

Bogusław MICHALIK
Stanisław CHAŁUPNIK
Jan SKOWRONEK
Główny Instytut Górnictwa

WYSTĘPOWANIE NATURALNYCH IZOTOPÓW PROMIENIOTWÓRCZYCH
W WĘGLACH GZW - METODYKA I WSTĘPNE WYNIKI BADAŃ

Streszczenie. W pracy poruszono temat zależności występowania naturalnych radionuklidów od ich pochodzenia. Podano zakresy zmienności oraz średnie stężenia radu Ra-226, Ra-228, potasu K-40 dla poszczególnych gwarectw oraz grup pokładów. Opisano oryginalną metodę pomiarową opartą na tradycyjnym zestawie spektrometrycznym uzupełnionym mikrokomputerem.

1. WSTĘP

Naturalna promieniotwórczość węgla pochodzących z GZW nie jest dotychczas rozpoznana w sposób zadowalający. Istniejące informacje dotyczące tego zagadnienia są nader skromne. Pochodzą głównie z opracowań rozpatrujących ten problem pod kątem skażeń środowiska naturalnego powstających w rezultacie spalania dużych ilości węgla kamiennego. Brak jest prac analizujących zależność występowania naturalnych radionuklidów od własności fizykochemicznych węgla oraz jego pochodzenia. Celem niniejszej pracy jest rozpoznanie tego zagadnienia.

2. WYSTĘPOWANIE NATURALNYCH RADIONUKLIDÓW W SKORUPIE ZIEMSKIEJ

Podstawowe źródło promieniotwórczości naturalnej stanowią izotopy promieniotwórcze z szeregow uranu U-238, toru Th-232 (głównie Ra-226 i Ra-228) oraz izotop potasu K-40. Ich obecność w środowisku naturalnym jest zasadniczą przyczyną istnienia tzw. naturalnego tła promieniowania gamma. Średnie zawartości naturalnych izotopów w skorupie ziemskiej przedstawiono w tabeli 1. W przypadku węgla średnie zawartości tych radionuklidów są nieco niższe [1]. Jednakże zakres stwierdzonych stężeń jest znacznie większy i może sięgać nawet do kilkuset Bq/kg.

Opublikowane dane dotyczące polskich węgla są bardzo nieliczne. Tak np. podane przez J. Tomczyńską i współp. [2] prawie dwukrotnie przekraczają średnią dla węgla światowych. Z kolei R. Gragani [3] stwierdził w polskim węglu importowanym do Włoch stężenie naturalnych radionuklidów w granicach 18 Bq/kg.

Tabela 1

Średnie zawartości naturalnych izotopów w skorupie ziemskiej

Średnie stężenie Bq/kg		Zakres stężeń Bq/kg
U-238	25	10-50
Th-232	25	7-50
K-40	370	100-700

Dane w tych przypadkach odnoszą się do prób węgla "uśrednionych", przeznaczonych dla celów energetycznych. Brak jest natomiast danych dotyczących próbek pobranych bezpośrednio z pokładów.

3. METODYKA BADAŃ

3.1. Przygotowanie prób węgla

Próby do analizy spektrometrycznej były pobierane przy współpracy Laboratorium Kontroli Jakości Węgla GIG. Laboratorium to prowadzi bieżącą kontrolę jakości węgla, przez co dysponuje dużą ilością materiału badawczego. Do badań jakości węgla były pobierane próby bruzdowe z pokładów. Po wykonaniu analiz chemicznych pozostała część próby była przekazywana do Laboratorium Radiometrii GIG. Ten sposób organizacji pomiarów pozwoli na powiązanie wyników analiz spektrometrycznych z rezultatami badań fizykochemicznych oraz dokładnymi danymi na temat pochodzenia danej próby.

