NAFTA-GAZ

Nafta-Gaz 2024, nr 9, s. 551–559, DOI: 10.18668/NG.2024.09.02

Zastosowanie przenośnego detektora RAD7 do badania koncentracji radonu w wodzie

Use of the portable RAD7 detector to test radon concentration in water

Rafał Skupio, Kamil Hebda

Instytut Nafty i Gazu – Państwowy Instytut Badawczy

STRESZCZENIE: W artykule przedstawiono metodykę badania koncentracji radonu w próbkach wody z zastosowaniem aparatury RAD7. Aparatura ta została dodatkowo wyposażona w systemem Big Bottle, przeznaczony do określania niskich stężeń radonu w wodzie. W ramach pracy przeprowadzono szereg badań terenowych i laboratoryjnych, a najważniejsze wyniki zestawiono i opisano w niniejszej publikacji. Próbki wody przeznaczone do wykonania testów zostały pobrane z rzek w Karpatach, z rzeki i źródła referencyjnego w Sudetach oraz z kranu i ze studni głębinowej przy ulicy Bagrowej 1 w Krakowie. Badania przeprowadzono na próbkach pobranych z kilku miejsc w celu określenia koncentracji radonu na różnych poziomach. Zakres uzyskanych stężeń radonu w wodach obejmował wartości od 0,073 Bq/L do 440 Bq/L. Szczegółowe wyniki zestawiono w tabelach i na wykresach seryjnych w celu zaprezentowania niepewności pomiarów, powtarzalności w serii, oceny, po którym cyklu pomiarowym wyniki ulegają stabilizacji, oraz wpływu poprawki DCF (ang. *decay correction factor*) na uzyskany wynik. Wody rzeczne cechowały się wartościami nieprzekraczającymi 0,16 Bq/L. Woda ze studni głębinowej została zbadana po jednym i po dwóch dniach od poboru, a średnie wyniki pomiarów po wprowadzeniu poprawki DCF różniły się od siebie o 0,12 Bq/L. Wynik pomiaru radonu w wodzie kranowej wynióśł 0,25 Bq/L. W celu przeprowadzenia badań porównawczych wykonano badania wody o wysokich koncentracjach radonu pochodzącej ze źródła referencyjnego opisanego przez zespół z Uniwersytetu Wrocławskiego. Uzyskane wartości, zarówno pomiarów wykonanych w terenie, jak i po przetransportowaniu próbek do laboratorium, były na zbliżonym poziomie do wyników referencyjnych.

Słowa kluczowe: radon, detektor RAD7, pomiary środowiskowe, promieniotwórczość wód.

ABSTRACT: The article presents the methodology for testing radon concentration in water samples using the RAD7 apparatus. This equipment is additionally equipped with the Big Bottle system, designed for determining low radon concentrations in water. Various field and laboratory tests were conducted as part of this study, and the most important results are summarised and described in this paper. Water samples for testing were taken from rivers in the Carpathians, a river and a reference source in the Sudetes, and from a tap and a water well at 1 Bagrowa Str. in Kraków. The measurements were carried out on samples taken from 0.073 to 440 Bq/L. Detailed results are presented in tables and charts, illustrating measurement uncertainty, repeatability in the series, the assessment of the measurement cycle after which the results stabilize, and the impact of the DCF (decay correction factor) correction on the obtained result. River waters exhibited values not exceeding 0.16 Bq/L. Groundwater samples were tested one and two days after sampling, with the average measurement results differing by 0.12 Bq/L after introducing the DCF correction. The radon measurement result in tap water was 0.25 Bq/L. For comparative tests, water with high radon concentrations from a reference source described by a team from the University of Wrocław was analysed. The obtained values for field measurements and those after transporting the water samples to the laboratory were comparable to the reference.

Key words: radon, RAD7 detector, environmental measurements, water radioactivity.

Wstęp

Radon ²²²Rn jest radioaktywnym, bezbarwnym, bezwonnym gazem szlachetnym, który nie reaguje chemicznie i jest dobrze rozpuszczalny w wodzie. Powstaje w wyniku rozpadu radu ²²⁶Ra, występującego w szeregu uranowo-radowym. Okres półrozpadu radonu wynosi 3,825 doby (Richon et al., 2010; Skupio et al., 2018; Rupak et al. 2021; Riudavets et al., 2022). Radon podczas rozpadu emituje cząstki alfa o energii 5,49 MeV (Zdrojewicz i Belowska-Bień, 2004). Podwyższone

Autor do korespondencji: R. Skupio, e-mail: rafal.skupio@inig.pl

Artykuł nadesłano do Redakcji: 12.01.2024 r. Zatwierdzono do druku: 11.09.2024 r.

