



УДК 628.518:539.16

Э. Б. ХОБОТОВА, профессор, докт. хим. наук, доцент, старший научный сотрудник,

А. В. САМОКВИТ, студентка, **Л. В. ДМИТРИЧЕНКО**, студентка, **Ю. А. ШМЫРЕВА**, студентка

Харьковский национальный автомобильно-дорожный университет, г. Харьков

РАДИАЦИОННО-ХИМИЧЕСКАЯ ОЦЕНКА ОТХОДОВ ПРОМЫШЛЕННОСТИ

Гамма-спектрометрическим методом исследованы различные материалы, используемые для изготовления бетонов. Определены удельные активности естественных радионуклидов, эффективные удельные активности, установлен класс радиационной опасности строительных материалов. Показано превышение годовой эффективной эквивалентной дозы γ -облучения при использовании исследуемых материалов в бетонах. Оценена величина радоновыделения из готовых бетонов.

стройматериал, бетон, гамма-спектрометрический метод, естественный радиоизотоп, удельная радиоактивность, годовая эффективная эквивалентная доза, радоновыделение

Основными источниками облучения человека являются естественные радионуклиды (ЕР) окружающей среды. К этим источникам, в первую очередь, относятся строительные материалы, радиоактивность которых

является главной составляющей технологически измененного фона. Стройматериалы содержат такие ЕР, как: $^{223,226}\text{Ra}$, ^{232}Th , ^{238}U , ^{210}Po , ^{210}Pb , ^{40}K , а также изотопы $^{220,222}\text{Rn}$ как продукты распада урана и тория.

Безотходная технология стимулирует использование отходов некоторых отраслей промышленности для производства стройматериалов, что приводит к повышению их удельной активности, так как многие отходы концентрируют ЕР. Высокая удельная активность характерна для зол, шлаков, фосфогипса, красного шлама и других отходов. Результатом этого является повышение дозы γ -облучения людей, находящихся в каменных зданиях. Эта доза формируется при одновременном действии трех факторов: γ -излучения ЕР стройматериалов, радоновыделения из пор стройматериалов и из почвы под зданием. Однако сведения об уровнях облучения населения Украины за счет источников естественного происхождения очень немногочисленны. Мало внимания уделялось оценке опасности использования шлаков различных производств как заполнителей бетонов и связанной с этим повышенной эманацией радона.

Работа выполнена в рамках государственной Программы охраны окружающей среды – четвертого направления научно-исследовательских работ Министерства образования и науки Украины.

Целью работы являлось исследование радиоактивности ЕР в отходах промышленности центрального и восточного регионов Украины, используемых при изготовлении бетонов, а также расчет возможной концентрации радона в воздухе помещения и тканевой (легочной) дозы облучения за счет ингаляции ^{222}Rn .

Удельные активности радионуклидов определялись γ -спектрометрическим методом с полупроводни-

ковым детектором [1]. Использовались два Ge (Li) коаксиальных детектора и спектрометрическая плата АЦП. Для достижения высокого энергетического разрешения детекторы и преусилители охлаждались жидким азотом. Измеряемая проба помещалась в сосуд Маринелли; объем пробы – 1 л. Время измерения активностей ЕР в среднем составляло 2 ч. Для расшифровки спектров использовалась программа АК-1, в основу которой легли рекомендации [2]. Экспериментальные данные представлены в табл. 1. Наряду с ЕР: ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{238}U , ^{40}K были обнаружены искусственные радионуклиды $^{134,137}\text{Cs}$. Содержание отдельных радионуклидов оказалось выше, чем средние значения по СНГ и Украине. Так, удельная активность ^{232}Th (C_{Th}) была выше средней C_{Th} по СНГ ($25,5 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$) и по Украине ($33 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$) [3] в образцах угольных шлаков № 10–17, 19–22. C_{Ra} образцов № 4, 10–22 превышала среднюю C_{Ra} по СНГ ($26,6 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$) и по Украине ($28 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$) [3]. Сравнение угольных шлаков с доменными и шлаками ТЭС показало, что уровень C_{Th} в образцах № 10–17, 19–22 выше, чем средняя C_{Th} в доменных шлаках ($25 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$), а в образцах № 15, 16, 22 выше, чем C_{Th} в шлаках ТЭС ($63 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$) [3]. По ^{226}Ra аналогичная ситуация по превышению C_{Ra} доменных шлаков в образцах № 4, 10–22 ($23 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$) [3]. Значение C_{Ra} в шлаках ТЭС ($72 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$) [3] не было превышено ни в одном образце.

