



P

ROTEÇÃO CONTRA RADIAÇÕES
NA COMUNIDADE DOS PAÍSES
DE LÍNGUA PORTUGUESA

Luis Neves (coord.)

IMPRESA DA UNIVERSIDADE DE COIMBRA
2018

**ANÁLISE DOS PARÂMETROS RADIOATIVOS EM
ÁGUAS PARA CONSUMO HUMANO**

**ANALYSIS OF RADIOACTIVE PARAMETERS IN
WATER FOR HUMAN CONSUMPTION**

I. LOPES – ilopes@ctn.tecnico.ulisboa.pt (Universidade de Lisboa, Instituto Superior Técnico, Centro de Ciências e Tecnologias Nucleares, Laboratório de Proteção e Segurança Radiológica)

J. ABRANTES – abrantess@ctn.tecnico.ulisboa.pt (Universidade de Lisboa, Instituto Superior Técnico, Laboratório de Proteção e Segurança Radiológica)

A. R. GOMES – argomes@ctn.tecnico.ulisboa.pt (Universidade de Lisboa, Instituto Superior Técnico, Laboratório de Proteção e Segurança Radiológica)

A. LIBÂNO – alibanio@ctn.tecnico.ulisboa.pt (Universidade de Lisboa, Instituto Superior Técnico, Laboratório de Proteção e Segurança Radiológica)

M. J. MADRUGA – madruga@ctn.tecnico.ulisboa.pt (Universidade de Lisboa, Instituto Superior Técnico, Centro de Ciências e Tecnologias Nucleares, Laboratório de Proteção e Segurança Radiológica)

M. REIS – mcapucho@ctn.tecnico.ulisboa.pt (Universidade de Lisboa, Instituto Superior Técnico, Centro de Ciências e Tecnologias Nucleares, Laboratório de Proteção e Segurança Radiológica)

PALAVRAS-CHAVE: águas de consumo, parâmetros radioativos, alfa total, beta total, radão, trítio.

RESUMO: A Diretiva Europeia 2013/51/EURATOM estabelece os requisitos para a proteção da saúde pública em geral, no que diz respeito às substâncias radioativas presentes na água destinada ao consumo humano. Os valores paramétricos

recomendados são 100 Bq L⁻¹ para o Radão (Rn-222), 100 Bq L⁻¹ para o Trítio (H-3) e 0,10 mSv para a Dose Indicativa (DI). De acordo com os valores estipulados no anexo I do Decreto-Lei nº 23/2016, o valor paramétrico para o Rn-222 foi alterado e fixado em 500 Bq L⁻¹. Os valores dos níveis de verificação recomendados para as concentrações de atividades alfa total e beta total são 0,1 Bq L⁻¹ e 1 Bq L⁻¹, respetivamente. Se estas atividades forem inferiores aos valores de verificação assume-se que o valor da DI é inferior ao valor paramétrico (0,1 mSv), não sendo necessárias outras análises de radioatividade complementares. Se as concentrações de atividades alfa total e beta total excederem os limites estipulados, é necessário proceder à análise dos radionuclídeos específicos. Neste trabalho, apresentam-se as técnicas radioanalíticas utilizadas no âmbito do Programa de Vigilância Radiológica Ambiental e na prestação de serviços à comunidade, para a determinação dos referidos parâmetros radioativos, nomeadamente, para a determinação das concentrações de atividades alfa total, beta total, H-3 e Rn-222.

KEYWORDS: drinking waters, radioactive parameters, gross alpha, gross beta, radon, tritium.

