

Copyright © Wydział Geologii, Geofizyki i Ochrony Środowiska AGH, Kraków 2007



Wydanie publikacji zostało sfinansowane przez Narodowy Fundusz Ochrony Środowiska i Gospodarki Wodnej

Recenzenci: Jadwiga Szczepańska Wojciech Ciężkowski Józef Górski Andrzej Kowalczyk Ewa Krogulec Grzegorz Malina Jerzy Małecki Marek Marciniak Jacek Motyka Marek Nawalany Jan Przybyłek Andrzej Różkowski Andrzej Sadurski Andrzej Szczepański Stanisław Staśko Stanisław Witczak Andrzej Zuber

Redakcja: Andrzej Szczepański, Ewa Kmiecik, Anna Żurek

Teksty artykułów w częściach 2. i 3. zostały wydrukowane z wersji elektronicznej dostarczonej przez Autorów, metodą bezpośredniej reprodukcji (*camera ready*)

Projekt okładki i stron tytułowych: Andrzej Tomaszewski

Na okładce: fragment projektu studni miejskiej we Lwowie z 1906 roku — ze zbiorów prof. **Antoniego S. Kleczkowskiego** (1922–2006)

Korekta: Zespół

Skład komputerowy systemem TEX: pre**TEX**t, www.pretext.com.pl Druk: ROMA-POL, www.romapol.pl

ISBN-13 978-83-88927-16-4

	Chau Nguyen Dinh, Marian Fujak					
	Naturalna promieniotwórczość butelkowanych wód mineralnych Polski Południowej					
	Natural Radioactivity of Bottled Mineral Waters of South Poland					
Słowa kluczowe	butelkowana woda mineralna, naturalna promieniotwórczość, dawki radiologiczne					
Key words	bottled mineral waters, natural radioactivity isotopes, radiological doses					
Abstract	Activities of <sup>238</sup> U, <sup>234</sup> U, <sup>228</sup> Ra, <sup>226</sup> Ra, and <sup>224</sup> Ra as well as total $\alpha$ and $\beta$ activities of 23 bottled mineral waters of south Poland are presented. The activities vary from a few tenth to a few mBqdm <sup>-3</sup> for uranium and to several hundred mBqdm <sup>-3</sup> for radium isotopes. The activities of <sup>40</sup> K were calculated from chemical analyses of potassium and checked for several mineral waters by gamma spectrometry with HPGe detector. Correlations between water mineralization and activities of <sup>40</sup> K, <sup>226</sup> Ra, total alpha and total beta are observed. The radiological annual doses are calculated for all investigated waters assuming the consumption of 2 L per day.					

## 1. Wprowadzenie

Ponad 10 lat temu w Polsce woda mineralna była osiągana tylko w specjalnych uzdrowiskach i nielicznych sklepach, w chwili obecnej jest już dostępna dla całej populacji. Przemysł wody mineralnej bardzo szybko się rozwija zarówno pod względem ilości produkowanej wody, jak i rozmaitości typów wód. Powodem takiego szybkiego rozwoju jest fakt, iż wody mineralne zawierają znaczące ilości jonów korzystnych dla zdrowia takich jak magnez, żelazo, wapń itp., posiadające w wielu przypadkach własności lecznicze. Jednak "każdy medal ma dwie strony", ze wzrostem mineralizacji wzrasta również zawartość naturalnych pierwiastków promieniotwórczych, takich jak rad, uran, polon, itp. Te izotopy nie tylko działają niekorzystnie pod względem biochemicznym ale również radiologicznym. Z tego powodu Międzynarodowa Organizacja Zdrowia (WHO, 1998) wydała zalecenie, że dana woda jest przydatna do spożycia, jeśli roczna dawka wywołana poprzez jej picie w ilości 2 litrów/dzień nie przekraczałaby 0,1 mSv. W praktyce stosuje się taką zasadę, że dana woda nadaje się do konsumpcji, jeśli jej globalne aktywności alfa i beta nie przekroczyły odpowiednio 0,1 i 1 Bq dm<sup>-3</sup> (WHO, 1998).