Рассчитано два варианта эффективной удельной активности ЕР ($C_{\text{эф}}$), используемой для сравнительных оценок радиоактивности стройматериалов. $C_{\text{эф}(1)}$ рассчитывали по уравнению:

Таблица 1. Результаты гамма-спектрометрического анализа строительных материалов и отходов производства, используемых в строительстве

Материал	Удельная радиоактивность, Бк·кг ⁻¹ (вклад, %)						Сумма удельных активностей, Бк·кг ⁻¹	$\frac{C_{\text{эф}(1)}}{C_{\text{эф}(2)}}$ Бк·кг ⁻¹	η	$C_{\text{Ra}} \cdot \eta$, Бк·кг ⁻¹	ρ , кг·м ⁻³ Р, %	C_{Rnmax} Бк·м ⁻³	$D_{\text{пер}}^{\text{г}}$ МКЗВ·год ⁻¹
	^{232}Th	^{226}Ra	^{40}K	^{238}U	^{137}Cs	^{134}Cs							
Шлак (Кременчугский автомобильный завод, г. Кременчуг)	1.92 (7.6)	8.47 (33.4)	12.9 (50.9)	–	1.74 (6.9)	0.325 (1.3)	25.4	$\frac{12.1}{12.9}$	0.009	0.08	$\frac{2.3}{15}$	0.012	16.2
Коксик (–«–)	11.3 (4.6)	13.4 (5.5)	55.1 (22.6)	164 (67.2)	0.923	0.923	243	$\frac{32.8}{33.9}$	0.1	1.34	$\frac{0.9}{49}$	0.025	33.8
Асбест (–«–)	–	2.74 (10.1)	18.7 (69.4)	–	2.92 (10.8)	2.59 (9.6)	27.0	$\frac{4.33}{7.49}$	0.044	0.12	$\frac{2.5}{15}$	0.02	27.0
Цемент (–«–)	18.3 (8.1)	42.1 (18.6)	167 (73.4)	–	–	–	227	$\frac{80.2}{–}$	0.013	0.55	$\frac{3.1}{1.5}$	0.113	152.7
Окатыш (Полтавский горнообогатительный комбинат, г. Комсомольск)	3.78 (8.5)	4.41 (9.9)	36.5 (81.7)	–	–	–	44.7	$\frac{12.5}{–}$	0.013	0.06	$\frac{3.5}{15}$	0.014	18.9
Песок морской (–«–)	3.92 (1.9)	5.76 (2.8)	84.5 (41.5)	107 (52.7)	2.06 (1.0)	–	203	$\frac{18.1}{18.7}$	0.2	1.15	$\frac{1.5}{15}$	0.015	155.4



Продолжение таблицы 1.