ABSTRACT: The European Directive 2013/51/ EURATOM sets the requirements for the protection of public health in general, with regard to radioactive substances in water intended for human consumption. The parametric values recommended are 100 Bq L⁻¹ for Radon (Rn-222), 100 Bq L⁻¹ for Tritium (H-3) and 0.10 mSv for Indicative Dose (DI). According to the established values in Annex I of Decree-Law No. 23/2016 of 3 June, the parametric value for Rn-222 has been changed and fixed at 500 Bq L⁻¹. The values of the recommended levels of verification for gross alpha and gross beta

activity concentrations are 0.1 Bq L^{-1} and 1 Bq L^{-1} , respectively. If these activities are lower than the verification levels it is assumed that the value of DI is lower than the parametric value (0.1 mSv), with no need of complementary radioactivity analysis. If the concentrations of gross alpha and gross beta activities exceed the stipulated limits, it is necessary to analyze the specific radionuclides. In this paper, we present the radioanalytical techniques used in the framework of the Environmental Radiological Surveillance Programme and the services to the community provided, for the determination of such radioactive parameters, namely for the determination of gross alpha, gross beta, H-3 and Rn-222 activity concentrations.

1. INTRODUÇÃO

Todas as águas contêm radioatividade natural como resultado da presença de radionuclídeos naturais das famílias do Urânio (U-238), do Actínio (U-235), do Tório (Th-232) e, ainda, do Potássio-40. As águas estão também sujeitas à contaminação por radionuclídeos de origem artificial devido à ação do Homem, como por exemplo, de acidentes em centrais nucleares e das aplicações de radioisótopos na medicina e na indústria (Sr-90, Cs-137, Am-241, I-131, Co-60). O Trítio (H-3) é um dos isótopos radioativos do hidrogénio que está presente no ambiente devido não só a processos naturais mas, principalmente, como produto resultante da libertação de efluentes da indústria nuclear. A ingestão de água é uma das vias de incorporação de substâncias radioativas no corpo humano. Os radionuclídeos naturais e artificiais, uma vez ingeridos, são responsáveis pela dose de radiação interna.

De acordo com a Diretiva Europeia 96/29/EURATOM, o risco de exposição da população às radiações ionizantes deverá ser mantido a um nível tão baixo quanto for razoavelmente possível. A Diretiva

Europeia 2013/51/EURATOM estabelece requisitos para a proteção da saúde do público em geral, no que diz respeito às substâncias radioativas presentes na água destinada ao consumo humano e estabelece que um determinado número de parâmetros radioativos, Radão (Rn-222), Trítio (H-3) e Dose Indicativa (DI), sejam controlados. No Anexo I da Diretiva estão também especificados os Valores Paramétricos (VP) das substâncias radioativas, abaixo dos quais a água pode ser considerada própria para o consumo humano (100 Bq L⁻¹ para o Rn-222 e H-3; 0,1 mSv para a DI). Se ocorrerem concentrações em atividade superiores aos VP, o risco para a saúde humana deve ser averiguado. Em Portugal, após a transposição da Diretiva Europeia 2013/51/EURATOM para a legislação nacional (Decreto-Lei n.º 23/2016) estabeleceu-se 500 Bq L⁻¹ como valor paramétrico para o Rn-222. Sempre que a concentração de Rn-222 exceda 1000 Bq L⁻¹ considera-se que se justificam medidas de correção por motivos de proteção radiológica. Se a concentração de Trítio exceder o correspondente VP (100 Bq L⁻¹) tem de se proceder a uma análise da presença de outros radionuclídeos artificiais. A DI é efetuada sempre que esteja presente uma fonte de radioatividade artificial ou natural elevada.

A presença da radioatividade na água destinada ao consumo humano, pode ser determinada através das medições das concentrações de atividades alfa total e beta total, indicativas das concentrações globais devidas aos radionuclídeos naturais e artificiais emissores alfa e beta e/ ou através da análises dos radionuclídeos específicos. Se as concentrações das atividades alfa total e beta total forem inferiores aos níveis de verificação recomendados na Diretiva Europeia 2013/51/EURATOM, presume-se que o valor da DI seja inferior ao VP de 0,1 mSv. Se a concentração de atividade alfa total for superior a 0,1 Bq L⁻¹ deve ser verificada a presença dos radionuclídeos específicos (U-238, U-234, Ra-226 e Po-210) e, se necessário, dos restantes radionuclídeos de origem natural, que se encontram es-