Próby węgla przeznaczone do analizy spektrometrycznej były przekazywane w stanie powietrzno-euchym. Węgiel był rozdrobniony, o granulacji poniżej 1,4 mm. W tej postaci węgiel umieszczony w pojemniku zapewniającym optymalną geometrię nadawały się do bezpośredniego pomiaru na spektrometrze promieniowania gamma.

3.2. Zestaw spektrometryczny

Układ pomiarowy oparto na detektorze półprzewodnikowym Ge/Li o objętości 55 cm³ oraz analizatorze wielokanałowym NOKIA-POLON LP 4840. W torze zasilania i wzmocnienia wykorzystano standardowe bloki systemu CAMAC. Analizę amplitudy impulsów przeprowadzono za pomocą analizatora wielokanałowego, wyposażonego w przetwornik A/C typu napięcie-czas i pamięć ferrytową umożliwiającą gromadzenie danych w 800 kanałach.

Pomiar pojedynczej próby węgla trwał, w zależności od jej aktywności, od kilku do kilkunastu godzin. Do obróbki widma promieniowania gamma wykorzystano mikrokomputer Sinclair Spectrum +. Zawartość 800 kanałów analizatora była przekazywana za pomocą specjalnie opracowanego interface'u do pamięci operacyjnej mikrokomputera. Interface został zbudowany w opar-

ciu o ośmiobitowy rejestr z wyjściami trójstenowymi. Jego zadanie polegało na przekształceniu danych z wyjścia analizatora z postaci dziesiętnej szeregowej na kod BCD i dopasowaniu poziomów napięć. Interface oraz procedura obsługi umożliwiały wpisanie do pamięci komputera zawartości 800 kanałów analizatora w ciągu kilku sekund.

3.3. Interpretacja widm gamma

Pomiary widm gamma wykonywano w zakresie energii od 300 do 2800 keV. W tym zakresie energetycznym występuje większość znaczących linii gamma izotopów z naturalnych szeregów promieniotwórczych. Zakres ten został ustawiony za pomocą zestawu źródeł kalibracyjnych. W odciętej części widma (poniżej 300 keV) przeważa oddziaływanie comptonowskie oraz tzw. efekt matrycy. Powyżej energii 2800 keV nie występują linie nadające się do interpretacji, pochodzące od naturalnych izotopów. Analizę zawartości radionuklidów z szeregu uranowego przeprowadzono na podstawie linii:

352 keV - Pb-214
609 keV
1120 keV
1764 keV - Bi-214,

z szeregu torowego:

911 keV
966 keV - Ac-228
563 keV
2614 keV - Tl-208

potasu:

1460 keV

Stężenie radionuklidów w poszczególnych próbach określano metodą porównania z aktywnością wcześniej przygotowanych wzorców. Wzorce przygotowano w oparciu o tłówce próby węgla z domieszką preparatów wzorcowych (ruda uranowa, piasek monacytowy, sole potasowe). Preparaty te były atestowane przez National Brunswick Laboratory, USA. Otrzymano w ten sposób wzorce o sktywnościach:

U-238 - 2770 Bq/kg
Th-232 - 414 Bq/kg
K-40 - 16500 Bq/kg

3.4. Sposób interpretacji widm

Wspomniana w poprzednim punkcie interpretacja widm była realizowana za pomocą programu "SPECTRUM". Program składa się z trzech części wykonujących:

- obsługę interface'u oraz wstępną graficzną obróbkę widma,
- gładzenie i wyszukiwanie linii (pików),
- identyfikację pików i obliczenia stężeń przez porównanie z tablicę wzorców.

Po wczytaniu danych do pamięci mikrokomputera zostaje uruchomiona procedura wstępnej obróbki widma. Wprowadzenie kilku opcji pozwala na zapisanie danych w pamięci masowej (taśma magnetofonowa lub dysk elastyczny), wykreślenie widma w całości lub fragmentach na ekranie monitora z możliwością skopiowania na drukarce, wydrukowanie dowolnego kanału.