Istnieje wiele publikacji dotyczących naturalnych izotopów promieniotwórczych w butelkowanych wodach mineralnych, ale każda z nich jest poświęcona tylko cząstkowemu problemowi związanemu z omawianym zagadnieniem. W pracach Sajo-Bohus i in. (1996); Sanchez i in. (1998); Surbeck (1995); Rangiel i in.(2002); Kitto i in. (2005) zajmowano się badaniami globalnych aktywności promieniowania alfa i beta w butelkowanych wodach mineralnych sprzedawanych odpowiednio w Wenezueli, Meksyku, Hiszpanii, Francji, Portugalii i Stanach Zjednoczonych. W prach Bonotto (2003); Marović i in. (1996); Kralik (2003); Oliveira (2000); Laura & Godoy (2002); Somlai i in. (2002) zmierzono zawartości izotopów radu (228 Ra i 226 Ra) w wodach sprzedawanych odpowiednio w Ameryce Południowej, Chorwacji, Hiszpanii, Austrii, Brazylii i na Wegrzech. W Polsce ukazały się dwie prace dotyczące promieniotwórczości naturalnej w niektórych butelkowanych wodach mineralnych (Mielnikow i in. 2000; Skwarzec i in. 2003). W pierwszej pracy omówiono izotopy radu, a w drugiej izotopy uranu i polonu, z których oszacowano roczne dawki radiologiczne otrzymywane przez spożycie tych wód. W niniejszej pracy rozszerzono nie tylko zakres badań parametrów promieniotwórczości wód ale i również podjęto badanie nowo produkowanych butelkowanych wód mineralnych a szczególności zajęto się następującymi zagadnieniami:

- oznaczaniem globalnych aktywności promieniowania alfa/beta, zawartości izotopów <sup>238</sup>U, <sup>234</sup>U, <sup>228</sup>Ra, <sup>226</sup>Ra, <sup>224</sup>Ra oraz <sup>40</sup>K;
- badaniem zależności korelacyjnych pomiędzy zawartościami wyżej wymienionych izotopów a mineralizacją wody;
- wyliczaniem dawek radiologicznych otrzymanych przez spożycie badanych wód.

# 2. Pomiary

Przy pomiarach wykorzystano minimum 9 litrów badanej wody. W zależności od mineralizacji, przeznaczano różną ilość wody do analizy izotopów danego pierwiastka, np. gdy mineralizacja była poniżej 1000 mg dm<sup>-3</sup>, to ilość wody potrzebna do analizy izotopów radu i uranu wynosiła odpowiednio od 3 do 5 litrów, natomiast powyżej 1000 mg dm<sup>-3</sup> to ilość wody może być od 1 litra do 3 litrów; pozostałą wodę przeznaczono na pomiar globalnych aktywności promieniowania alfa i beta. Poniżej opisano w skrócie metody analizy zastosowane w pracy.

### 2.1. Całkowite aktywności promieniowania alfa i beta

Próbkę wody o objętości od 1 do 3 litrów ogrzewano w temperaturze około 80°C aż do całkowitego odparowania. Pozostały osad przenoszono do naczynia pomiarowego, mieszano z 6ml wody destylowanej i 12 ml ciekłego scyntylatora w żelu, notując czas momentu zmieszania. Następnie próbkę mierzono licznikiem  $\alpha/\beta$  z ciekłym scyntylatorem (L'Annunziata i in., 2003). W tych pomiarach trzeba zwracać uwage na ustalenie prawidłowej wartości parametru PSA (parametr pozwalający licznikowi prawidłowo rozdzielać impulsy pochodzące od promieniowania alfa od impulsów od cząstek beta). Aby można wyeliminować udział radonu i jego produktów rozpadu powstającego z radu w próbce, pomiar powtarzano codziennie przez jeden tydzień. Czas trwania każdego pomiaru planowano tak żeby niepewność względna pomiaru nie przekraczała 5%. Na wyników, sporządzano krzywe zależności zmierzonej podstawie intensvwności z uwzględnieniem tła (netto) promieniowania alfa i beta od czasu. Globalne intensywności promieniowania alfa i beta w momencie zmieszania próbki z ciekłym scyntylatorem otrzymano poprzez ekstrapolację wyżej wymienionych krzywych. Przykład takiego postępowania jest przedstawiony na rysunku 1.