Материал	Удельная радиоактивность, Бк·кг ⁻¹ (вклад, %)						Сумма удельных активнос- тей, Бк·кг ⁻¹	$\frac{C_{эф.(1)}}{C_{эф.(2)}}$ Бк·кг ⁻¹	η	$C_{Ra} \cdot \eta$, Бк·кг ⁻¹	ρ , кг·м ⁻³ P, %	C_{Rnmax} Бк·м ⁻³	$D_{пер'}$ МКЗВ· год ⁻¹
	²³² Th	²²⁶ Ra	⁴⁰ K	²³⁸ U	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs							
Гравий (Кременчугский автомо- бильный завод, г. Кременчуг)	9.43 (2.2)	7.97 (1.8)	414 (95.7)	–	1.1 (0.3)	–	432	$\frac{55.5}{55.8}$	0.11	0.88	$\frac{2.7}{15}$	0.158	213.5
Бетон (–(–))	8.12 (7.5)	9.66 (9.0)	8.97 (83.5)	–	–	–	108	$\frac{27.9}{-}$	0.095	0.92	$\frac{2.4}{15}$	0.147	198.7
Асфальт (–(–))	15.4 (4.3)	15.9 (4.4)	327 (90.7)	–	2.3 (0.6)	–	361	$\frac{63.9}{64.6}$	0.015	0.24	$\frac{2.3}{20}$	0.028	37.8
Шлаки угольного производства													
Шахта Мащенко, Луганская обл.	59.3 (7.3)	53.9 (6.6)	700 (85.9)	–	1.29 (0.2)	–	814	$\frac{191}{192}$	0.009	0.485	$\frac{1.25}{15}$	0.04	54.6
СП Шахта «Первомайская», ГП «Первомайскуголь», Луганская обл.	48.4 (7.5)	52.0 (8.1)	529 (82.0)	–	15.3 (2.4)	–	644	$\frac{160}{165}$	0.009	0.47	$\frac{1.28}{15}$	0.04	54.2
Бывшая шахта имени Ирмина ГП «Стахановуголь», Луганская обл.	48.3 (6.6)	64.4 (8.8)	618 (84.6)	–	–	–	731	$\frac{180}{-}$	0.009	0.58	$\frac{1.24}{15}$	0.048	64.8
Шахта Вергулевская, ГП «Донбассантрацит», Луганская обл.	49.5 (6.3)	46.0 (5.8)	688 (87.5)	–	2.89 (0.4)	–	787	$\frac{169}{170}$	0.009	0.41	$\frac{1.31}{15}$	0.036	48.4
Государственное ОАО шахта «Красноармейская–Западная» № 1, Донецкая обл.	38.4 (6.8)	31.9 (5.7)	492 (87.5)	–	–	–	563	$\frac{124}{-}$	0.009	0.29	$\frac{1.27}{15}$	0.024	33.2
ГХК шахта «Краснолиманская», Донецкая обл.	70.1 (7.0)	60.1 (6.0)	862 (86.5)	–	3.83 (0.4)	–	996	$\frac{225}{226}$	0.009	0.54	$\frac{1.24}{15}$	0.045	60.3
Шахта имени Стаханова, г. Димитров Донецкой обл.	64.1 (5.5)	69.7 (6.0)	1020 (88.2)	–	2.81 (0.2)	–	1160	$\frac{241}{241}$	0.009	0.63	$\frac{1.28}{15}$	0.054	72.7
Шахта «Красный партизан», пос. Ясиновский	42.3 (6.5)	52.9 (8.1)	559	–	–	–	654	$\frac{156}{-}$	0.009	0.48	$\frac{1.24}{15}$	0.039	52.7
Шахта «Каменно–Восточная», г. Макеевка	24.3 (7.1)	41.1 (12.0)	277 (80.9)	–	–	–	343	$\frac{96.6}{-}$	0.009	0.37	$\frac{1.31}{15}$	0.032	43.2
Шахта имени Вахрущева, пос. Ясиновский	45.8 (5.9)	48.4 (6.3)	679 (87.8)	–	–	–	773	$\frac{166}{-}$	0.009	0.44	$\frac{1.28}{15}$	0.037	50.7
Шахта «Харьковская», г. Луганск	51.4 (8.8)	60.9 (10.4)	472 (80.8)	–	–	–	584	$\frac{168}{-}$	0.009	0.55	$\frac{1.3}{15}$	0.048	64.4
Шахта имени Васищева, г. Макеевка	49.3 (7.0)	46.4 (6.6)	610 (86.3)	–	1.04 (0.1)	–	706	$\frac{163}{163}$	0.009	0.42	$\frac{1.32}{15}$	0.037	50.0
Шахта «Краснокутская», пос. Красный Кут	63.1 (5.6)	52.7 (4.6)	1010 (89.1)	–	7.76 (0.7)	–	1140	$\frac{221}{224}$	0.009	0.47	$\frac{1.25}{15}$	0.039	52.9

$$C_{эф.(1)} = C_{Ra} + 1,31C_{Th} + 0,085C_K \quad (1)$$

а $C_{эф.(2)}$ – по уравнению:

$$C_{эф.(2)} = C_{Ra} + 1,31C_{Th} + 0,085C_K + 0,31C_{Cs-137} + 0,874 C_{Cs-134} \quad (2)$$

