

Prirodna radioaktivnost uglja i letećeg pepela u termoelektrani „Nikola Tesla B“

Dragica M. Kisić¹, Saša R. Miletić¹, Vladimir D. Radonjić¹, Sanja B. Radanović², Jelena Z. Filipović³, Ivan A. Gržetić⁴

¹Javno preduzeće Elektroprivreda Srbije, Beograd, Srbija

²Privredno društvo Rudarski basen Kolubara, Srbija

³Institut za nuklearne nauke Vinča, Beograd, Univerzitet u Beogradu, Srbija

⁴Hemijski fakultet Univerziteta u Beogradu, Srbija

Izvod

U termoelektranama (TE) Javnog preduzeća „Elektroprivreda Srbije“ (JP EPS) koje u kotlovima sagorevaju lignit, kao nus produkt nastaje godišnje oko 6 miliona tona letećeg pepela. Potencijalno tržište za upotrebu letećeg pepela postoji, ali ga za sada koriste isključivo cementare. Radioaktivnost letećeg pepela može da predstavlja jedan od važnih razloga protiv njegove šire upotrebe u građevinskoj industriji Srbije. Merenje radioaktivnosti u termoelektranama redovno se sprovodi od 1990. godine. U radu su prikazani rezultati dvadesetogodišnjih merenja radioaktivnosti letećeg pepela u termoelektrani Nikola Tesla B (TENT B) u Obrenovcu. U poređeno su prikazani podaci o sadržaju prirodnih radionuklida u uglju koji se sagoreva u kotlovima TENT B poreklom iz kolubarskog basena i pepelu koji nastaje prilikom sagorevanja uglja. Na osnovu dobijenih rezultata o sadržaju prirodnih radionuklida zaključuje se da se pepeo iz termoelektrane Nikola Tesla B može odlagati u životnu sredinu. Pepeo se može koristiti i u građevinarstvu, u niskogradnji. Kod primene u visokoj gradnji udeo pepela kao dodatka drugim građevinskim materijalima zavisi kako od njegovih fizičkih i hemijskih karakteristika, tako i od specifične aktivnosti ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K.

Ključne reči: termoelektrane u Srbiji, leteći pepeo, merenje radioaktivnosti, prirodni radionuklidi, ²³⁸U, ²³²Th, ²²⁶Ra, građevinska industrija.

Dostupno na Internetu sa adrese časopisa: <http://www.ache.org.rs/HI/>

U kotlovima termoelektrana Javnog preduzeća Elektroprivrede Srbije godišnje se sagori u proseku oko 32 000 000 t lignita poreklom iz ugljenih basena Kolubara i Kostolac, pri čemu godišnje nastaje oko 6 000 000 t letećeg pepela. TENT B se sastoji od dva bloka sa instalisanom električnom snagom od po 620 MW. snabdevanje ugljem vrši se iz kolubarskog basena i to iz kopa Tamnava zapadno polje (80%) i polja E (20%). Zavisno od količine sagorelog uglja, godišnja količina pepela koja se izdvoji u elektrofiltrima u TENT B iznosi oko 1 800 000 t. Posle izdvajanja u elektrofiltrima leteći pepeo se sakuplja u silosima. Pepeo koji se ne isporučuje građevinskoj industriji meša se sa vodom u odnosu 1:1 i pomoću pumpi transportuje cevovodima na otvoreno odlagalište tj. deponiju pepela i šljake (u daljem tekstu deponija). Šljaka koja pada na dno kotla (kracer) takođe se sakuplja u poseban silos, odakle se odvodi u miksera i zajedno sa letećim pepelom meša sa vodom te pumpama transportuje na deponiju.

Blokovi B1 i B2 TENT B su tokom remonata 2009/2010. godine priključeni na novi sistem sakupljanja,

Prepiska: D.M. Kisić, Javno preduzeće Elektroprivreda Srbije, Vojvode Stepe 412, 11000 Beograd, Srbija.

E-pošta: dragica.kisic@eps.rs

Rad primljen: 16. oktobar, 2012

Rad prihvaćen: 7. decembar, 2012

STRUČNI RAD

UDK 621.311(497.11Obrenovac):
662.613:504:691

Hem. Ind. 67 (5) 729–738 (2013)

doi: 10.2298/HEMIND121016120K

transporta i odlaganja pepela i šljake (pepeo čini 90% čvrste smeše) u skladu sa novom tehnologijom, u vidu guste mešavine (odnos čvrste faze i vode 1:1) [1].