koncentracje radonu sa związane z występowaniem w litosferze skał bogatych w minerały uranowe, takie jak kwaśne skały magmowe (np. granity), skały powstałe w procesach pomagmowych (np. aplity, pegmatyty) oraz inne skały metamorficzne (Pachocki et al., 2009; Metryka-Telka et al., 2022). Radon poprzez zjawisko emanacji jest uwalniany z ziaren gleby czy skał do przestrzeni miedzyziarnowej, gdzie ważna rolę odgrywają nanopory ziaren oraz kryształów, którymi mogą wędrować atomy radonu na skutek dyfuzji (Sasaki et al., 2004; Gillmore et al., 2010). W przestrzeni porowej skał może znajdować się od 10% do 50% wyprodukowanego radonu, pozostała część jest uwięziona w szkielecie skalnym (Vaupotič et al., 2010). Transport radonu w litosferze odbywa się wskutek adwekcji lub dyfuzji (Przylibski, 2018), wpływ na jego prędkość i zasięg może mieć szereg czynników, takich jak: przepuszczalność, porowatość, wilgotność i temperatura podłoża, sieć spękań i szczelin oraz ich układ geometryczny, a także występowanie uskoków tektonicznych (Czarny et al., 2021). Ponadto wpływ na ilość transportowanego radonu ma medium wypełniające przestrzeń porową. Jeżeli tym medium jest woda, to zatrzymywane jest w niej więcej cząstek niż w porach wypełnionych powietrzem gruntowym lub innym gazem, ale sa one znacznie wolniej transportowane, przez co na powierzchnię dociera gaz o mniejszej koncentracji z powodu krótkiego czasu jego rozpadu (Otton, 1992). Ostatnim etapem przemieszczania się radonu w litosferze jest ekshalacja z powierzchni terenu do powietrza i wód powierzchniowych. Skala ekshalacji zależy od takich czynników jak: temperatura powietrza, ciśnienie atmosferyczne, wilgotność, prędkość wiatru, wielkość i występowanie opadów czy obecność pokrywy śnieżnej (Przylibski, 2005; Maciejewski, 2023). Badania prowadzone nad szybkościa uwalniania się radonu do atmosfery z wypływających na powierzchnię wód podziemnych w warunkach naturalnych wykazały, że stężenie radonu w bardzo szybkim tempie maleje wraz z odległością od źródła. Dobra rozpuszczalność radonu w wodzie skutkuje przemieszczaniem się tego gazu wraz z wodami gruntowymi na znaczne odległości od miejsca jego powstawania (Korzeniowska-Rejmer, 2008). Na obszarach, gdzie woda pitna ma duże stężenie radonu, możliwe jest przenoszenie dużych ilości tego gazu do powietrza wewnątrz budynków mieszkalnych. Rozpuszczalność radonu w wodzie spada wraz ze wzrostem temperatury, stad używanie podgrzewanej wody w mieszkaniach może powodować dodatkowe zwiększenie koncentracji radonu w budynkach (Zalewski et al., 1997). W niniejszej pracy skupiono się na opracowaniu metodyki wykonywania pomiarów niskich steżeń radonu w wodzie, zarówno w terenie, jak też po dostarczeniu próbek do laboratorium. Głównym założeniem było dostosowanie przenośnej aparatury RAD7 do pomiarów radonu w wodach.

Aparatura badawcza

Do przeprowadzenia badań koncentracji radonu w wodzie zastosowano przenośną aparaturę RAD7 firmy Durridge wraz z systemem Big Bottle (rysunek 1). Detektor radonu RAD7 w zależności od konfiguracji może służyć do pomiarów koncentracji radonu w powietrzu, w pomieszczeniach, w powietrzu glebowym oraz w wodzie. Ponadto odpowiednie dopasowanie ustawień aparatu oraz oprogramowania pozwala na prowadzenie testów w wielu różnych trybach. Ustawienia trybów polegają na dostosowaniu protokołu pomiarowego, w którym określany jest czas pojedynczego cyklu, liczba cykli oraz wybór typu wizualizacji wyników. Ustawienia przed serią pomiarów wymagają również wyboru strefy czasowej, w jakiej wykonywane sa badania, formatu drukowanych raportów, właczenia lub wyłączenia pomiaru toronu (²²⁰Rn), cyklu pracy pompy, dźwięków ostrzegawczych oraz jednostek. W aparaturze RAD7 standardowe jednostki dla powietrza są ustawione na Bq/m^3 , natomiast dla wody przyjęte jest pCi/L. Przeliczenie z jednostek pCi/L na jednostki Bq/L możliwe jest dopiero w momencie przetwarzania wyników w specjalnym oprogramowaniu CAPTURE. RAD7 wyposażony jest w krzemowy detektor półprzewodnikowy, zamieniający promieniowanie alfa na sygnał elektryczny. Umiejscowiony jest on w komorze o pojemności 0,7 litra i kształcie półkuli, która pokryto od środka przewodnikiem. Wewnętrzny obwód wysokiego napięcia ładuje przewodnik do 2000-2500 V, co tworzy pole elektryczne w objętości komory, przyciągające dodatnio naładowane czastki do detektora. Izotopy promieniotwórcze emitują cząsteczki alfa o charakterystycznych energiach, które są rozróżniane ze względu na moc sygnału. Do określenia steżenia radonu i toronu aparatura RAD7 wykorzystuje energię pochodzącą od polonu-218 i polonu-216, pozostałe produkty rozpadu nie są brane pod uwagę (Durridge Company Inc., 2017; Skupio et al., 2018).