### 2.2. Izotopy radu

Próbkę o objętości (od 2 do 3 l) odparowywano do około 1 l, następnie wytrącano izotopy radu wspólnie z barem w postaci siarczanu. W celu oczyszczenia osadu od innych izotopów przeszkadzających takich jak ołów, polon, itp., wymywano wielokrotnie osad wodą destylowaną aż do odczynu obojętnego i rozpuszczano w alkalicznym roztworze EDTA o stężeniu 0,25 M. Następnie obniżano pH roztworu do 4,5 poprzez dodawanie kwasu octowego, w ten sposób rad i bar zostały ponownie wytrącone w postaci siarczanu, natomiast uran i ołów pozostają nadal w roztworze (Tomza, 1975). Po wymyciu wodą destylowaną osad przenoszono do naczynia pomiarowego i mieszano z 12 ml ciekłego scyntylatora w żelu, próbkę mierzono licznikiem  $\alpha/\beta$ . Moment czasowy wytrącenia musi być zanotowany dla uwzględnienia narastania radonu i jego produktów po czasie. Wykonywano pomiar codziennie przez co najmniej 21 dni. Z otrzymywanych wyników zmierzonych po czasie wyznaczano zawartości izotopów radu (<sup>228</sup>Ra, <sup>226</sup>Ra i <sup>224</sup>Ra) (Chau i in., 1997).



**Rysunek 1.** Typowe zależności zmierzonych natężeń impulsów pochodzących od promieniowania alfa i beta emitowanego z pozostałości odparowanej próbki wody od czasu **Figure 1.** The typical dependent of measured count rates of total alpha and beta activities of the remainder of the evaporated water sample on time

#### 2.3. Izotopy uranu

Do próbki o objętości co najmniej 3 l, dodawano znaną ilość uranu znacznikowego około 0,1 Bq  $^{232}$ U i odparowywano do objętości 0,5 l, następnie wytrącano uran w postaci (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>U<sub>2</sub>O<sub>7</sub> razem z MnO<sub>2</sub>. Osad przemywano wodą destylowaną i rozpuszczano w roztworze 9 M HCl. Następnie przepuszczano roztwór przez kolumnę Dowex kationit 200-400 mesh. Uran wymywano z kolumny roztworem o stężeniu 0,1 M HCl. Eluat odparowywano do suchości, pozostałość rozpuszczano w roztworze 1 M HCl. Uran powtórnie wytrącano przez dodawanie chlorku neodymu, soli Mohra i kwasu HF. Wytrącony uran osadzano na filtrze membranowym o porowatości 100 nm. Po wysuszeniu filtr z uranem mierzono spektrometrem alfa z licznikiem półprzewodnikowym krzemowym (Mietelski 2003; Skwarzec i in., 2001).

### 2.4. Izotop <sup>40</sup>K

Potas jest metalem alkalicznym znajdującym się w pierwszej grupie układu okresowego, więc jego wytrącenie z próbki wody drogą chemiczną jest rzeczą trudną. Izotop  $^{40}$ K jest naturalnym izotopem beta promieniotwórczym. Izotop ten rozpadając się, emituje również w 11 % kwanty gamma o energii 1464 keV (Lederer i in., 1967). Można więc oznaczać potas 40 poprzez spektrometrię gamma. W pracy Jodłowskiego (2005) stwierdzono, że 40 wykrywalności potasu metoda spektrometrii gamma próg z detektorem półprzewodnikowym typu HPGe z użyciem dużego naczynia pomiarowego Marrinelli o objętości równej 0,78 l wynosi 14 mg dm<sup>-3</sup> potasu całkowitego, zakładając że abundancja potasu 40 wynosi 0,012 %. Do pomiarów spektrometrycznych promieniowania gamma należy wodę odparowywać tak, aby zawartość potasu całkowitego w litrze była od 2 do 3 większa od podanego wyżej progu wykrywalności. Do oznaczenia zawartości <sup>40</sup>K metodą spektrometrii gamma wybrano kilka wód mineralnych o stężeniu potasu całkowitego od 8 mg do 52 mg. Na podstawie zmierzonych zawartości izotopu <sup>40</sup>K i jego tablicowej wartości abundancji (0,012 %) przeliczono zawartości potasu całkowitego w litrze wody. Otrzymane wartości potasu całkowitego i jego wartości podane przez producenta wody oraz zmierzone aktywności właściwe izotopu <sup>40</sup>K dla kilku wybranych wód mineralnych są zestawione w tabeli 1.

