

Jan Antoni RUBIN¹
Tadeusz ZAKRZEWSKI²

EKSHALACJA RADONU Z BETONÓW LEKKICH KRUSZYWOWYCH W FUNKCJI ICH POROWATOŚCI

1. Wprowadzenie

Promieniotwórczość naturalna [1] – inaczej radiacja – to przede wszystkim promieniowanie jonizujące, które oddziałuje z materią, a w tym i z ciałem ludzkim indukując szkodliwe efekty w postaci bądź to promieniowania wtórnego, bądź też zmian biologicznych. Źródłem radiacji są radionuklidy. Największy wpływ na natężenie promieniowania pochodzącego od naturalnych radionuklidów mają w budownictwie następujące szeregi promieniotwórcze:

- ❖ potasowy (reprezentowany przez potas K-40);
- ❖ uranowy (reprezentowany przez rad Ra-226; pierwiastek ten stanowi źródło emanacji do powietrza gazu radioaktywnego radonu Rn-222);
- ❖ torowy (reprezentowany przez tor Th-232).

Ponadto wybuchy jądrowe i awarie energetyki jądrowej wprowadzają do środowiska cez (Cs-134 i Cs-137). Radionuklidy te, mogą występować w dość sporych ilościach w materiałach i surowcach budowlanych pochodzenia organicznego.

Przemianom jądrowym towarzyszą trzy rodzaje promieniowania:

- ❖ cząstki α – jądra helu o energii rzędu 4-9 MeV; jest to promieniowanie o małej przenikliwości i niewielkim zasięgu;
- ❖ promieniowanie β – strumień elektronów; cząstki te mają niewielką energię, rzędu 1-3 MeV oraz stosunkowo małą przenikliwość;
- ❖ promieniowanie γ – o charakterze fali elektromagnetycznej; jest to promieniowanie o dużym zasięgu i bardzo dużej przenikliwości.

Dla zdrowia najpoważniejsze zagrożenie stanowi promieniowanie γ ze względu na duży zasięg i przenikliwość, a także promieniowanie α ze względu na dużą energię.

2. Zakres pracy

Celem niniejszego tematu badawczego było określenie wielkości ekshalacji radonu z betonów lekkich drobnokruszywowych o strukturze zwartej, jak również wyznaczenie ich promieniotwórczości naturalnej. Zakres pracy obejmował:

¹ Mgr inż., Politechnika Śląska, Gliwice; e-mail: jantoni@zeus.polsl.gliwice.pl

² Dr hab., Profesor Politechniki. Śląskiej; Gliwice.

- Kształtowanie mediów próbnych na bazie elporytu (Elektrownia „Rybnik”), łupka hałdowego (KWK „Rydułtowy”) i kruszywa żużlowo – łupkowego (stara hałda k.Rybnika), a także cementów CEM I 32,5R i CEM II/A–S 32,5R (Cementownia „Strzelce Opolskie”) oraz CEM III/A 32,5 (Cementownia „Rudniki”). Wartości gęstości nasypowych, a także wartości współczynników kwalifikacyjnych f_{1max} i f_{2max} surowców wyjściowych zaprezentowano w tablicy nr 1.
- Ekspozycję detektorów „Pico–Rad” w komorze pomiarowej zestawu HP Alpha (zbiornik metalowy, uszczelniony i szczelnie zamykany, o pojemności 25 dm³). Ekspozycji dokonano w Pracowni Dozymetrii Budowlanej Katedry Procesów Budowlanych Politechniki Śląskiej w Gliwicach, (rys.1). W komorze pomiarowej eksponowano każdorazowo jedną próbkę betonową w obecności trzech detektorów jw. Pojedyncze ekspozycje były wykonywane w czasie 48 godzin.
- Dostarczenie w/w detektorów do Samodzielnej Pracowni Badań Promieniowania Jonizującego Instytutu Techniki Budowlanej w Warszawie – po ich naekspozowaniu, gdzie zostały wykonane pomiary za pomocą licznika scyntylacyjnego z ciekłym scyntylatorem (LSC) w systemie analizatora „TRI – CARB” 1900 TR (rys.2) zgodnie z [2] – tablica nr 3.
- Pomiary promieniotwórczości naturalnej omawianych mediów próbnych spektrometrem półprzewodnikowym HPGe w Zakładzie Geofizyki Jądrowej Akademii Górniczo – Hutniczej w Krakowie (rys.4) oraz w Zakładzie Zastosowań Radioizotopów Politechniki Śląskiej w Gliwicach (rys.5); zgodnie z [3] – tabl. nr 2.
- Dostarczenie próbek do badań porowatości na porozymetrze rtęciowym Carlo Erba 2000 (rys.6); badania te zostały przeprowadzone w Katedrze Energetyki Procesowej Politechniki Śląskiej w Katowicach – tablica nr 3.