Do realizacji badań w niniejszej pracy zastosowano aparaturę RAD7 z systemem Big Bottle (rysunek 1), z uwagi na optymalny zakres pomiarowy i możliwość pobierania próbek wody o objętości 2,5 L. System ten cechuje się limitem detekcji na poziomie poniżej 1 pCi/L (0,04 Bq/L). Producent podaje, że dolna granica wykrywalności (ang. *lower limit of detection*, LLD) dla pomiaru 300-minutowego może osiągnąć poziom 0,25 pCi/L. Podstawowy zestaw składa się z takich elementów jak: dwie butle 2,5 L, osuszacz laboratoryjny oraz stojak, aerator wraz z przejściową zakrętką do butli, termometr rejestrujący zmiany temperatury butli, zestaw przewodów łączących poszczególne elementy układu, filtru oraz pułapki na nadmiar wody (ang. *bubble trap*). Układ ma za zadanie napowietrzyć butlę z wodą i uwolnić radon do wolnej przestrzeni butli, przewodów oraz detektora. Analizowany gaz



Rysunek 1. System Big Bottle do pomiarów radonu w wodzie (Durridge Company Inc., 2023 – modyfikacja) **Figure 1.** Big Bottle system for radon measurements in water (Durridge Company Inc., 2023 – modification)

powinien posiadać jak najniższą wilgotność, stąd też stosuje się laboratoryjny osuszacz o dużej objętości (Ezzuladdin, 2014). W układzie istnieje również konieczność stosowania zacisku rurowego na jednym z przewodów – w momencie jego zaciśnięcia odcinany jest przepływ poza aeratorem, co wymusza napowietrzanie wody (powstawanie bąbelków); w momencie osiągnięcia równowagi pomiędzy radonem w wodzie a powietrzem w układzie zacisk może zostać zwolniony, przez co następuje przepływ w układzie z pominięciem procesu odpowietrzania wody. Cały układ, pomimo niewielkiej średnicy przewodów, posiada stosunkowo dużą przestrzeń do zapełnienia radonem, a zatem wymaga odpowiedniego dobrania czasu badań, aby umożliwić dotarcie gazu do detektora. Im czas jest dłuższy, tym wyniki są dokładniejsze i cechują się niższymi niepewnościami, ale w przypadku wykonywania pomiarów większej liczby próbek czas zaczyna odgrywać istotną rolę, stąd ważna jest optymalizacja procesu badań i planowanie serii pomiarowych w taki sposób, aby uzyskać dobrą jakość danych w optymalnym czasie. Równowaga promieniotwórcza w układzie pomiarowym zachodzi po kilkudziesięciu minutach (po około 45 min) – po takim czasie wyniki kolejnych cykli pomiarowych zaczynają stabilizować się na podobnym poziomie. Czas ten może ulec niewielkim zmianom w zależności od koncentracji radonu w analizowanej próbce, dla wysokich stężeń czas jest wydłużony. Istnieje też możliwość stosowania mniejszych butelek PET, ale wymaga to uzupełnienia zestawu pomiarowego o odpowiednią zakrętkę przejściową oraz zmniejszonego aeratora. Przy stosowaniu butelek z tworzywa należy zwrócić uwagę na materiał, z jakiego są wykonane, ponieważ niektóre materiały przepuszczają radon (Lucchetti et al., 2016), oraz zwrócić uwagę, czy butelka nie zostanie zgnieciona podczas aeracji, a woda nie zostanie wpompowana do układu pomiarowego i nie uszkodzi detektora.

W badaniach koncentracji radonu w wodzie kluczową rolę odgrywa pobór reprezentatywnej próbki. Procedura poboru musi zostać tak przeprowadzona, żeby gaz nie wydostał się z wody przed rozpoczęciem procedury pomiarowej. Zadanie to wydaje się stosunkowo proste, ale wiele czynników uniemożliwia swobodny pobór próbki wody do 2,5-litrowej butli. Przykładowymi, trudnymi do opróbowania punktami sa płytkie strumienie i małe źródła powierzchniowe. W przypadku poboru wody ze studni głębinowych należy zwrócić uwagę na ciśnienie, z jakim jest wypompowywana woda – zbyt duże ciśnienie uniemożliwia napełnienie butli bez utraty gazu. W trakcie poboru zaleca się, aby butlę wypełniać wodą od dołu ku górze, tak aby zminimalizować proces aeracji. Standardowo do poboru wody kranowej stosowana jest przejściówka z wężem umieszczanym na dnie butli, a w przypadku wody rzecznej butla umieszczana jest na większej głębokości (jeśli to możliwe). W przypadku próbek transportowanych do laboratorium butli nie należy napełniać do końca, wymagane jest pozostawienie przestrzeni wolnej, która będzie buforem dla rozszerzającej się wody podczas zmiany temperatury. Uzupełnienie wodą szklanej butli do pełna powoduje jej zniszczenie na skutek zmian objętości. Przestrzeń wolna w butli nazwana jest przez producenta aparatury head space i w zależności od jej wielkości stosowana jest poprawka na kompensację wydzielonego gazu podczas transportu. W przypadku pomiarów wykonywanych z opóźnieniem wymagane jest również zastosowanie poprawki uwzględniającej czas połowicznego rozpadu radonu (3,835 dnia). W tym celu wykorzystywany jest współczynnik DCF (ang. decay correction factor), obliczany na podstawie wzoru: DCF = $e^{(T/132,4)}$. Podczas poboru próbki kluczowy jest zapis czasu poboru, w celu późniejszego uwzględnienia go w obliczeniach; czas T we wzorze podawany jest w godzinach.