Tabela 1. Stężenia potasu całkowitego wg producenta, zmierzone aktywności właściwe izotopu <sup>40</sup>K oraz przeliczone stężenia potasu w niektórych wodach mineralnych
 Table 1. Label concentrations of potassium, determined contents of <sup>40</sup>K and calculated values of potassium in the several mineral waters

Nazwa wody	Zawartość potasu wg producenta [mg dm <sup>-3</sup> ]	Oznaczona aktywność <sup>40</sup> K [mBq dm <sup>-3</sup> ]	Przeliczone zawartości potasu [mg dm <sup>-3</sup> ]
Staropolanka	52	$1364\pm150$	43,3 ± 4,8
Muszynianka	10,1	$290\pm50$	9,2±1,6
Aquarel	8,75	$223\pm31$	7,1 ± 1,0
R8	48,5	$1368 \pm 150$	43,4 ± 4,8

Z tabeli tej wynika, że wszystkie przeliczone wartości potasu całkowitego są nieco mniejsze od wartości podanych przez producenta. Fakt ten mógłby być spowodowany częściową stratą potasu poprzez odparowanie, adsorpcję potasu na ściankach naczyń oraz przeniesienie próbki z zlewek szklanych do naczynia pomiarowego. Z powyższych powodów, zdecydowano przeliczyć zawartości izotopu <sup>40</sup>K w wodach mineralnych z ilości potasu całkowitego wyznaczonych metodą analizy chemicznej i wartości abundancji - 0,012 %. Obliczone aktywności właściwej izotopu <sup>40</sup>K dla badanych wód są zestawione w tabeli 2.

## 3. Wyniki pomiarów i dyskusja

Wyniki analizy radiometrycznej dla 23 butelkowanych wód mineralnych i ich skład jonowy podany na etykietach butelek przedstawiono w tabelach 2 i 3. Ze względu na brak niepewności składu jonowego podawanego na etykietach butelek, więc autorzy pracy nie mieli możliwości oszacować tej niepewności na całkowitą zawartość rozpuszczonych składników stałych (TDS) badanych wód. Wyniki analizy izotopów radu zawarte w niniejszej pracy ogólnie są zgodne z wynikami analizy w pracy Mielnikowa i in. (2000).

**Tabela 2.** Całkowite aktywności promieniowanie alfa i beta oraz zawartości izotopów uranu,radu i potasu w badanych butelkowanych wodach mineralnych.