Tablica 1. Wybrane cechy techniczne surowców wyjściowych.

Lp.	Surowiec wyjściowy:	f_{1max} [-]	f_{2max} [Bq/kg]	ρ_{nz} [kg/dm ³]
1.	Elporyt	0,899	120,12	0,788
2.	Łupek hałdowy	0,988	146,00	1,314
3.	Kruszywo żużlowo – łupkowe	1,600	343,00	0,875
4.	Cement CEM I	0,190	33,94	–
5.	Cement CEM II	0,261	46,46	–
6.	Cement CEM III	0,327	65,30	–

3. Wyniki badań laboratoryjnych

Z surowców omówionych w punkcie 2 wykonano walce z wnąką (rys.3), dostosowane do kształtu i wymiarów naczynia pomiarowego stosowanego w pomiarach promieniotwórczości naturalnej materiałów budowlanych – naczynie typu Marinelli.

Zastosowane kruszywo, to: elporyt (fr.0÷2 mm; 70% wag.), łupek hałdowy (fr.2÷4 mm; 20% wag.) i kruszywo żużlowo – łupkowe (fr.4÷8 mm; 10% wag.). Proporcje składników (wagowo) podano poniżej:

CEMENT:	KRUSZYWO	
1	:	2 (seria „2/I”);
1	:	3 (serie „3/I”, „3/II”, „3/III”);
1	:	4 (seria „4/I”);
1	:	5 (seria „5/I”).

Stosunek wodno – cementowy (w/c) przyjęto jako constans; wynosił on 1,28.

Badania wykonano na próbkach wysuszonych do stałej masy, po 28 dn. dojrzewania w komorze klimatycznej.



Rys.1. Stanowisko pomiarowe HP Alpha (Politechnika Śląska, Gliwice).



Rys.2. Analizator „TRI – CARB” 1900 TR (ITB, Warszawa).



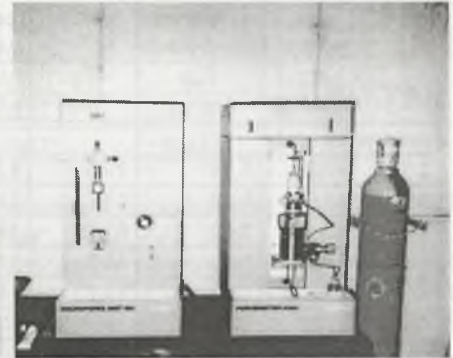
Rys.3. Próbkę i formę typu Marinelli (Politechnika Śląska, Gliwice).



Rys.4. Spektrometr półprzewodnikowy HPGe (AGH, Kraków).



Rys.5. Spektrometr półprzewodnikowy HPGe (Politechnika Śląska, Gliwice).



Rys.6. Porozymetr rtęciowy Carlo Erba 2000 (Politechnika Śląska, Katowice).

W tablicy nr 2 zaprezentowano wartości gęstości objętościowych, stężeń radionuklidów naturalnych oraz współczynników kwalifikacyjnych dla omawianych

betonów lekkich. W tabelicy nr 3 zebrano z kolei wyniki badań porozymetrycznych, a także wyniki pomiarów „radonowych” dla betonów j.w.

Wielkości ekshalacji radonu z próbek betonowych wyznaczono w oparciu o opracowaną zależność:

$$E_{Rn} = \frac{S_{Rn} \cdot V_k \cdot \lambda_{Rn}}{F_{pr} \cdot (1 - e^{-\lambda_{Rn} t})} \quad (1)$$

- gdzie:
- E_{Rn} – ekshalacja radonu z próbki, [Bq/m²h];
 - S_{Rn} – pomierzone stężenie radonu, [Bq/m³];
 - V_k – objętość komory pomiarowej, [m³];
 - λ_{Rn} – stała rozpadu Rn-222 = 7,56 × 10⁻³, [h⁻¹];
 - F_{pr} – powierzchnia całkowita próbki, [m²];
 - t – czas ekspozycji próbki w komorze pomiarowej, [h].