Wyniki badań i dyskusja

Wyniki badań przedstawione w niniejszej pracy dotyczą wód z różnych źródeł. Analizowano próbki wody pobrane z rzek, wodę ze studni i wodę kranową oraz wodę ze źródła referencyjnego o znanych koncentracjach radonu. Badania wykonane w próbkach wody z różnych źródeł pozwoliły na przetestowanie aparatury RAD7 w szerokim zakresie koncentracji radonu od 0 do 440 Bq/L. Do przeprowadzenia pomiarów radonu w wodzie rzecznej wyznaczono rzeki w okolicach Wetliny w Bieszczadach (Wetlina, Smerek, Solinka oraz Wołosań), ponadto wykonano badania w wodzie z rzeki Kleśnica (Sudety). Woda kranowa oraz ze studni została pobrana z lokalizacji przy ul. Bagrowej w Krakowie, natomiast źródła referencyjne – z obszaru Dolnego Śląska.

Wody rzeczne

Badania wody rzecznej zostały wykonane w terenie bezpośrednio po poborze, jak również w laboratorium po dwóch dniach od poboru. Analiza wyników badań wody z poszczególnych rzek wykazała bardzo niskie stężenia radonu - pomimo wyznaczenia stref o podwyższonym występowaniu radonu w powietrzu glebowym. Pomiary w wodzie z rzeki Wetlinki wykonano w dwóch próbkach pobranych obok siebie. Wyniki osiągnęły ten sam poziom równy 0,047 ±0,018 Bq/L. Kolejne badania radonu in situ wykonano w próbce wody pobranej z rzeki Smerek, średni wynik wyniósł 0,031 ±0,015 Bq/L. Jest on najniższy ze wszystkich pomiarów w analizowanych wodach rzecznych. Z uwagi na bardzo niskie koncentracje radonu w rzekach Wetlinka i Smerek (rysunek 2) pobrano również próbki wody z nieco oddalonych rzek Solinka i Wołosań (rysunek 3). W przypadku tych próbek wody uzyskano wyniki na nieco wyższym poziomie niż w rzekach analizowanych wcześniej. Dla Wołosania średni wynik wyniósł 0,073 ±0,01 Bg/L, natomiast dla Solinki 0,12 ±0,2 Bq/L. Solinka cechowała się najwyższym stężeniem radonu w wodzie z analizowanych rzek w rejonie Bieszczadów. Z tego wzgledu dodatkowo pobrano dwie świeże próbki z rzeki Solinki do badań laboratoryjnych, które pozwoliły na przetestowanie aparatury pod katem badań próbek dostarczanych do laboratorium i uwzględniania czasu od poboru do analizy wody.

Badania prowadzone w laboratorium niczym się nie różnią od tych wykonywanych w terenie, układ systemu pozostaje taki sam. Różnica jest głównie w czasie, który upływa od poboru świeżej próbki do jej pomiaru, oraz w jej temperaturze, która jest mierzona podczas analizy. Woda jest bezpośrednio pobierana do butli pomiarowych, w których zostawiana jest przestrzeń około 20 ml, a następnie butle są zakręcane szczelnym korkiem i umieszczane w zabezpieczających skrzynkach z wypełnieniem wykonanym z gąbki. Podczas podłączania butli z wodą do układu część radonu może zostać odgazowana i uciec przed wykonaniem analizy, z tego względu bierze się pod uwagę dodatkowy parametr head space w analizie wyników. Próbka z rzeki Solinki została zbadana w laboratorium po dwóch dniach od poboru,



Rysunek 2. Mapa z zaznaczonymi punktami poboru próbek do badań oraz wynikami koncentracji radonu w wodzie z rzek Wetlinka i Smerek

Figure 2. Map with sampling points and results of radon concentration in water from the Wetlinka and Smerek rivers



Rysunek 3. Mapa z zaznaczonymi punktami poboru próbek do badań oraz wynikami koncentracji radonu w wodzie z rzek Wołosań i Solinka