Za względu na fakt, że liczby zliczeń w poszczególnych kanałach są obciążone błędami statystycznymi, wykonuje się tzw. gładzenie widma (smoothing). Jest to procedura pozwalająca na zmniejszenie wpływu fluktuacji statystycznych. Polega ona na porównaniu liczby zliczeń w sąsiednich kanałach. Dla stosowanego zestawu spektrometrycznego optymalny parametr gładzenia (liczba związanych ze sobą kanałów) wynosi 5. W tym przypadku użyty schemat gładzenia przyjmuje postać [4]:

$$b_n = \frac{1}{35}(-3a_{n-2} + 12a_{n-1} + 17a_n + 12a_{n+2} - 3a_{n+2})$$

gdzie:

a_n - liczba zliczeń w n-tym kanale,

b_n - liczba zliczeń w n-tym kanale po wykonaniu gładzenia.

Po wykonaniu gładzenia program umożliwia wykonanie powtórnego gładzenia lub przejście do dalszych obliczeń.

Procedura wyszukiwania pików polega na sprawdzeniu dla każdego kanału warunku:

$$(b_{n-2} + \sqrt{b_n} \cdot f) < b_n < (b_{n+2} + \sqrt{b_n} \cdot f)$$

gdzie:

f - zadany wcześniej współczynnik czułości.

Spełnienie powyższego warunku świadczy o tym, że różnice zliczeń w kanałach n i $n-2$ oraz n i $n+2$ są statystycznie istotne. Oznacza to, że w kanale n jest maksimum pików. Następnie, na podstawie zależności:

$$b_1 > b_{1-1} + \sqrt{b_1} \cdot f \quad \text{oraz} \quad b_p > b_{p+1} + \sqrt{b_p} \cdot f$$

otrzymujemy prawą i lewą granicę pików.

Na podstawie trzech wartości b_n , b_1 , b_p obliczane jest pole P pod pikiem metodą TPA (metoda trapezów). Po przeanalizowaniu całego widma następuje wydruk wszystkich wartości P z podaniem numeru kanału maksimum.

Kolejnym krokiem programu jest kalibracja energetyczna zlokalizowanych pików. Wykonuje się ją na podstawie wprowadzanych danych dwóch znanych pików. Wyznaczenie stężeń poszczególnych izotopów polega na porównaniu

otrzymanego widma energetycznego z zapisaną w pamięci tablicą wzorców i uwzględnieniu tła. Efektem działania programu jest wydruk, w którym umieszczone są kolejno: nazwa i numer kolejny próby, data i czas pomiaru, stężenie Ra-224, Ra-228, Ra-226, K-40 oraz błędy pomiaru.

4. OMÓWIENIE WYNIKÓW POMIARÓW

Na podstawie analizy 415 prób węgla ze wszystkich aktualnie eksploatowanych pokładów stwierdzono następujące średnie stężenia naturalnych radionuklidów:

Ra-226	18 Bq/kg
Ra-228	11 Bq/kg
K-40	58 Bq/kg

Stężenia naturalnych izotopów w węglach zmienia się w dość znacznych granicach. Zakresy zmienności dla poszczególnych izotopów wyglądają następująco:

Ra-226 (szereg uranowy)	0 - 121 Bq/kg
Ra-228 (szereg torowy)	0 - 105 Bq/kg
K-40	0 - 785 Bq/kg

Występujące w węglach GZW stężenia radionuklidów są różne w zależności od miejsca występowania oraz ogniwa stratygraficznego (pokładu) tabela 2, 3, 4.

Najniższą zawartość naturalnych izotopów promieniotwórczych stwierdzono w węglach z pokładów grupy 500. Średnio najniższą zawartością charakteryzują się węgle z kopalń Bytomsko-Rudzkiego GW. Zawartość Ra-226 w pokładach grupy 600 do 800 znacznie przekracza zawartość Ra-228. W pokładach grupy 200 do 400 sytuacja jest odwrotna.

