ZESZYTY NAUKOWE POLITECHNIKI ŚLĄSKIEJ 1979

Seria: MATEMATYKA-FIZYKA z. 32 Nr kol. 609

Andrzej ZASTAWNY, Edward KWAŚNIEWICZ, Barbara RABSZTYN
Instytut Fizyki Politechniki Śląskiej, Gliwice

POMIARY KONCENTRACJI TORU, URANU I POTASU W WYBRANYCH PRÓBKACH POPIOŁÓW Z ELEKTROWNI W POLSCE

Streszczenie. Pomierzono koncentracje toru, uranu i potasu w 19 próbkach popiołów scyntylacyjnym sumacyjnym spektrometrem gamma. Dużo uwagi poświęcono spreparowaniu standardów. W pomierzonych próbkach koncentracje toru zawarte są w granicach (5-60) x 10^{-6} (g/g), uranu (1-32 x 10^{-6} i potasu (2-32) x 10^{-3}.

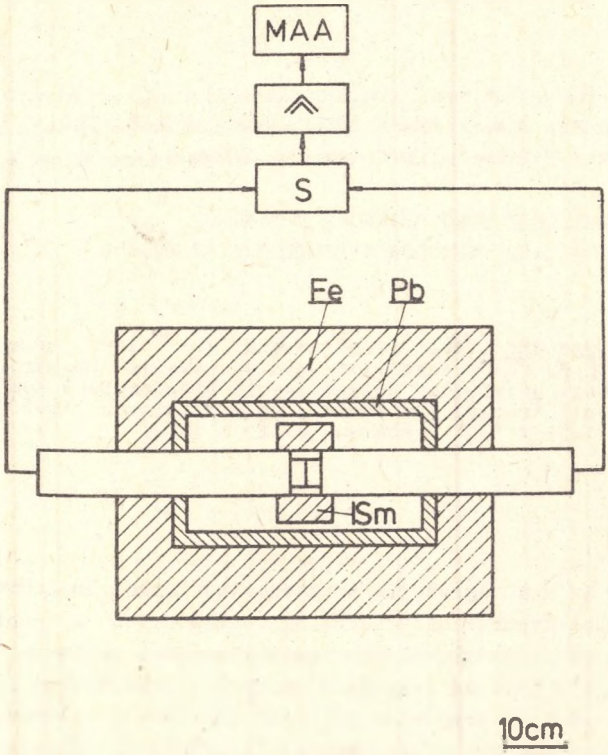
Wstęp

Jednym ze źródeł zagrożenia promieniotwórczego ludności od otoczenia może być radioaktywność materiałów wyprodukowanych z popiołów i żużli. Pewne wyniki pomiarów globalnych radioaktywności surowców stosowanych w budownictwie w Polsce są zawarte w pracy [1] oraz składu ilościowego i jakościowego w okolicy przyszłej polskiej elektrowni jądrowej w pracy [2]. W raporcie [3] dokonano oceny zagrożenia promieniotwórczego populacji w Polsce.

W pracy podjęto badania składu ilościowego i jakościowego domieszek promieniotwórczych w popiołach z elektrowni węglowych w Polsce z uwagi na ich przydatność jako surowców do produkcji elementów budowlanych. Ponieważ radioaktywności rodzin toru i uranu oraz pojedynczego radioizotopu potasu K-40 o 2 rzędy przewyższają radioaktywności innych pierwiastków w otoczeniu, tylko te trzy składniki były przedmiotem pomiarów. Wyniki pomiarów przedstawiono w formie koncentracji interesujących pierwiastków.

Aparatura i metodyka pomiarów

Schemat zestawu pomiarowego jest przedstawiony na rys. 1. Detektorami były dwie sondy scyntylacyjne, których kryształy o wymiarach Ø 40 x 20 mm przylegają do siebie czołowymi powierzchniami. Próbka była umieszczona w pojemniku pierścieniowym o średnicy wewnętrznej 6 cm, zewnętrznej 16 cm i szerokości 8 cm. Pojemnik z próbką otaczał kryształy detektorów. Układ detektorów pracował w reżimie spektrometru gamma sumacyjnego [4, 5]. Impulsy z obu detektorów były sumowane, wzmacniane i rejestrowane w odpowiednich kanałach amplitudowych.