Расчетные данные представлены в табл. 1. Согласно им все исследуемые материалы относятся к I классу радиационной опасности строительных материалов, используемых в строительстве без ограничений. Для них должно выполняться условие [4]:

$$C_{эф.} \leq 370 \text{ Бк} \cdot \text{кг}^{-1}. \quad (3)$$

Для образцов № 10–22 величина $C_{эф.}$ значительно превышает среднюю $C_{эф.}$ по СНГ (93 Бк·кг⁻¹) и по Украине (106 Бк·кг⁻¹). Использование таких угольных шлаков в качестве вяжущего и заполнителя может привести к повышению $\bar{C}_{эф.}$ готового многокомпонентного бетона и к увеличению дозы облучения людей. В табл. 2 приведены результаты расчета $\bar{C}_{эф.}$ с учетом массовых вкладов его составляющих по формуле:

$$\bar{C}_{эф.} = \frac{\sum(C_{эф.i} \cdot m_i)}{\sum m_i}, \text{ Бк} \cdot \text{кг}^{-1}. \quad (4)$$

Рассмотрено два варианта: цементное вяжущее (Ц), смешанный мелкий заполнитель – шлак (Ш) и отработанная формовочная смесь (ОФС) ($C_{эф. ОФС} = 39.4 \text{ Бк} \cdot \text{кг}^{-1}$ [3]); смешанное цементно-шлаковое вяжущее и мелкий заполнитель – шлак.

Величину годовой эффективной эквивалентной дозы γ -облучения $D_{пом.}$ рассчитывали по формуле [3]:

$$D_{пом.} = 4.74 \bar{C}_{эф.}, \text{ мкЗв} \cdot \text{год}^{-1}, \quad (5)$$

а величину дозы, полученной за счет γ -излучения ЕР строительных материалов, $\Delta D_{ЕР}$ по разности [3]:

$$\Delta D_{ЕР} = D_{пом.} - 305, \text{ мкЗв} \cdot \text{год}^{-1}, \quad (6)$$

где 305 мкЗв·год⁻¹ – это доза, которую получили бы люди, находясь весь год на открытой местности (для географических широт Украины) [3].

Таблица 2. Значения $\bar{C}_{эф.}$ бетона, $D_{пом.}$ и $\Delta D_{ЕР}$ для многокомпонентных бетонов: Ц (образец № 4), Ш (№ 11)

Содержание компонентов, %		$\bar{C}_{эф.}$, Бк·кг ⁻¹	$D_{пом.}$, мкЗв·год ⁻¹	$\Delta D_{ЕР}$, мкЗв·год ⁻¹
Вяжущее	Заполнитель			
Ц 7	Ш: ОФС 48: 45	94.8	445	145
Ц: Ш 7: 13	Ш 80	149	707	402

Результаты расчетов показывают, что $D_{пом.}$ и $\Delta D_{ЕР}$ достаточно велики и мало зависят от $C_{эф.}$ цементной составляющей, а в основном определяются активностью шлака. Наибольшие значения доз присущи для второго варианта, в котором суммарный вклад шлака составляет 93 %. В обоих случаях превышено среднее значение $\Delta D_{ЕР}$ по СНГ 100 мкЗв·год⁻¹ [3]. Гамма-излучение бетонов второго состава превышает $\Delta D_{ЕР}$ в 4 раза и приближается к суммарной дозе за счет действия γ -излучения строительных материалов и эманирования изотопов радона из стен.