W trakcie kontynuacji rozpoczętych badań należałoby sprawdzić wpływ zawartości naturalnych izotopów promieniotwórczych na własności fizykochemiczne węgla (popielność, wilgotność, głębokość załęgania).

Tabela 2

Zawartość Ra-226 (w Bq/kg) w zależności od grupy pokładów
i obszaru eksploatacji

Pokłady	B-R GW		ZGW		R-J GW		J-M GW		Średnia
	średnia	zakres	średnia	zakres	średnia	zakres	średnia	zakres	
200								0-121	22
300	13	13	22	0-115	8	0-32	18	0-45	19
400	29	0-68	20	0-55	36	3-107			21
500	5	0-35	28	0-50	8	0-54	13	8-17	7
600			15	0-82	7	0-95			27
700			47	28-65	41	0-91			42
800			22	0-90	96	96			24
Razem	8		20		20		30		18

Tabela 3

Zemartość Ra-228 (w Bq/kg) w zależności od grupy pokładów
i obszaru eksploatacji

Pokłady	B-R GW		Z GW		R-J GW		J-M GW		Średnia
	średnia	zakres	średnia	zakres	średnia	zakres	średnia	zakres	
200							15	0-71	15
300	2	2	17	0-62	10	0-40	15	0-34	15
400	19	0-42	17	0-58	29	0-105			19
500	3	0-31	8	0-45	10	0-70	22	12-32	5
600			4	0-17	13	4-26			6
700			5	5	10	0-19			7
800			5	0-28	48	48			6
Rezerwa	5		12		15		16		11

Tabela 4

Zawartość K-40 (w Bq/kg) w zależności od grupy pokładów
i obszaru eksploatacji

Pokłady	B-R GW		Z GW		R-J GW		J-H GW		Średnia
	średnia	zakres	średnia	zakres	średnia	zakres	średnia	zakres	
200									49
300	24	24	107	0-785	41	0-285	127	0-375	103
400	85	0-310	83	0-500	134	0-356			90
500	12	0-154	32	0-305	69	0-361	74	24-124	22
600			24	0-115	16	0-30			22
700			10	10	17	0-67			16
800			14	0-185	292	292			23
Razem	22		60		63		104		58

LITERATURA

- [1] United Nations Sources and Effects Ionizing Radiation United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1982 report to the General Assembly with annexes United Nations publication, New York 1982.
- [2] Tomczyńska J. i in.: The results of measurements of the natural radionuclides in coal power plants wastes and light concrete samples, Nukleonika 1981.
- [3] Gragani R. i in.: Natural Radioactivity Releases from Coal Fired and Geothermal Power Plants in Italy, Natural Radiation Environment, Bombay 1981.
- [4] Philip A.: Baedeker - Digital Methods of Photopeak Integration in Activation Analysis, Analytical Chemistry Vol. 43, p. 405.

Recenzent: Prof. dr hab. Andrzej Zastawny

НАЛИЧИЕ ЕСТЕСТВЕННЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ИЗОТОПОВ В УГЛЯХ ГУБ - МЕТОДИКА
И ПЕРВОНАЧАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Р е з ю м е

В работе оговорен вопрос зависимости выступления естественных радионуклидов от их происхождения. Даны пределы изменчивости а также средняя концентрация радия Ra-226, Ra-228, калия K-40 для отдельных горных цехов и групп пластов. Описан оригинальный измерительный метод, основан на традиционной спектрометрической системе с микрокомпьютером.

THE OCCURRENCE OF NATURAL RADIOACTIVE ISOTOPES
IN THE COALS OF THE UPPER SILESIA COAL BASIN -
METHODOCS AND PRELIMINARY TEST RESULTS

S u m m a r y

The paper deals with the subject of the dependence of the natural radionuclides occurrence on their origin. Variation ranges have been given, as well as the average concentrations of radium Ra-226, Ra-228, potassium K-40, for the particular mining companies and groups of seams. An original measuring method, based on a traditional spectrometric set, supplied with a microcomputer, has been described.