Rys. 1. Szkic zestawu pomiarowego
Sm - próbka mierzona, S - układ sumowania sygnałów z detektorów, MAA - wielokanałowy analizator amplitud

Radioaktywności rodzin promieniotwórczych toru, uranu 238 oraz radioizotopu potasu K-40 wyznaczono z pomiarów natężenia promieniowania gamma w trzech kanałach energetycznych oznaczonych indeksami T, R i K obejmujących intensywne linie gamma następujących radioizotopów:

kanał T - linia 2615 keV radioizotopu ^{208}Tl z rodziny toru,

kanał R - linia 1765 keV radioizotopu ^{214}Bi, produkt rozpadu radu 226, fragment rodziny uranu 238,

kanał K - linia 1460 keV radioizotopu ^{40}K.

Mając na uwadze widmo promieniowania gamma badanych rodzin promieniotwórczych i wartości energii mierzonych linii, można napisać następujący układ równań między szybkościami zliczeń netto S dla poszczególnych pierwiastków, całkowitymi szybkościami zliczeń N w poszczególnych kanałach i tłem B mierzonym w poszczególnych kanałach

$$S_T = N_T - B_T$$
$$S_R = N_R - B_R - b_{RT}S_T \qquad (1)$$
$$S_K = N_K - B_K - b_{KT}S_T - b_{KR}S_R.$$

Współczynniki b_{ij} określają liczbę zliczeń tła comptonowskiego w kanale i od pierwiastka j, odpowiadającą jednemu zliczeniu netto radioizotopu j.

Zagadnieniem istotnym było przygotowanie standardów radioaktywności. Mieszanina kredy i mączki kwarcowej w proporcji 1:1 posłużyła jako medium M, z którym wymieszano odpowiednie związki radioaktywne. Sporządzono następujące standardy:

toru - 2000 g M + 0,45 g ThO_2,
radu - 2000 g M + 0,81 g roztworu radu o konc. 10^{-7} g/g,
potasu - 1060 g M + 940 g KCl,
wspólny - 1060 g M + 940 g KCl + 0,5 g roztw. radu + 0,45 g ThO_2.

Skład medium M dobrano podobny do głównych składników popiołów. Koncentracje standardów dobrano w przybliżeniu dziesięciokrotnie większe od średnich koncentracji w litosferze. Związek ThO_2 był wyprodukowany przed 1955 rokiem, roztwór radu był atestowany. Wzorzec wspólny sporządzono w celu sprawdzenia wzajemnej zgodności standardów.

Tabela 1

Ważniejsze dane standardów i innych parametrów w kanałach pomiarowych toru, radu i potasu

Standard	k^o (g/g)	c^o (cph/g)	Współcz. tła comptonowskiego	W (10^{-3})
Toru	$(1,98 \pm 0,04)10^{-4}$	$1,29 \pm 0,02$	$b_{RT} = 1,57 \pm 0,05$	1,31
Radu	$(4,05 \pm 0,1)10^{-4}$	$2,56 \pm 0,1$	$b_{KT} = 2,00 \pm 0,09$	2,25
Potasu	$0,246 \pm 0,001$	$8,05 \pm 0,2$	$b_{KR} = 1,48 \pm 0,03$	2,68

Pomiary standardów i próbek wykonano w warunkach stałej objętości próbek odpowiadającej masie próbek w granicach od 900 do 1300 g. Z uwagi na geometrię i rozmiary próbek oraz energie mierzonych linii efekt samopochłaniania, a tym bardziej jego zmian był do pominięcia. Tło medium M przyjęte do pomiarów standardów - w kanałach T, R, K było odpowiednio równe około 50, 150 i 700 cph. Pojedyncze pomiary standardów wykonywano 1 godz. W sumie wykonano 24 pomiary. W tab. 1 przedstawiono najważniejsze wyniki pomiarów standardów. Są to koncentracje k^o, szybkości zliczeń właściwe c^o (szybkości zliczeń na jednostkę masy próbki) i współczynniki tła comptonowskiego.