Figure 3. Map with sampling points and the results of radon concentration in water from the Wołosań and Solinka rivers

NAFTA-GAZ

Tabela 1. Średnie wyniki dla badań radonu w wodzie rzecznej wraz z wynikami po zastosowaniu poprawki DCF (wynik pomnożony przez współczynnik DCF)

Nazwa rzeki	Miejsce badania	Przybliżony czas od poboru do pomiaru	Średni wynik [Bq/L]	Średni wynik × DCF [Bq/L]
Rzeka Wetlina	- in situ	ok. 1 godziny	0,047	0,047
Rzeka Smerek		ok. 1 godziny	0,031	0,032
Rzeka Wołosań		ok. 1 godziny	0,073	0,073
Rzeka Solinka		ok. 1 godziny	0,121	0,121
Rzeka Solinka	Lab.	ok. 2 dni	0,093	0,129
Rzeka Kleśnica	in situ	ok. 1 godziny	0,160	0,160

Table 1. Average results for radon tests in river water, with results after applying the DCF correction (result multiplied by the DCF factor)

średni wynik wyniósł 0,093 \pm 0,04 Bq/L, a z uwzględnieniem poprawki DCF wynik ten wzrósł do 0,13 \pm 0,06 Bq/L, co oznacza, że jest wynikiem bardzo zbliżonym do pomiarów wykonanych w terenie (0,12 Bq/L). Do analizy wód z rzek dodano również wyniki pomiarów z rzeki Kleśnicy, występującej w okolicach nieczynnej kopalni uranu w Kletnie. Pomimo obszaru występowania rud uranowych w najbliższym sąsiedztwie rzeki – w analizowanej wodzie zauważono jedynie nieznaczne podwyższenie koncentracji radonu w stosunku do pozostałych badań, średni wynik wyniósł 0,16 \pm 0,1 Bq/L. Uzyskane średnie wyniki koncentracji radonu w wodach rzecznych zestawiono w tabeli 1.

Woda ze studni głębinowej przy ulicy Bagrowej w Krakowie

W roku 2023 wykonano studnię głębinową na terenie Instytutu Nafty i Gazu w Krakowie przy ul. Bagrowej 1. Pozwoliło to na przeprowadzenia badań radonu w wodzie

Woda ze studni 6.0 Radon w wodzie [Bq/L] 5,0 ł 4,0 Ŷ I 3,0 2,0 Į 1.0 pomiary po 1 dniu pomiary po 2 dniach 0.0 9 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 1 2 3 5 6 7 8 10 4 Numer pomiaru wyniki RAD7 wyniki po zastosowaniu poprawki DCF średnie arytmetyczne RAD7 średnie arytmetyczne DCF

Rysunek 4. Wyniki pomiarów radonu dla dwóch próbek wody pobranych ze studni głębinowej. Pierwsza seria została wykonana po jednym dniu od poboru, natomiast druga po dwóch dniach

Figure 4. Radon measurement results for two water samples from a well. The first series was performed one day after sampling, and the second after two days

z głębokości 24 m. W trakcie testów wydajnościowych studni pobrano dwie próbki wody do badań nasycenia radonem. Czas poboru był ściśle określony z uwagi na testy wydajnościowe studni i możliwość dostępu do pompy głębinowej. Woda była tłoczona pod dużym ciśnieniem, z tego względu próbka wody przelewana do butli mogła ulec częściowemu odgazowaniu. Próbki zbadano z opóźnieniem wynoszącym jeden oraz dwa dni od poboru w celu zasymulowania poboru próbek w terenie i wykonania badań w laboratorium. Pomiary zaplanowano tak, aby określić koncentrację radonu w wodzie, sprawdzić możliwości stosowania poprawki DCF oraz określić czas, po jakim składowe wyniki osiągają stabilizację. Pomiary dwóch próbek przeprowadzono z zastosowaniem dziesięciu 15-minutowych cykli, a wyniki zestawiono na rysunku 4. Niebieskie punkty przedstawiają pełny zakres wyników uzyskanych bezpośrednio z aparatury RAD7. Dwa pierwsze wyniki częściowe są znacznie zaniżone z powodu analizy radonu, który jeszcze nie zdążył się uwolnić z wody i wypełnić komory pomiarowej. Równowaga w układzie została osiągnięta po około 30 minutach, z tego względu do dalszej analizy te wyniki są odrzucane. Średnie

> wyniki uzyskane bezpośrednio z aparatury RAD7 po pierwszym dniu i po dwóch dniach odbiegały od siebie i wynosiły kolejno 3,27 Bq/L i 2,85 Bq/L. Punkty pomarańczowe reprezentują wyniki po wprowadzeniu poprawki DCF oraz po odrzuceniu dwóch pierwszych pomiarów częściowych. W tym przypadku wyniki uzyskane po jednym i dwóch dniach od poboru znacznie się do siebie zbliżyły, średnie arytmetyczne z dwóch serii pomiarowych wynosiły $3,86 \pm 0,18$ Bq/L oraz 3,98 ±0,23 Bq/L. Z uwagi na krótki czas połowicznego rozpadu radonu poprawka DCF jest konieczna do stosowania, a dostarczone do laboratorium próbki muszą być przeanalizowane, zanim radon ulegnie rozpadowi.