Nazwa wody mineralnej	Globalne [mB	aktywność q dm <sup>-3</sup> ]	Aktywności izotopów radu [mBq dm <sup>-3</sup> ]			Aktywność uranu [m	Aktywność izotopu [mBqdm <sup>-3</sup> ]	
	Alfa	beta	<sup>224</sup> Ra	<sup>226</sup> Ra	<sup>228</sup> Ra	<sup>328</sup> U	<sup>324</sup> U	<sup>40</sup> K
Żywiec	2,2±0,6	53±8	≤0,5	1,3±0,4	29±3	0,61±0,09	1,66±0,15	
Dobrawa	139±16	67±7	≤0,5	66±7	10±3	5,1±0,5	22,8±1,2	26,7
Staropolanka	592±60	1784±200	≤0,5	525±30	276±20	7,68±	16,94	1364±150*
Krynicznka	96±6	233±11	≤0,5	73±6	96±9	2,86±0,27	3,51±0,29	211
Nałęczowianka	16±3	83±9	≤0,5	2,4±0,4	16±2	0,81±0,09	1,19±0,11	170
Muszynianka	55±7	367±32	≤0,5	44±5	45±7	4,66±0,30	10,22±0,44	290±50*
Multivital	86±8	140±10	≤0,5	8,0±1,0	14±2	19,2±3,5	74,7±10,2	37,8
Laguna	23±4	132±12	≤0,5	22±3	8,0±1,0	10,04±0,42	12,13±0,47	
Muszyna	206±14	184±12	≤0,5	47±5	45±7	1,72±0,29	4,67±0,48	170
Piwniczanka	155±15	592±39	≤0,5	57±5	39±4	2,20±0,20	2,09±0,20	563
Kropla Beskidu	11±2	88±8	≤0,5	4,0±0,6	5,0±1,0	2,8±0,4	6,4±0,7	48,5
Ustronianka	100±10	161±14	≤0,5	16±2	≤1,0	10,54±0,76	16,92±1,22	
Kinga	9,06	160	≤0,5	3,16±0,38	5,33±0,71	4,43±0,4	7,79±0,56	72,8
Jurajska	Na	na	≤0,5	12±3	≤10	1,34±0,13	7,42±0,34	78,8
Aquarel	100±10	212±18	≤0,5	17,8±1,6	19,3±2,0	0,57±0,08	0,75±0,09	223±31*
Oaza	18,33	86,82	≤0,5	0,8±0,1	8,2±1,1	6,79±0,47	10,82±0,63	15,7
Polaris	40,37	406	≤0,5	20,0±1,4	11,8±1,1	4,23±0,42	4,47±0,42	92,6
Jan	18,63	474	≤0,5	9,3±1,0	9,2±1	3,94±0,61	5,36±0,51	113,7
Zuber	938±104	10537±470	18,5±2,5	437±26	393±25	2,30±0,60	3,07±0,70	10064
Kazimierka	na	na	≤0,5	0,8±0,1	12,5±1,7	5,0±0,48	9,51±0,70	126
Hermes	19,7±2,3	87,2±7,6	≤0,5	3,78±0,44	17,74±2,30	5,1±0,4	7,1±0,4	42,5
Wielka Pieniawa	625±51	1062±70	≤0,5	249±16	169±12	4,4±1,2	19,0±2.7	1069±150
Mazowszanka	na	na	≤0,5	1,38±0,16	2,1±0,28	na	na	236,4

**Table 2.** Total alpha, beta activities and contents of uranium, radium and potassium isotopes in the investigated bottled mineral waters.

\* Zmierzone zawartości izotopu 40K metodą spektrometrii promieniowania gamma.

na - nie analizowano

Nazwa wody	Zawartość poszczególnych jonów [mgdm <sup>-3</sup> ]										
	Ca <sup>+2</sup>	$Mg^{+2}$	Na <sup>+1</sup>	$K^{+1}$	Fe <sup>+3</sup>	Li <sup>+1</sup>	HCO3 <sup>-1</sup>	$SO_4^{-2}$	Cl <sup>-1</sup>	F <sup>-1</sup>	TDS*
Żywiec	27,75	8,18	8,00	nd	nd	nd	109,00	nd	4,60	0,07	185,84
Dobrawa	55,2	29,6	1,2	0,85	nd	nd	286,8	20,0	5,32	0,1	402
Staropolanka	355,1	77,3	135	52	nd	nd	1864,7	24,0	8,9	0,5	2517,5
Kryniczanka	547,9	113,48	67,3	6,7	nd	nd	2172,24	9,64	10,64	0,14	2927,63
Nałęczowianka	114,5	23,1	12,7	5,4	nd	nd	495,8	nd	8,5	0,3	696,3
Muszyniaka	191,8	128,7	93,2	10,1	nd	nd	1458,5	31,1	13,9	nd	1927,3
Multivital	164	25,3	5,4	1,2	nd	nd	597,0	27,1	2	nd	822
Laguna	71,56	25,56	5,8	nd	nd	nd	290,75	20,6	12,85	nd	427,12
Muszyna	482,59	51,94	47,2	6,48	nd	nd	1854,95	2,96	5,32	0,41	2451,85
Piwnicznka	235	121	nd	17,9	0,2	0,34	1898	29,4	12,4	0,25	2314,49
Kropla Beskidu	46,49	19,46	37,72	1,54	nd	nd	298,94	30,28	1,77	nd	434,2
Ustronianka	78,56	15,56	5,8	nd	nd	nd	290,75	20,6	12,05	nd	423,32
Kinga	97,8	13,13	4,59	2,31	nd	nd	335,6	28,5	7	0,05	488,98
Jurajska	67,1	36,5	9,0	2,5	nd	nd	345,6	37,7	8,5	0,3	507,2
Aquarel	44,1	15,8	60	8,75	nd	nd	336,5	nd	28	0,5	519,45
Oaza	52,10	7,3	2,50	0,50	nd	nd	170,80	23,04	4,80	0,10	280,58
Polaris	102,8	16,00	11,25	2,94	nd	nd	432,7	nd	2,8	0,23	592,32
Jan	152,3	24,81	15,42	3,61	0,07	0,01	524,75	51,34	17,73	0,18	790,22
Zuber**	132,02	331,32	6495,	320	0,99	12,49	18549,47	49,51	975,08	0,4	25899,07
Kazimierka	87,68	28,86	10,0	4,0	nd	nd	387,5	35,18	7,40	0,5	561,12
Hermes	109,02	17,02	10,0	1,35	nd	nd	213,9	117,28	35,5	0,2	504,27
Wielka Pieniawa	232,1	26,1	68,5	38,7	nd	nd	1031,2	29,4	7,1	0,3	1394,7
Mazowszanka	38,08	15,55	95,00	7,50	nd	nd	322,50	nd	64,2	0,47	543,3