Z wartości k^o, c^o i znanych parametrów rozpadów promieniotwórczych, którym towarzyszą mierzone linie gamma, można wyznaczyć całkowite wydajności W rejestracji kwantów gamma wg zależności

$$W = \frac{c^o \mu}{k^o \lambda N_A pr}, \tag{2}$$

gdzie:

μ - masa gramoatomu pierwiastka,
λ - stała rozpadu,
N_A - stała Avogadry,
p - ułamek określający intensywność interesujących kwantów gamma na rozpad,
r - koncentracja radioizotopu w danym pierwiastku (dla toru i radu równa 1).

Wyliczone tym sposobem wartości wydajności W też są w tab. 1.

Przybliżona wartość dla radu wynika z niedokładnej oceny udziału kwantów gamma tła comptonowskiego od linii gamma o wyższych energiach w przypadku radu. Wartości współczynników W są dobrym kryterium oceny wiarygodności standardów i metodyki.

Ze znanych wartości k^o i c^o dla standardów oraz c dla mierzonej próbki określano koncentrację k pierwiastka radioaktywnego w próbce z zależności

$$k = c \cdot k^o/c^o. \tag{3}$$

W przypadku uranu bezpośrednio wyznaczono koncentrację radu k_R. Koncentrację uranu k_U wyliczono, przyjmując równowagę promieniotwórczą w całym szeregu, tj. z zależności

$$k_U = 3{,}00 \cdot 10^6 \, k_R. \tag{4}$$

Tabela 2

Tło B w kanałach pomiarowych
i odpowiadające mu błędy standardowe koncentracji Δk

Kanał - pierwiastek	B (cph)	Δk (g/g)
Tor	46,0	$8 \cdot 10^{-7}$
Uran	121	$5 \cdot 10^{-7}$
Potas	653	$6 \cdot 10^{-4}$

Na ogół nie można oczekiwać takiej równowagi w szeregu uranowym, dlatego wyznaczona koncentracja uranu jest koncentracją umowną. Ponieważ około 98,5% [6] skutków radioaktywności w szeregu uranowym jest powodowa-

nych przez rad i jego produkty rozpadu, przyjęta metodyka jest słuszną i ogólnie przyjętą.

Pomiary próbek trwały 4 godziny. W tab. 2 podano tło B w odpowiednich kanałach pomiarowych mierzone przy pustym pojemniku i wynikające z tego błędy standardowe koncentracji Δk.

Wyniki pomiarów, dykusja

Wykaz pomierzonych próbek jest przedstawiony w tab. 3. Oprócz próbek popiołów z elektrowni, pomierzono jedną próbkę (nr 20) cegły sprzed 1939 r. i 3 próbki (nr 21-23) piasków. Zmierzone wartości koncentracji toru, uranu i potasu są przedstawione w tab. 4. Błędy standardowe koncentracji są zawarte w granicach od wartości Δk podanych w tab. 2 dla najmniejszych koncentracji do wartości $2,5 \cdot 10^{-6}$, $2 \cdot 10^{-6}$ i $1,5 \cdot 10^{-3}$ kolejno dla toru, uranu i potasu przy największych koncentracjach. Składają się na nie błędy pomiaru c wynikające ze statystycznego charakteru zliczeń oraz w mniejszym stopniu błędy c^{o} i k^{o}.