09/2024

Woda kranowa

Badania radonu przeprowadzono również w próbce wody kranowej, pobranej w laboratorium przy ul. Bagrowej 1 w Krakowie. Tak jak w przypadku pomiarów wody ze studni założono dziesięć cykli pomiarowych, z czego każdy wynosił 15 min. Na rysunku 5 przedstawiono wyniki dla wody zbadanej zaraz po poborze, średnia arytmetyczna z poszczególnych cykli wyniosła 0,25 ±0,03 Bq/L. W przypadku pomiarów bezpośrednio po poborze stosowanie poprawki DCF nie jest konieczne. Pierwszy wynik w cyklu

jest zaniżony z uwagi na brak osiągniętej równowagi w układzie pomiarowym, natomiast kolejne stabilizują się na podobnym poziomie.

Woda ze źródła referencyjnego

W celu wykonania testów porównawczych i odniesienia się do wody o znanej koncentracji radonu przeprowadzono szereg badań na wodzie ze źródła w miejscowości Młynowiec, znajdującej się w zachodniej części Gór Bialskich. Źródło wypływa na powierzchnię na północno-zachodnim stoku góry Suszyca i spływa w kierunku północnym do potoku Mała Młynówka (Przylibski et al., 2022).

Próbki do badań pobrano z dwóch punktów oddalonych od siebie o kilka metrów. Punkt pierwszy, w którym woda wypływała z rury, oznaczono jako "kaskada", natomiast punkt drugi był zlokalizowany powyżej kaskady, jako "źródło górne". Źródło to cechuje się bardzo wysokimi koncentracjami radonu w wodzie i jest stale monitorowane przez zespół badawczy z Uniwersytetu Wrocławskiego. Źródło to ma kilka wypływów na niewielkim obszarze, do kilkunastu metrów. Wcześniejsze badania były prowadzone przez Przylibskiego, w kilku punktach, z uwzględnieniem odległości poboru wody od źródła górnego. Dla łatwiejszej lokalizacji punktu poboru przeznaczonego do testów porównawczych - wybrano wodę z kaskady oraz do wykonania badań wody o większym stężeniu ze źródła górnego. W wodzie źródlanej wykonano szereg pomiarów zarówno w terenie, jak i w laboratorium. Badania przeprowadzono w próbkach wody pobranej według metodyki zaprezentowanej na rysunku 6. Butla została umieszczona poniżej rury źródłowej, a wąż wprowadzono do rury w taki sposób, aby woda wpływała do niego przed kaskada, tak aby nie utracić gazu. Drugi koniec węża umieszczono na dnie butli, co również ogranicza utratę radonu podczas poboru.



Rysunek 5. Wyniki pomiarów radonu w wodzie kranowej **Figure 5.** Results of radon measurements in tap water

> Uzyskane wyniki pomiarów wykonanych *in situ* dla kaskady wynoszą średnio 185 \pm 9,2 Bq/L (22.08.2023 r.) i są zbliżone do wyników opublikowanych przez Przylibskiego, które wynosiły kolejno: 195 \pm 7 Bq/L (30.10.2021 r.) oraz 193 \pm 8 Bq/L (9.04.2022 r.), wartości te zostały przyjęte jako referencyjne. W celu ponownego wykonania pomiarów pobrano również próbki do przeprowadzenia badań w laboratorium. Pomiary wykonano po trzech dniach, z założeniem dziesięciu 15-minutowych cykli, z czego trzy pierwsze zostały usunięte do obliczeń średniej arytmetycznej wyników. Średni wynik stężenia radonu w wodzie po trzech dniach wyniósł 103 \pm 1,8 Bq/L, a po zastosowaniu poprawki DCF: 176 \pm 3,4 Bq/L, co oznacza, że również był zbliżony do wartości referencyjnej.

> Podobny system badań przeprowadzono w wodzie pobranej ze źródła górnego. Średni wynik pomiarów *in situ* przyjęto za referencyjny, a wynosił on 444 Bq/L. Po trzech dniach wykonano pomiary w laboratorium i wynik spadł do 219 \pm 6,9 Bq/L, po zastosowaniu poprawki DCF: 368 \pm 11,2 Bq/L. Natomiast po czterech dniach wynik wyniósł 182 \pm 4 Bq/L, z poprawką



Rysunek 6. Pobór wody z kaskady z zastosowaniem węża **Figure 6.** Water sampling from the cascade using a hose







Figure 7. Radon test results in water from the "cascade" spring in the field and laboratory three days after sampling



Figure 8. Radon test results in water from an upper spring in the field and laboratory three and four days after sampling

363 ±7,4 Bq/L. Pomimo zastosowania poprawki, zarówno po trzech, jak i czterech dniach, wyniki są zaniżone w stosunku do pomiarów wykonanych *in situ*. Wyniki badań dla kaskady i źródła górnego zestawiono na rysunkach 7 i 8, gdzie przedstawiono różnice w poszczególnych cyklach pomiarowych wraz z niepewnościami i średnimi wynikami. Na podstawie zaprezentowanych wyników nasuwa się wniosek, że przy tak wysokich stężeniach trudno jest przetransportować wiarygodną próbkę do badań w laboratorium.