pecificados no quadro I do anexo III do Decreto-Lei n° 23/2016. Se a concentração de atividade beta total for superior a $1,0 \text{ Bq L}^{-1}$ deve ser verificada a presença de potássio (K-40). Se a atividade beta residual for superior ao VP, deve ser verificada a presença dos radionuclídeos específicos (Sr-90 e Cs-137) e, se necessário, dos restantes radionuclídeos de origem artificial, que estão especificados no quadro I do anexo III do Decreto-Lei n° 23/2016. Nessa situação, a DI é calculada a partir das concentrações de atividade dos radionuclídeos específicos e dos coeficientes de dose fixados no quadro A do anexo III da Diretiva 96/29/EURATOM, com base na ingestão anual de 730 L para um adulto.

2. MÉTODOS

Determinação da concentração de atividade de Trítio em águas, método de contagem por cintilação em meio líquido (método interno, acreditado pelo IPAC, baseado na ISO_9698_2010): Destila-se a amostra como tratamento prévio (caso esteja acidificada, ajusta-se o pH antes da destilação). Transfere-se uma alíquota de 8 mL de amostra destilada para um frasco de cintilação com 12 mL de cocktail de cintilação e mede-se num sistema de deteção de cintilação em meio líquido, previamente calibrado com padrões de calibração de H-3.

Determinação da concentração de atividade de Trítio em águas com enriquecimento isotópico, método por cintilação em meio líquido (método interno). Após o tratamento prévio da amostra por destilação, é feito um enriquecimento isotópico por eletrólise da água em corrente contínua. A amostra é posteriormente neutralizada, destilada e adiciona-se uma alíquota de 8 mL a 12 mL de cocktail de cintilação. A medição é efetuada num sistema de deteção de cintilação em meio líquido, previamente calibrado com padrões de calibração de H-3.

Determinação da concentração de atividade Alfa total e Beta total, método por fonte concentrada (método interno, acreditado pelo IPAC, baseado na ISO_9696_2007 e ISO_9697_2015): Amostra de água acidificada evaporada quase à secura. Posteriormente é feita a precipitação dos sulfatos e a sua calcinação a 350 °C. Uma porção do resíduo é transferido para um porta-amostras e a medição das concentrações de atividade alfa total e beta total é feita num contador proporcional de fluxo gasoso, previamente calibrado com padrões de calibração de Am-241 e K-40.

Determinação da concentração de atividade Alfa total e Beta total, método por cintilação em meio líquido (método interno, acreditado pelo IPAC, baseado na ISO_11704_2010): Após determinação do resíduo seco, as águas pouco salinas são submetidas a uma pré-concentração térmica. Após o ajuste do valor de pH em função do fator de concentração a aplicar, a amostra é concentrada por evaporação lenta. As amostras com teor elevado de sais são submetidas a menores fatores de concentração ou a uma medição direta. Transfere-se depois uma alíquota de 8 mL para um frasco de cintilação e adicionam-se 12 mL de cocktail de cintilação. A medição é efetuada num sistema de deteção de cintilação em meio líquido, previamente calibrado e otimizado para a discriminação alfa/ beta, com padrões de calibração de Am-241 e Sr-90/Y-90.

Determinação da concentração de atividade de Radão-222. Método por cintilação em meio líquido (método interno, baseado na ISO_13164-4_2015): Uma alíquota de 10 mL de amostra é adicionada a 10 mL de um cocktail de cintilação imiscível, com uma seringa, de forma a evitar-se perdas do gás radão. A medição é feita num contador de cintilação em meio líquido, após 3 horas da preparação da amostra, de forma a permitir que o equilíbrio radioativo entre o Rn-222 e os seus descendentes seja estabelecido. A eficiência de contagem é determinada com padrões de calibração de Ra-226.