При изготовлении многокомпонентных бетонов эманирование отдельных его компонентов не изменяется, поскольку не меняется их микроструктура, например, микроструктура шлаков. Это создает возможность оценивать вклад каждого компонента бетона в $C_{эф. Ra}$, а следовательно, и скорость эксхалляции ²²²Rn, его объемную активность в воздухе и уровень облучения. Изучаемые материалы оценивались по величине радоновыделения. Не было обнаружено превышение $C_{эф. Ra}$ ($C_{Ra} \cdot \eta$) для I класса радиационной опасности строительных материалов (22.2 Бк·кг⁻¹) [3] (табл. 1).

Максимальную концентрацию ²²²Rn в порах образцов материалов $C_{Rn \max}$ рассчитывали по уравнению [3]:

$$C_{Rn \max} = \frac{C_{Ra} \cdot \rho \cdot \eta}{P}, \text{ Бк} \cdot \text{м}^{-3}, \quad (7)$$

где ρ – плотность материала, кг·м⁻³; η – коэффициент эманирования; P – пористость образца, %.

Концентрация радона в воздухе помещения C_{Rn} составляет 0.01 $C_{Rn \max}$, что связано со стек-эффектом и присутствием отходов в строительных материалах, главным образом в виде добавок.

Среднюю годовую тканевую (легочную) дозу облучения человека за счет радона ($D_{лег.}$) для неветилируемого помещения рассчитывали по формуле [5]:

$$D_{лег.} = 5 \cdot 10^{14} \cdot C_{Rn} \cdot \text{бэр} \cdot \text{год}^{-1} = 1351.35 \cdot C_{Rn \max}, \text{ мкЗв} \cdot \text{год}^{-1}, \quad (8)$$

где C_{Rn} , Ки·л⁻¹; $C_{Rn \max}$, Бк·м⁻³.

Дозу рассчитывают, исходя из заключения, что в легких человека задерживается около 60 % аэрозольных частиц, несущих радиоактивные продукты распада изотопов радона. Рассчитанная $D_{лег.}$ не превышала среднее значение $D_{лег.}$ по СНГ (350 мкЗв·год⁻¹) [3], поэтому исследованные материалы могут быть рекомендованы в качестве заполнителей для бетонов, используемых для сооружения жилых зданий, где воздухообмен неинтенсивный. Основная опасность при использовании исследованных угольных шлаков будет связана не с величиной радоновыделения, а с повышенным γ -излучением ЕР строительных материалов.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Полупроводниковые детекторы ядерного излучения / С. М. Рывкин, О. А. Матвеев, С. Р. Новиков, Н. Б. Строкан // В сб.: Полупроводниковые приборы и их применение. – М., 1971. – Вып. 25.
2. Методы определения содержания естественных радионуклидов при радиационной оценке месторождений строительного сырья. – М.: Мингео СССР, 1986. – 54 с.



3. Крисюк Э. М. Радиационный фон помещений. – М.: Энергоиздат, 1989. – 120 с.
4. Крисюк Э. М., Карпов В. И., Кляус П. Нормирование радиоактивности строительных материалов при разном виде их использования // Report SAAS – 250. – Berlin, 1979. – P. 205 – 213.
5. Перцов Л. А. Ионизирующие излучения биосферы. – М.: Энергоиздат, 1973.

Поступила в редакцию 14.09.04

Гама-спектрометричним методом досліджені різні матеріали, що використовуються для виготовлення бетонів. Визначені питомі активності природних радіонуклідів, ефективні питомі активності, а також установлено клас радіаційної небезпеки будматеріалів. Показано підвищення річної ефективної еквівалентної дози γ -опромінення під час використання досліджуваних матеріалів у бетонах. Оцінена величина радоновидалення з готових бетонів.

The different materials which are used for the concrete production were investigated by gamma-ray method. The specific activities of natural radioisotopes and effective specific activities were determined. The class of radiational danger of building materials was determined. The exceeding of annual effective equivalent dose of γ – irradiation during using the investigated materials in concretes was shown. The value of Rn emanation from ready concretes was estimated.