Tabela 2. Wyniki pomiarów promieniotwórczości naturalnej.

Seria	Gęstość ρ_o [kg/dm ³]	Stężenie radionuklidów [Bq/kg]:			Współczynniki kwalifikacyjne:	
		S_K	S_{Ra}	S_{Th}	f_{1max} [-]	f_{2max} [Bq/kg]
2/I	1,377	463,91±7,29	75,26±2,30	36,92±1,07	0,500	77,56
3/I	1,337	521,68±6,86	81,18±2,42	41,98±1,18	0,554	83,60
3/II	1,331	522,04±7,94	86,51±2,60	44,47±1,26	0,580	89,11
3/III	1,312	517,73±8,33	89,45±2,71	45,15±1,29	0,591	92,16
4/I	1,282	580,96±8,67	89,52±2,82	45,13±1,32	0,608	92,34
5/I	1,222	570,35±5,80	92,18±2,58	45,91±1,25	0,614	94,76

Tabela 3. Wyniki badań porozymetrycznych oraz pomiarów „radonowych”.

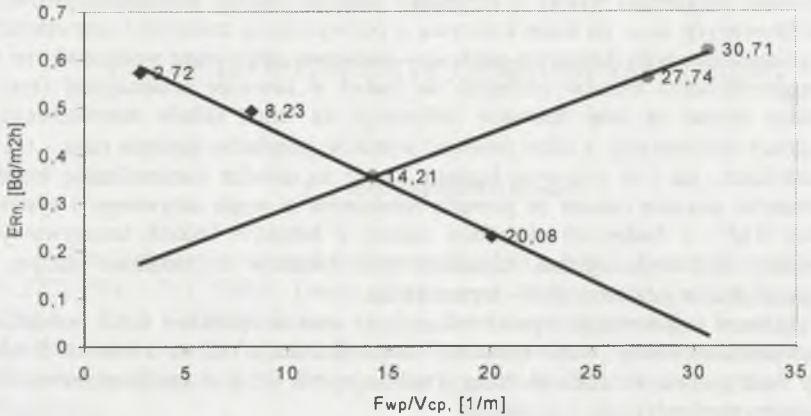
Seria	Objętość całkowita porów V_{cp} [mm ³ /g]	Powierzchnia właściwa porów F_{wp} [m ² /g]	Sredni promień porów P_p [nm]	Porowatość całkowita P_c [%]	Max stężenie radonu S_{Rn} [Bq/m ³]	Ekshalacja radonu E_{Rn} [Bq/m ² h]	Współczynnik emanacji η [%]
„tło”	-	-	-	-	13,80	-	-
2/I	140,91	2,83	79,3	12,96	34,55	0,2288	0,29
3/I	114,02	1,62	63,0	11,63	53,02	0,3547	0,42
3/II	130,52	3,62	63,0	19,70	83,78	0,5606	0,63
3/III	119,19	3,66	31,3	17,40	93,21	0,6178	0,67
4/I	105,73	0,87	78,6	15,01	73,24	0,4920	0,53
5/I	91,98	0,25	1981,9	12,32	84,88	0,5721	0,60

Tzw. współczynnik emanacji η , który określa jaka część powstałego w materiale radonu zdoła opuścić nanopory i wydostać się na zewnątrz struktury mineralnej, można wyznaczyć przy użyciu wzoru:

$$\eta = \frac{E_{Rn}}{S_{Ro}} \cdot 100\% \quad (2)$$

4. Analiza wyników badań

Spośród parametrów charakteryzujących porowatość betonów (tablica nr 3) wartość liczbową stosunku powierzchni właściwej porów (F_{wp}) do objętości całkowitej porów (V_{cp}) wykazuje największą korelację z wielkością ekshalacji radonu (E_{Rn}). Relację między tymi wielkościami zilustrowano na rys.7.



Rys.7. Zależność pomiędzy porowatością betonów, a ekshalacją z nich radonu. (Gdzie: • – wartości dla betonów kształtowanych przy użyciu różnych cementów; ◆ – wartości dla betonów kształtowanych przy użyciu zróżnicowanej ilości cementu portlandzkiego).