 Tabela 3. Skład jonowy wód mineralnych butelkowanych zebrany z etykiet

 Table 3. Ion composition of the investigated bottled mineral waters after bottle labels

\* Ze względu na brak niepewności składu jonowego podawanej na etykietach butelek, więc autorzy pracy nie mieli możliwości oszacować niepewności na TDS

\*\* Woda "Zuber" jest wodą leczniczą i zawiera jeszcze jony bromu- 6,39 mg, jodu – 1,48 mg

nd - nie ma danych dotyczących danego jonu lub dany pierwiastek nie występuje w badanej wodzie.

Z tabel 2 i 3 wynika, że zawartości naturalnych izotopów promieniotwórczych i skład jonowy wahają się w szerokich zakresach. Na przykład zawartości izotopu radu 226 i radu 228 wahają od prawie 1 mBq dm<sup>-3</sup> aż do ponad 500 mBq dm<sup>-3</sup>, dla izotopów uranu od około ułamka mBq dm<sup>-3</sup> do kilkunastu mBq dm<sup>-3</sup>, a całkowita mineralizacja zmienia się od około 200 mg dm<sup>-3</sup> aż do prawie 3000 mg dm<sup>-3</sup>, a wyjątkowo w jednej wodzie mineralizacja osiągała prawie 26000 mg dm<sup>-3</sup>.

Butelkowane wody mineralne prawie nie zawierają radu 224; fakt ten może być wytłumaczony tym, że czas od chwili wydobycia wody do dnia sprzedaży trwa ponad miesiąc, a po tym czasie izotop radu 224 już całkowicie się rozpada ( $T_{1/2} = 3,64$ dnia). Z tabeli 2 można również zauważyć, że w niektórych wodach zawartości izotopu potasu 40 przewyższają ponad połowę globalnej aktywności promieniowania beta.

W tabeli 4 przedstawiono wartości parametrów korelacji liniowej pomiędzy analizowaną promieniotwórczością, a mineralizacją butelkowanych wód mineralnych. Z tabeli tej wynika, że pomiędzy globalnymi aktywnościami promieniowania alfa, beta oraz zawartościami izotopów radu, potasu a mineralizacją wody istnieją pewne liniowe korelacje.

Tabela 4. Wartości parametrów korelacji liniowej i ich niepewności (a, b i u(a),u(b))
 pomiędzy naturalną promieniotwórczością a mineralizacją butelkowanych wód mineralnych
 Table 4. The values of the parameters and their uncertainties (a,b and u(a), u(b)) of linear correlation between natural radioactivities and TDS of bottled mineral waters,

Promieniotwórczość	$a \pm u(a)$	$b \pm u(b)$	R
Całk. Aktyw. prom.a	$0,034\pm0,006$	$83 \pm 33$	0,61
Całk. Aktyw. prom.β	$0,\!41\pm0,\!02$	$-90 \pm 72$	0,97
Zawartość 226 Ra	$0,017\pm0,002$	5,5 ± 5,1	0,97
Zawartość 40K	$0,\!39\pm0,\!03$	$156\pm232$	0,98

Zakładając, że każdy dorosły człowiek pije przeciętnie 2 litry wody dziennie, to roczna dawka radiologiczna pochodząca od wchłonięcia izotopów uranu i radu zawartych w danej wodzie jest obliczona wg wzoru (WHO, 1998):

$$D(mSv) = 730 \cdot \sum \eta_i \cdot W_i,$$

gdzie:  $\eta_i$  – współczynnik przeliczenia (mSv/Bq) dla i-tego izotopu, wartości tego współczynnika dla różnych izotopów można znaleźć w pracy (IAEA 1996);  $W_i$  – zawartość *i*-tego izotopu w jednym litrze wody [Bq dm<sup>-3</sup>].