Podsumowanie i wnioski

Badania koncentracji radonu wykonano w próbkach wody pobranych z różnych źródeł. Przed podsumowaniem wyników badań należy podkreślić, że pomiar radonu w pobranej próbce wody jest możliwy tylko raz z uwagi na jej odgazowanie podczas analizy, a samo badanie jest stosunkowo długie. W całej procedurze najważniejsza jest metodyka poboru próbek do badań. Woda musi być przelana do naczynia pomiarowego z zastosowaniem węża albo – w przypadku głębszych zbiorników – w pełni zanurzona podczas jej uzupełniania. Należy ograniczyć możliwość odgazowania wody podczas poboru, w przeciwnym razie wyniki są znacznie zaniżone. Ważnym elementem podczas poboru jest pozostawienie wolnej przestrzeni w butli (ang. *head space*), jako że uzupełnienie butli do pełna może skutkować pęknięciem naczynia i utratą próbki wody.

Pierwsze pomiary wykonywano w wodzie rzecznej, wyniki były na poziomie poniżej 1 Bq/L, ale cechowały się zróżnicowaniem i mieściły w limicie detekcji urządzenia. Badania przeprowadzone na wodzie pobranej podczas wiercenia studni przy ul. Bagrowej w Krakowie wykazały stabilność stosowania poprawki DCF po jednym i po dwóch dniach od poboru, a wyniki przekroczyły 3,0 Bq/L. Badania wykonano także na wodzie kranowej - średni wynik wyniósł 0,25 Bq/L. Na przykładzie tego pomiaru wykazano, że wyniki dla wartości oscylujących w granicach 0,25 Bq/L stabilizują się już po 15 minutach, a liczba cykli może zostać zmniejszona. Jednym z elementów pracy było wykonanie badań porównawczych w celu sprawdzenia poprawności stosowanej metodyki badawczej. Do pomiarów referencyjnych wykorzystano wodę ze źródła zlokalizowanego na Dolnym Śląsku w miejscowości Młynowiec. Seria pomiarowa in situ umożliwiła uzyskanie wartości zbliżonych do wyników opublikowanych przez prof. Przylibskiego. Do badań w laboratorium pobrano trzy próbki, jedną z kaskady i dwie ze źródła górnego. Koncentracje radonu z czasem spadały,

w tym przypadku poprawka DCF miała kluczowe znaczenie i pozwoliła uzyskać wyniki zbliżone do tych z badań wykonanych bezpośrednio w terenie.

Na podstawie otrzymanych wyników można stwierdzić, że najpewniejszym sposobem jest wykonywanie pomiarów *in situ* z zastosowaniem odpowiedniej metody poboru próbki. W przypadku pomiarów przeprowadzanych z opóźnieniem poprawka DCF jest konieczna, a czas od poboru do badania musi być ograniczony do minimum, najlepiej gdy nie przekracza trzech dni od poboru. Na podstawie analizy uzyskanych wyników można stwierdzić, że opracowana metodyka pomiarowa z zastosowaniem aparatury RAD7 z systemem Big Bottle pozwala na wykonywanie dokładnych badań radonu w wodzie dla niskich stężeń, do limitu detekcji 0,04 Bq/L.

Artykuł powstał na podstawie pracy statutowej pt. Zastosowanie aparatury RAD i RT-50 do badań promieniotwórczości wody, praca INiG – PIB; nr zlecenia: 0019/SW/2023, nr archiwalny: DK-4100-0002/2023.