3. RESULTADOS

De acordo com o Decreto-Lei nº 23/2016, os métodos de análise devem conseguir determinar as concentrações em atividade, cumprindo com os Limites de Detecção (LD) especificados, nomeadamente 10 Bq L⁻¹ para as concentrações em H-3 e 50 Bq L⁻¹ para as concentrações em Rn-222 (10% do VP), 0,04 Bq L⁻¹ para atividade alfa total e 0,4 Bq L⁻¹ para atividade beta total (40% do VP). Na Tabela 1 apresentam-se os valores de LD, calculados para as condições de rotina.

Tabela 1. Limites de Detecção (Bq L⁻¹) para as determinações de H-3, atividades alfa total, beta total e Rn-222, em condições de rotina

H-3	Alfa Total	Beta Total	Rn-222
0,4 (CL-EI)	0,020 (FC)	0,010 (FC)	0,5 (CL)
4,0 (CL)	0,040 (CL)	0,150 (CL)	

Os valores dos LD dependem do método utilizado (CL – cintilação em meio líquido; FC – fonte concentrada; EI – enriquecimento isotópico) e de vários parâmetros (ex.: tempo de aquisição, taxa de contagens de fundo, eficiência, massa da amostra/alíquota, volume da amostra, tempo decorrido entre colheita e medição).

Os valores médios anuais da concentração de atividade em H-3, alfa total e beta total, em águas para consumo humano, colhidas mensalmente na região de Lisboa, nos anos de 2013 e 2014 (Madruga et al. 2015 & 2016), estão apresentados na Tabela 2. Os valores médios de concentração em H-3 determinados, usando o método com enriquecimento isotópico, situaram-se abaixo dos limites de deteção. Os valores das concentrações em H-3 obtidos na região de Lisboa foram semelhantes aos obtidos em amostras colhidas regiões do país (Tabela 3). Em ambos os casos estes valores são muito inferiores ao VP (100 Bq L⁻¹).

Tabela 2. Concentrações de atividade (Bq L⁻¹) em H-3, alfa total e beta total, em águas para consumo humano, colhidas mensalmente na região de Lisboa (valores médios anuais, n=12)

Local de colheita	H-3	Alfa Total	Beta Total
Lisboa (2013)	<0,81	<0,047	<0,164
Lisboa (2014)	<0,57	<0,042	<0,134

Tabela 3. Concentrações de atividade (Bq L⁻¹) em H-3, alfa total e beta total, em águas para consumo humano, colhidas em vários locais do país (anos: 2013 e 2014)

Local de colheita	³ H	Alfa Total	Beta Total
Ano: 2013			
A	<0,80	<0,046	0,159±0,089
B	<0,80	<0,033	0,136±0,065
C	<0,80	0,095±0,037	0,381±0,099
D	<0,80	<0,056	0,21±0,10
E	<0,80	0,120±0,039	0,309±0,098
F	1,10±0,31	<0,051	0,221±0,095
G	<0,80	<0,091	0,30±0,17
H	<0,80	0,385±0,062	0,339±0,093
I	<0,80	<0,057	<0,169
Ano: 2014			
J	<0,42	<0,049	<0,145
K	<0,43	<0,061	<0,181
L	<0,45	<0,030	0,143±0,056
M	<0,45	<0,025	<0,075

As concentrações das atividades alfa total e beta total, das amostras colhidas em Lisboa foram, na generalidade, inferiores aos valores dos LD, não tendo sido excedidos os níveis de verificação estabelecidos. Em 2013, as concentrações de atividade alfa total de algumas amostras colhidas noutras regiões do país (E e H; Tabela 3) foram superiores ao valor de verificação (0,1 Bq L⁻¹) mas inferiores ao valor paramétrico em vigor nessa data (0,5 Bq L⁻¹) estipulado no Decreto-Lei n° 306/2007 de 27 de Agosto. Os valores da concentração de atividade beta total, das amostras analisadas em 2013 e 2014, não ultrapassaram o nível de verificação (1,0 Bq L⁻¹).