Obliczone dawki roczne przez pochłonięcie izotopów radu i uranu zawartych w badanych wodach przedstawiono na rysunku 2; na tym rysunku naniesiono również poziom rocznej dawki dopuszczalnej równej 0,1 mSv zalecanej przez WHO. Z tego rysunku widać, że roczne dawki niektórych wód przekraczają dawkę dopuszczalną dla osób dorosłych, więc nie zaleca się konsumować dziennie 2 litry tych wód. Mimo że izotop <sup>40</sup>K w niektórych wodach posiada znaczący udział w globalnej aktywności promieniowania beta, jednak dawka przez jego wchłonięcie jest mało znacząca w stosunku do dawki otrzymanej od innych izotopów (np. dla

wody o stężeniu <sup>40</sup>K równym 563 mBq dm<sup>-3</sup>, roczna dawka przez pochłonięcie tego izotopu wynosi 0,0026 mSv), tak więc poziom dopuszczalny dotyczący globalnej aktywności promieniowania beta powinien być uwzględniony wraz z udziałem np. izotopu <sup>40</sup>K.



Rysunek 2. Roczne dawki pochodzące od pochłonięcia izotopów Ra-226, Ra-228, U-234 i U-238 poprzez codzienną konsumpcję 2 litrów danej wody
 Figure 2. The radiological annual doses caused by the isotopes Ra-226, Ra-228, U-234 and U-238 of the water if one daily drinks 2liters

### 4. Wnioski

Zawartość naturalnych izotopów promieniotwórczych w badanych butelkowanych wodach mineralnych waha się w szerokim zakresie, np. zawartość izotopu radu od prawie 1 mBq dm<sup>-3</sup> aż do ponad 1 000 mBq dm<sup>-3</sup>. Ogólnie można twierdzić że ze wzrostem mineralizacji wody wzrasta zawartość izotopów promieniotwórczych. Współczynniki korelacji pomiędzy mineralizacją wody a całkowitymi wartościami aktywności promieniowania alfa, beta, zawartościami <sup>226</sup>Ra i <sup>40</sup>K wynoszą odpowiednio: 0,6; 0,97; 0,97 oraz 0,98. W równowadze promieniotwórczej aktywności (wyrażone w Bq dm<sup>-3</sup>) izotopów uranu i radu powinny być sobie równe, zaobserwowano że, aktywność izotopów radu co najmniej o rząd wielkości. Izotop <sup>40</sup>K nie jest uwzględniany w obliczeniach dawki radiologicznej, mimo że w niektórych wodach jego zawartość posiada znaczący udział w całkowitej aktywności beta. Z tego względu proponuje się podawać całkowitą aktywność beta z uwzględnieniem potasu 40. Zawartość tego izotopu w wodzie można obliczyć ze znanej abundancji <sup>40</sup>K i zawartości potasu całkowitego otrzymanego z analizy chemicznej.