Literatura

- Czarny G., Pociask-Karteczka J., Nieckarz Z., 2021. Zmienność cech fizycznych i chemicznych wód źródlanych w zlewni Zagórzańskiego Potoku (Pogórze Spisko-Gubałowskie). *Przegląd Geologiczny*, 69: 150–160. DOI: 10.7306/2021.9.
- Durridge Company Inc., 2017. RAD7 Radon Detector User Manual. Revision 7.4.3. *Boston Rd*.
- Durridge Company Inc., 2023. RAD7. Electronic Radon Detector – User Manual. Revision 2023-03-227. https://durridge.com/documentation/RAD7%20Manual.pdf> (dostep: 14.11.2023).
- Ezzuladdin S.K., 2014. Radon-222 and Radium-226 Activity Concentration Measurement in Erbil Governorate Drinking Water Resources Using Active and Passive Detection Methods. DOI: 10.13140/RG.2.1.2846.3121.
- Gillmore G.K., Crockett R.G.M., Przylibski T.A., 2010. Preface "IGCP Project 571: Radon, Health and Natural Hazards". *Natural Hazards Earth System Sciences*, 10: 2051–2054. DOI: 10.5194/ nhess-10-2051-2010.
- Korzeniowska-Rejmer E., 2008. Radon w gruncie i techniki redukcji jego stężenia w obiektach budowlanych. *Czasopismo Techniczne. Środowisko*, 105(1-Ś): 73–88.
- Lucchetti C., De Simone G., Galli G., Tuccimei P., 2016. Evaluating radon loss from water during storage in standard PET, bio-based PET, and PLA bottles. *Radiation Measurements*, 84: 1–8. DOI: 10.1016/j.radmeas.2015.11.001.
- Maciejewski P., 2023. Zmiany stężenia aktywności ²²²Rn w radonowej wodzie leczniczej na poszczególnych etapach: od wydobycia kopaliny ze złoża do wykorzystania tworzywa radonowego w zabiegach radonoterapii. *Rozprawa doktorska – Politechnika Wrocławska*.
- Metryka-Telka M., Styś-Maniara M., Dołhańczuk-Śródka A., 2022. Activity of ²²²Rn in tap water in Kielce County. *Structure and Environment*, 14: 55–62. DOI: 10.30540/sae-2022-007.
- Otton K.J., 1992. The Geology of Radon. U.S. *Department of the Interior/USGS*.

- Pachocki K.A., Wieprzowski K., Bekas M., Różycki Z., 2009. Występowanie radonu ²²²Rn w wodach leczniczych. *Roczniki Państwowego Zakładu Higieny*, 60(2): 129–136.
- Przylibski T.A., 2005. Radon. Składnik swoisty wód leczniczych Sudetów. Oficyna Wydawnicza Politechniki Wrocławskiej.
- Przylibski T.A., 2018. Radon: a radioactive therapeutic element. Geological Society. *Special Publications*, 451: 209–236. DOI: 10.1144/sp451.7.
- Przylibski T.A., Maciejewski P., Zagożdżon K.D., Zagożdżon P.P., 2022. Szybkość uwalniania się ²²²Rn z wód podziemnych do atmosfery. *Przegląd Geologiczny*, 70(10): 742–750. DOI: 10.7306/ 2022.27.
- Richon P., Klinger Y., Tapponnier P., Li Ch.-X., Van Der Weird J., Perrier F., 2010. Measuring radon flux across active faults: Relevance of excavating and possibility of satellite discharges. *Radiation Measurements*, 45(2): 211–218. DOI: 10.1016/ j.radmeas.2010.01.019.
- Riudavets M., de Herreros M.G., Besse B., Mezquita L., 2022. Radon and Lung Cancer: Current Trends and Future Perspectives. *Cancers*, 14(13): 3142. DOI: 10.3390/cancers14133142.
- Rupak W.Q., Nabaz A., Karwan W.Q., Saddon T.A., Hewa Y.A., 2021. Relationship between radon concentration and physicochemical parameters in groundwater of Erbil city, Iraq. *Journal* of Radiation Research and Applied Sciences, 14(1): 61–69. 10.1080/16878507.2020.1856588.
- Sasaki T., Gunji Y., Okuda T., 2004. Radon emanation dependence on grain configuration. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 41(10): 993–1002.
- Skupio R., Kowalska S., Jankowski L., 2018. Analysis of influence of environmental conditions and natural gamma radiation for radon concentration measurements. *Nafta-Gaz*, 74(8): 584–591. DOI: 10.18668/NG.2018.08.03.
- Vaupotič J., Gregorič A., Kobal I., Žvab P., Kozak K., Mazur J., Kochowska E., Grządziel D., 2010. Radon concentration in soil gas and radon exhalation rate at the Ravne Fault in NW Slovenia. *Natural Hazards and Earth System Sciences*, 10(4): 895–899. DOI: 10.5194/nhess-10-895-2010.
- Zalewski M., Karpińska M., Mnich Z., Kapała J., 1997. Koncentracja radonu w wodzie na obszarze północno-wschodniej Polski. *Przegląd Geologiczny*, 45(5): 523–525.
- Zdrojewicz Z., Belowska-Bień K., 2004. Radon i promieniowanie jonizujące a organizm człowieka. *Postępy Higieny i Medycyny Doświadczalnej*, 58: 150–157.



Dr inż. Rafał SKUPIO

Adiunkt; Kierownik Zakładu Geofizyki Wiertniczej Instytut Nafty i Gazu – Państwowy Instytut Badawczy ul. Lubicz 25 A 31-503 Kraków E-mail: *rafal.skupio@inig.pl*



Mgr inż. Kamil HEBDA Asystent w Zakładzie Geofizyki Wiertniczej Instytut Nafty i Gazu – Państwowy Instytut Badawczy ul. Lubicz 25A 31-503 Kraków E-mail: *kamil.hebda@inig.pl*