As concentrações de Rn-222 em águas de superfície são normalmente baixas ($< 100 \text{ Bq L}^{-1}$) mas, em águas subterrâneas e em zonas graníticas, os valores podem ser uma ordem de grandeza superiores (Lopes et al. 2015). Essas águas, que se destinam ao consumo humano, devem ser monitorizadas, especialmente as colhidas em locais onde haja a probabilidade de ser ultrapassado o nível de verificação estipulado no Decreto-Lei nº 23/2016 (500 Bq L^{-1}).

4. CONCLUSÕES

Pode concluir-se que os valores paramétricos e os níveis de verificação para os parâmetros radioativos (alfa total, beta total, H-3 e Rn-222) determinados em águas para consumo humano são inferiores aos valores estipulados na Diretiva Europeia 2013/51/EURATOM e no Decreto-Lei nº 23/2016, não se justificando qualquer medida corretiva, do ponto de vista da proteção radiológica.

Referências

- Decreto-Lei nº 306/2007 - Diário da República, 1ª Série, Nº 164 de 27 de Agosto de 2007.
- Decreto-Lei nº 23/2016 - Diário da República, 1ª Série, Nº 107 de 3 de Junho de 2016.
- EURATOM (2013/51) - Council Directive on laying down requirements for the protection of health of general public with regard to radioactive substances in water intended for human consumption. Official Journal L296.
- EURATOM (1996/29) - Council Directive on laying down basic safety standards for the protection of the health of workers and the general public against the dangers arising from ionizing radiation. Official Journal L 159.
- ISO 9696: 2007 - Water Quality-Measurement of gross alpha activity in non-saline water-Thick source method.
- ISO 9698:2010 - Water Quality-Determination of tritium activity concentration-Liquid scintillation counting method.
- ISO11704:2010 - Water Quality-Measurement of gross alpha and beta activity concentration in non-saline water-Liquid scintillation counting method.

- ISO 9697:2015 - Water Quality-Gross beta activity in non-saline water-Test method using thick source.
- ISO 1316-4: 2015 – Water Quality-Radon 222 – Part 4: Test method using two-phase liquid scintillation counting.
- Lopes, I.; J. Abrantes, A. Libânio, M. J. Madruga, M. Reis (2015) Radon (Rn-222) determination in Portuguese waters using two phase liquid scintillation counting (LSC) technique In: International Conference on Environmental Radioactivity, ENVIRA 2015, Thessaloniki, Greece, PS2-31.
- Madruga, M.J., Carvalho, F. P, Reis, M.; Alves, J.; Corisco, J. A.; Lopes, I.; Abrantes, Oliveira, J. M.; Silva, L.; Portugal. L.; Malta, M.; Santos, M.; Romanets, Y.; Libânio, A.; Mourato, A.; Silva, G.; Batista, A.; Gomes, A. R.; Andrade, E.; Carvalhal, G.; Pereira, M. (2015) - Programas de Monitorização Radiológica Ambiental (Ano 2013). Relatório LPSR, Série A, nº 41/15, 2015, ISBN 978-989-96542-9-7.
- Madruga, M.J., Carvalho, F. P, Reis, M.; Alves, J.; Corisco, J. A.; Batista, A.; Lopes, I.; Abrantes, J.; Oliveira, J. M.; Silva, L.; Portugal. L.; Malta, M.; Santos, M.; Pereira, M.; Romanets, Y.; Libânio, A.; Mourato, A.; Silva, G.; Gomes, A. R.; Andrade, E. (2016) - Programas de Monitorização Radiológica Ambiental (Ano 2014). Relatório LPSR, Série A, nº 42/16, 2016, ISBN 978-989-20-6528-1.