### Literatura

- Bayés J., Gómez E., Garcias F., Casas M., Cerdà V., 1996: Radium determination in mineral water. Appl. Radiat. Isot. 47(9/10), 849-853.
- Bonotto D., 2004: *Dose from*<sup>222</sup>*Rn*, <sup>226</sup>*Ra and*<sup>228</sup>*Ra in groundwater from Guarani aquifer, South America*. J. Environ. Radioactivity 76, 319-335.
- Chau N., Niewodniczański J., Dorda J., Ochoński A., Chruściel E., Tomza I., 1997: Determination of radium isotopes In mine waters through alpha- and beta- activities measured by liquid scintillation spektrometry. J. Radioanal. & Nucl. Chem. 222(1-2), 69-74.
- Escobar V.G., Tomé F., Sánchez A., 1996: Gross alpha- and beta activities in Rain water and airborne particle samples. Influence of rainfall and radon. J. Environ. Radioactivity 31(3), 273-285.
- IAEA, 1996: International Basic Safety Standards for Protection against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Sources, Vienna, 0074-1892.
- Jacomino V., Belilintani S., Oliveira J., Mazzilli B., Fields D., Sampa M., Silva B., 1996: Estimates of cancer mortality due to the ingestion of mineral spring waters from a highly natural radioactive region of Brazil. J. Environ. Radioactivity 33(3), 319-329.
- Jodłowski P., 2005: Spektrometria promieniowania gamma prób środowiskowych; nuklidy promieniotwórcze w środowisku przyrodniczym Gorców. Praca doktorska, Kraków 10-2005.
- Kitto M., Parekh P., Torres M., Schneider D., 2005: Radionuclide and chemical concentrations in mineral waters at Saratoga Springs, New York. J. Environ. Radioactivity, 1-15.
- Kralik C., Friedrich M., Vojir F., 2003: Natural radionuclides in bottled water in Austria. J. Environ. Radioactivity 65(2), 233-241.
- L'Annunziata M. i in., 2003: *Handbook of Radioactivity Analysis*, Second Edition, Amsterdam, Boston, New York, Academic Press, 0-12-436603-1.
- Laura D., Godoy J., 2002: Abnormal high natural radium concentration in surfach waters. J. Environ. Radioactivity 61, 159-168.
- Lederer C., Hollander J., Perlman I., 1997: *Table of Isotopes*, Sixth Edition, New York, London, Sydney. John Wiley & Sons, 67-24402.
- Marović G., Senčar J., Franić Z. Lokobauer N., 1996: Radium-226 in Thermal and Mineral Springs of Croatia and Associated Helth Risks. J. Environ. Radioactivity 33(3), 309-317.
- Mietelski J., 2003: Spektroskopia jądrowa w badaniu biodostępności radionuklidów z "gorących cząstek typu paliwowego", w środowisku leśnym. Rozprawa habilitacyjna. Raport Nr 1921/B, IFJ, Kraków 2003.
- Mielnikow A., Skowronek J., Michalik B.,2000: *Izotopy radu w butelkowanych wodach mineralnych*. Postępy Techniki Jądrowej 43(1), 15-18.
- Oliveira J., Mazzilli B., Costa P., Tanigava P., 2001: *Natural radioactivity in Brazilian mineral waters and consequent doses.* J. Radioanal. & Nucl. Chem. 249(1), 173-176.
- Sánchez A., Montero M., Escobar V., Vargas M., 1999: *Radioactivity in bottled mineral waters*. Applied Radiation and Isotopes 50, 1049-1055.
- Sajo-Bohus L., Gómez J., Capote T., Greaves E., Herrera O., Salazar V. Smith A., 1997: Gross Alpha Radioactivity of Dinking Water in Venezuela. J. Environ. Radioactivity, 35(3), 305-312.
- Skwarzec B.; Strumińska D.; Boryło A., 2003: Radionuclides of<sup>210</sup>Po, <sup>234</sup>U and <sup>238</sup>U in drinking bottled mineral water in Poland. J. Radioanal. & Nucl. Chem., 256(2), 361-364.

- Somlai J., Horváth G., Kanyár B., Kovács T., Bodrogi E., 2002: *Concentration of*<sup>226</sup>*Ra in Hungarian bottled mineral water*. J. Environ. Radioactivity 62, 235-240.
- Surbeck H., 1995: *Determination of natural radionuclides in drinking water; a tentative protocol.* The Science of Total Environment. 173/174, 91-99.
- Rangiel J., Lopez del Rio H., Garcia F., Torres L., Villalba M., Sujo L., Cabrera M., 2002: *Radioactivity in bottled waters sold in Mexic.* Applied Radiation and Isotopes 56, 931-936.
- Tomza I., 1975: Determination of low radium concentrations in mineralized waters, International Conference on Low Radioactivity Measurement and Applications. The High Tatras, Czech Republic, 6-10 October 1975.

WHO, 1998: Guidelines for drinking water quality, Recommendations-Addendum, vol. 1. Geneva.

Praca była finansowana w ramach umowy z KBN nr 10-10-220-480.