W obu przedstawionych tutaj przypadkach uzyskano zależności liniowe, które można zapisać w postaci równania:

$$E_{Rn} = A \cdot \left(\frac{F_{wp}}{V_{cp}} \right) + B \quad (3)$$

Tablica 4. Wartości współczynników „A” i „B” oraz wartości korelacji

Ozn.	Symbol betonu:	A	B	k
•	3/I, 3/II, 3/III	+ 0,0157	+ 0,1303	0,9992
◆	2/I, 3/I, 4/I, 5/I	- 0,0201	+ 0,6396	0,9961

Dla zaprezentowanych powyżej zależności otrzymanych metodą regresji liniowej, wartości korelacji są bardzo „wysokie”.

Analizując uzyskane wyniki oraz bazując na informacjach zaczerpniętych z literatury przedmiotu, można dostrzec także łączną współzależność pomiędzy gęstością objętościową, stężeniem radu, jak również strukturą wewnętrzną badanych mediów próbnych – w kontekście wydzielania się z nich radonu.

W tym ostatnim przypadku wynika to z porowatej struktury materiału oraz z zawartej w nim odpowiedniej ilości i o określonym wymiarze porów efektywnych, odpowiedzialnych za transport radonu; co w funkcji czasu wiąże się także ze stałą rozpadu tego promieniotwórczego gazu.

5. Podsumowanie

1. Na podstawie przeprowadzonych badań oraz analizy ich wyników została potwierdzona pozytywna ocena zastosowania metody i systemu „Pico-Rad” do badania emisji radonu Rn-222 z próbek materiałów budowlanych zawierających rad Ra-226. Dotyczy to przede wszystkim materiałów i surowców pochodzenia mineralnego.

Uzyskane dotychczas wyniki w przypadku betonów lekkich drobnokruszywowych kształtowanych m.in. na bazie kruszywa o podwyższonej zawartości pierwiastków promieniotwórczych (kruszywo żuźlowo – łupkowe), dają cenne wskazówki co do przygotowywania mediów próbnych do badań w komorze emanacyjnej (rys.1). Bardzo istotne są tutaj dokładne informacje na temat składu surowcowego i struktury wewnętrznej, a także pewność wyników pomiarów stężenia radu – tak w składnikach, jak i w gotowym betonie. Mając na uwadze minimalizację błędów pomiarów stężenia radonu za pomocą detektorów z węgla aktywnego i systemu „Pico-Rad”, w badaniach ekshalacji radonu z betonów lekkich kruszywowych powinny być wykorzystane składniki tych betonów o możliwie dużym – technologicznie uzasadnionym – stężeniu radu.

2. Uzyskane w trakcie badań wyniki wskazują, iż wraz ze spadkiem ilości cementu w mieszance betonowej ($w/c = \text{constans}$) rośnie ekshalacja radonu z betonu. Z kolei gdy ilość spoiwa jest stała, ekshalacja radonu rośnie wraz ze spadkiem zawartości klinkieru portlandzkiego w cemencie.

Wyznaczone w niniejszej pracy wartości współczynników emanacji radonu η zawierają się w przedziale $0,29 \div 0,67\%$ i są wyraźnie mniejsze od 5% przyjętych do obliczeń w Instrukcji ITB [3]. Wartości współczynników η dla różnych materiałów budowlanych można znaleźć w [4], np. dla ceramiki $\eta = 0,4\%$, a dla żuźła hutniczego $\eta = 0,8\%$.

Literatura

- [1] L. Czarnecki, T. Broniewski, O. Henning: „Chemia w budownictwie”. Arkady. Warszawa, 1994r.
- [2] Instrukcja ITB Nr 352/98: „Metody i warunki wykonywania pomiaru stężenia radonu w powietrzu w pomieszczeniach budynków przeznaczonych na stały pobyt ludzi”. Warszawa, 1998r.
- [3] Instrukcja ITB Nr 234/95: „Wytyczne badania promieniotwórczości naturalnej surowców i materiałów budowlanych”. Warszawa, 1995r. G.Neroth: „Radon in Innenräumen. Ergebnisse einer Untersuchungsreihe im Fichtelgebirge”. Bauphysik 15 (1993), Heft 5.

Badania wykonano w ramach projektu badawczego № 7 T07E 024 16 finansowanego przez Komitet Badań Naukowych w latach 1999 – 2000.

THE RADON EXHALATION FROM LIGHTWEIGHT CONCRETE DEPENDING ON THEIR POROSITY

Summary

There are presented results of experiments and research of lightweight closed grain structure concrete's – the quantitative and qualitative influence of porosity of their structure on radon exhalation. In their elporyt from Electric Power Station Rybnik, shale from main KWK Rydułtowy and slag – shale aggregate from nine waste dumps near Rybnik were used.