Tabela 3

Wykaz pomierzonych próbek popiołów

Nr próbki	Opis	Elektrownia	Data poboru
1	Składowisko popiołu od 1964 do 1975	Turoszów	23.10.76
2	Z elektrofiltrów	"	24.10.76
3	III strefa odpylania	Rybnik	12.10.76
4	I strefa odpylania	"	12.10.76
5	Z odżużlaczy	Adamów	23.10.76
6	Z odżużlaczy	"	23.10.76
7	"Kocioł Skoda" z płynnym odprowadzeniem żużla	Jaworzno I	13.10.76
8	"Kocioł Borsing" z granulowanym odprowadzaniem żużla	"	13.10.76
9	Blok VI, elektrofiltry, I rząd	Pątnów	10.76
10	Blok VI, elektrofiltry, III rząd	"	10.76
11	Wielofrakcyjne kruszywo "elporyt" do wyrobu pustaków	Siersza	10.11.76
12	Druga komora spod elektrofiltru	"	4.11.76
13	Blok IX, używany do produkcji elementów budowl. przez GZPEB	Łaziska	12.10.76
14	Blok XII, dobry surowiec wtórny	"	12.10.76
15	Z składowiska mokrego	Adamów	23.10.76
16	Z elektrofiltrów	"	24.10.76
17	Lotny, elektrofiltr nr 9, frakcja II	Konin	5.11.76
18	Lotny, elektrofiltr nr 8, frakcja III	"	5.11.76

cd. tabeli 3

Nr próbki	Opis	Elektrownia	Data poboru
19	Bloki 125 MW, używany do produkcji elementów budowl. przez GZPEB	Łaziska	12.10.76
20	Cegła, produkcja przed 1939 r.	Zabrze	03.76
21	Piasek	Knurów	03.76
22	Piasek 1	Tychy	03.76
23	Piasek 2	Tychy	03.76

Tabela 4

Zmierzone wartości koncentracji k toru (T), uranu (U) i potasu (K) w próbkach oraz wyliczone moce dawek wg [6]

Nr próbki	$k_T(10^{-6}$ g/g)	$k_U(10^{-6}$ g/g)	$k_K(10^{-3}$ g/g)	P(mber/rok)
1	6,7	2,8	2,1	77
2	14,2	4,0	11,0	158
3	34,7	14,3	31,8	457
4	37,1	14,4	28,6	468
5	10,5	2,7	5,8	107
6	5,4	1,7	3,7	43
7	40,5	24,8	13,6	569
8	48,5	16,7	11,8	505
9	16,0	6,9	7,3	194
10	24,1	13,0	12,9	330
11	46,2	16,2	13,1	490
12	63,6	31,9	16,3	791
13	38,0	15,3	28,0	476
14	41,1	11,9	28,1	451
15	10,4	1,4	4,2	86
16	7,2	0,8	3,8	62
17	15,4	9,3	15,3	244
18	15,1	4,1	5,1	148
19	32,4	12,4	24,5	400
20	23,9	3,7	21,7	236
21	0,0	0,0	0,0	-
22	0,0	0,0	0,0	-
23	2,9	0,05	3,6	26

Ze znanych koncentracji można wyznaczyć radioaktywności właściwe Q jednostki masy toru, ^{238}U i potasu wg zależności

$$Q_T = 1{,}1 \cdot 10^5 \, k_T \ \text{pCi/g},$$
$$Q_U = 3{,}3 \cdot 10^5 \, k_U \ \text{pCi/g}, \qquad (5)$$
$$Q_K = 8{,}5 \cdot 10^2 \, k_K \ \text{pCi/g}.$$

W piątej kolumnie tab. 4 podano wyliczone moce dawek w budynkach wykonanych z materiałów o koncentracjach próbek wg wzoru [6]

$$P = (5{,}4 \, k_T \cdot 10^6 + 12{,}6 \, k_U \cdot 10^6 + 2{,}8 \, k_K \cdot 10^3) \ \frac{\text{mber}}{\text{rok}}. \qquad (6)$$

Wyliczone wartości mają raczej charakter szacunkowy, ich błąd dla wartości największych i średnich ocenia się na 25-30%.

Tabela 5

Ocena mocy dawek gonad populacji ludzkiej

Źródło	Moc dawki (mber/rok)
Promieniowanie kosmiczne	28
Napromieniowanie wewnętrzne od radioizotopów w organizmie człowieka K^{40}, C^{14}, Ra itp.	22
Napromieniowanie od otoczenia	49
Napromieniowanie sztuczne głównie profilaktyka medyczna	20-180
Razem	119-279

Tabela 6

Orientacyjne dopuszczalne moce dawek populacji ludzkiej w pierwszych 30 latach życia zalecanej przez Międzynarodową Komisję Ochrony Radiologicznej

