	$4,5 \times 10^{-5}$	$4,9 \times 10^{-5}$	$2,8 \times 10^{-4}$	$1,2 \times 10^{-3}$



Slika 1. Ukupne godišnje efektivne doze primljene od alfa emitera za odrasle osobe prikazane za prirodne izvorske i mineralne vode

Na Slici 1. prikazane su izračunate ukupne godišnje efektivne doze za odrasle koje su vrlo niske i kreću se u rasponu (1,11 - 11,7) $\mu\text{Sv/god}$. Naime ukoliko bi se tijekom jedne godine konzumirala samo voda s najvišom efektivnom dozom, postigla bi se vrijednost od 11,7 $\mu\text{Sv/god}$ što je svega 12 % maksimalne dozvoljene doze od 0,1 mSv.[1]

Na Slici 2. prikazana je analiza doprinosa pojedinih alfa emitera prosječnoj godišnjoj ukupnoj efektivnoj dozi za konzumaciju isključivo izvorskih, odnosno mineralnih voda. ^{226}Ra najviše doprinosi ukupnoj dozi u mineralnim vodama s čak 89,4 % jer je njegova koncentracija aktivnosti u tim vodama znatno viša u odnosu na prirodne izvorske vode u kojima mu je i doprinos znatno niži (42,4 %) i gotovo podjednak doprinosu ^{210}Po (35,2 %). ^{210}Po je vrlo radiotoksičan pa ima visok dozni faktor te je njegov doprinos velik usprkos izmjerenim niskim koncentracijama aktivnosti. ^{238}U i ^{234}U manje su radiotoksični, a njihovi doprinosi ukupnoj efektivnoj dozi su niski i podjednaki za oba tipa uzoraka. Zbog ranije spomenute visoke koncentracije ^{226}Ra , također je primijećen sniženi udio izotopa uranija u mineralnim vodama u odnosu na prirodne izvorske vode.



Slika 2. Prikaz prosječnog udjela (%) alfa radionuklida u ukupnoj godišnjoj efektivnoj dozi koju prime odrasle osobe konzumiranjem flaširane prirodne izvorske i mineralne vode

ZAKLJUČAK

Iz rezultata prikazanih u ovom radu vidljivo je da su koncentracije aktivnosti alfa emitera ($^{234,238}\text{U}$, ^{226}Ra i ^{210}Po) u prirodnim izvorskim i mineralnim vodama proizvedenima u Hrvatskoj vrlo niske što za posljedicu ima i vrlo niske izračunate ukupne godišnje efektivne doze za odrasle osobe primljene od alfa emitera koje iznose svega nekoliko postotaka maksimalno dozvoljene vrijednosti od 0,1 mSv.

ZAHVALA

Rad je financiran sredstvima Ministarstva znanosti, obrazovanja i športa Republike Hrvatske (bilateralni projekt «Radiokemijske metode za određivanje radionuklida u uzorcima vode») i Ministarstva za visoko školstvo, znanost in tehnologijo Republike Slovenije (bilateralni projekt BI-HR/10-11-007).

LITERATURA

- [1] WHO, 2006 World Health Organisation, Guidelines for Drinking Water Quality, Recommendation, third ed., including the first addendum, vol 1, WHO, Geneva
- [2] Rogić M, Benedik Lj, Rožmarić M, Štok M. Određivanje ^{210}Pb i ^{210}Po u vodama za piće dostupnima na hrvatskom tržištu. Zbornik radova Osmog simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja, 2011.
- [3] Eichrom Technologies, Inc. Analytical Procedures. Uranium and Thorium in Water, 25 April 2001, Rev 1.7
- [4] Hindman F.D, Neodymium fluoride mounting for alpha spectrometric determination of uranium, plutonium and americium. Analytical Chemistry 1983; 55, 2460–2461
- [5] Sill C.W, Williams R.L. Preparation of actinides for alpha spectrometry without electrodeposition. Analytical Chemistry 1981; 53, 415–421
- [6] Lozano J.C, Fernandez F, Gomez J.M.G. Determination of radium isotopes by BaSO_4 , coprecipitation for the preparation of α -spectrometric sources. J. Radioanal. Nucl. Chem, 1997; 223 (1–2), 133–137
- [7] 2001/928/Euratom, Commission recommendation on the protection of the public against exposure to radon in drinking water supplies. Official Journal of the European Communities 2001; C(2001) 4580
- [8] International Basic Safety Standards for Protection against Ionizing Radiation and for Safety of Radiation Sources, IAEA, 1996

DETERMINATION OF NATURAL ALPHA EMITTING RADIONUCLIDES IN BOTTLED DRINKING AND MINERAL WATER

*Martina Rožmarić Mačefat¹, Ljudmila Benedik², Matea Rogić¹, Delko
Barišić¹*

¹Laboratory for Radioecology, Rudjer Boskovic Institute, Zagreb, Croatia

²Department of Environmental Sciences, Jozef Stefan Institute, Ljubljana,
Slovenia

e-mail: rozmar@irb.hr

Natural radionuclides from uranium and thorium decay chains are presented in Earth's crust and are leached by surface and groundwater, respectively. The geological setting strongly influences the occurrence of natural radionuclides in drinking water. Their quantitative determination is interesting from radioecological aspect because of their relatively high radiotoxicity and their importance in the study of cumulative radiation effects on human health.

In the present work alpha emitters (^{234}U , ^{238}U , ^{226}Ra and ^{210}Po) were analysed from all Croatian commercially available drinking and mineral water products, in order to assess the radiation doses from alpha emitting radionuclides. The collected samples originate from various geological regions of Croatia.

Uranium was preconcentrated from water samples by coprecipitation with $\text{Fe}(\text{OH})_3$ at pH 9-10 using an ammonia solution. The radiochemical separation was performed using an UTEVA column. The source for alpha counting was prepared by microcoprecipitation with NdF_3 . For determination of ^{226}Ra in water a coprecipitation procedure with $\text{Pb}(\text{Ra})(\text{Ba})\text{SO}_4$ was used and sources for alpha-particle spectrometry using BaSO_4 as carrier were prepared. Polonium was preconcentrated from large volume of water by MnO_2 and its separation from interfering elements by Sr resin was done. Source for alpha-particle spectrometry using selfdeposition on silver disk was prepared. Radiochemical recovery of the whole radiochemical procedure was determined by ^{232}U , ^{133}Ba and ^{209}Po respectively. The obtained results in all examined waters show that activity concentrations of investigated alpha emitters and their total annual effective dose contributions for adults are a few percent of the recommended guidance levels issued by EC and WHO, respectively.