Źródło	Moc dawki (mber/rok)
Medyczne napromieniowanie	150
Inne źródła	
w tym: dla ogółu 67 (wewnętrzne 50, zewnętrzne 17) sytuacje specjalne 100 (profesjonalne 33, grupy ludności 17, rezerwa 50)	167
Tło	150
Razem	467

Aby ocenić oszacowane wartości mocy dawek, przytacza się w tab. 5 i tab. 6 [7, 8] interesujące w tej sprawie dane. Z analizy tabel 5 i 6 można wysnuć wniosek, że moc dawek w budownictwie nie powinna być większa od 150-200 mber/rok. Z danych [7, 8], dotyczących mocy dawek oszacowanych w niektórych krajach, wynika, że w budynkach drewnianych są one równe około 50-60 mber/rok, ceglanych 80-110, z granitu 90-130, z betonu 70-200 mber/rok.

Biorąc pod uwagę przybliżoność wzoru (6) na moc dawki, można jednak przyjąć, że materiały, dla których wartość P jest większa od 300 mber/rok, w przypadku zastosowania w budownictwie mieszkaniowym winny być rozcieńczane (mieszane) z materiałami stosunkowo czystymi, tak aby wypadkowe koncentracje i moce dawek były niższe. Z tab. 4 widać, że wśród pomierzonych próbek jest kilka (nr 12, 7, 8) o dużych zanieczyszczeniach radioaktywnych P > 500 mber/rok. W przypadkach podwyższonej radioaktywności materiałów istotny udział mają domieszki toru i uranu a nie potasu. Niskie radioaktywności wykazują próbki z elektrowni zasilanych węglem brunatnym.

LITERATURA

[1] Pełsko J., Bysiek M., Raport CLOR - 20, Warszawa 1963.

[2] Gwiazdowski B. i inni, IAEA - SM - 180/22, 1974.

[3] Pełsko J., Raport IBJ 1576/XIX/D/B, Warszawa, 1975.

[4] Kwaśniewicz E., Rabsztyn B., Zastawny A., Scyntylacyjne i półprzewodnikowe spektrometry promieniowania gamma, w przygotowaniu do publikacji, w Zesz.Nauk. Pol. Sl.

[5] Rabsztyn B., Kwaśniewicz E., Zastawny A., Badania złożonego spektrometru gamma do pomiaru koncentracji radioaktywnych pierwiastków w materiałach, w przygotowaniu do publikacji w Zesz.Nauk. Pol.Sl.

[6] Zastawny A., Teoretyczne oszacowanie mocy dawki promieniowania gamma w budynkach.

[7] Kimel L.R., Mashkovich V.L., Zashchita of jonizirujushchih izluchenii, Atomizdat, 1966.

[8] Israel H., Krebs A., Kernstrahlung in der Geophysik, Springer-Verlag, Berlin-Gottingen-Heidelberg, 1962.

ИЗМЕРЕНИЕ КОНЦЕНТРАЦИИ ТОРИЯ6 УРАНА И КАЛИЯ
В НЕКОТОРЫХ ОБРАЗЦАХ ПЕПЛА ИЗ ЭЛЕКТРОСТАНЦИЙ В ПОЛЬШЕ

Р е з ю м е

Измерения концентрация тория, урана, калия в 19 образцах пепла с использованием гамма спектрометра. Особое внимание было посвящено на препарирование стандартов. В измеренных образцах концентрация тория находится в пределах (5-60) . 10^{-6} г/г) урана (1-32) . 10^{-6} и калия (2-32) . 10^{-3}.

MEASUREMENTS OF THE THORIUM, URANIUM AND POTASSIUM CONCENTRATION IN SOME SAMPLES OF THE ASHES FROM POLISH POWER - STATIONS

S u m m a r y

Thorium, uranium and potassium concentration were measured in 19 samples by means of the sume gamma spectrometer. Particular attention was given to the preparation of the standarts. The results of the measured concentration are closed in the ranges (5-64) . 10^{-6} g/g for thorium, (1-32) . . 10^{-6} g/g for uranium and (2-31) . 10^{-3} g/g for potassium.