Primenom nove tehnologije omogućeno je sakupljanje suvog pepela u silosima spremnog za njegovu isporuku za potrebe industrije, što je nedavno ostvareno u TENT B, TE Kolubara A i TE Kostolac B, koje predstavljaju termoelektrane sa najvećom proizvodnjom električne energije u Republici Srbiji.

Deponija TENT B zauzima veliku površinu, oko 600 ha, od čega je odlaganje pepela do sada vršeno na 400 ha, a preostalih 200 ha je predviđeno za slučaj gradnje novih blokova. Deponija okružena naseljima i obradivim površinama, predstavlja difuzioni izvori zagađivanja vazduha, vode i tla [2]. Rešavanje ekoloških problema koji nastaju zbog negativnog uticaja deponija zahteva stalnu primenu odgovarajućih mera zaštite koje se moraju unapređivati, što iziskuje velika finansijska sredstva. Pored navedenih troškova, daleko veći troškovi nastaju u toku skupljanja, transporta i odlaganja pepela. Svi navedeni troškovi značajno poskupljuju proizvodnju električne energije [3].

Primena pepela u građevinarstvu, pre svega niskogradnji (gradnja puteva), zatim u visokoj gradnji (proizvodnja cementa, građevinske opeke), i u druge svrhe (korekcija pH vrednosti zemljišta) značajno bi smanjila

ekološke probleme, jer bi se smanjila količina odloženog pepela. Pored toga, upotrebom pepela, smanjila bi se eksploatacija prirodnih materijala sličnog hemijskog sastava, kao što je pesak [3].

Kolubarski ugljonosni basen

Kolubarski basen kao glavni snabdevač termoelektrana ugljem u Srbiji, nalazi se 30 km jugozapadno od Beograda i pokriva totalnu površinu od oko 600 km², obuhvata srednji i donji tok reke Kolubare i njene glavne pritoke Peštan, Turija, Tamnava i Ub. Morfološki gledano, to je ravan teren sa od 186 do 250 m nadmorske visine. Prostire se oko 55 km u pravcu zapad–istok i 15 km u pravcu sever–jug. U geološko-ekonomskom i morfološkom pogledu donjo-pliocenski sedimenti nose velike rezerve lignita.

Geološka građa obuhvata donjo-pliocenske sedimente koji leže transgresivno i u kontinuitetu preko panonskih sedimenata, a ređe su donjo-pliocenski sedimenti diskordantni preko starih paleozojskih i mezozojskih članova i dacito-andezitskih stena. Debljina donjo-pliocenske ugljene serije je između 250 i 300 m.

Obrazovanje ugljene serije započelo je krajem donjeg pontona, a završilo se u gornjem pontonu. Tokom ovog perioda, postojali su optimalni uslovi za život močvarne vegetacije na lokaciji između mesta Rudovci, Veliki Crljeni, Radljevo i Koceljevo. Ova močvarna vegetacija (velike močvarne šume) dala je bazičnu masu za formiranje lignita. Petrografske analize pokazale su dominantno prisustvo ksilitске komponente (20–80%). Srednji sadržaj ksilita je 33,0%. Zastupljeni su ksilit siromašan celulozom (XA = 17%), ksilit bogat celulozom (XR = 6%) i gelificirani ksilit (XV = 10%). Gelificiranog ksilita više ima u podinskom ugljenom sloju [4].

Kolubarski basen je podeljen na istočni i zapadni deo koji su produktivni i severni deo koji je neproduktivan. Produktivni deo Kolubarskog ugljenog basena pokriva oko 600 km². Istočni deo basena čini oko 20% totalne proizvodnje površine, tj. nekih 120 km² i sastoji se iz četiri površinska kopa (eksploataciona polja) A, B, C i D. Polje A je iscrpljeno pre mnogo godina, a i ostala polja su pri kraju. Tokom prvih godina rudarenja postojala je podzemna eksploatacija, ali današnja eksploatacija je striktno površinska. Zapadni deo basena (odvojen od istočnog rekom Kolubarom) perspektivan je za budućnost i pokriva 80% basena ili 480 km². Unutar ovog polja nalazi se i najveće polje – polje Tamnava.

Prirodni radionuklidi u uglju

Ugalj je većim delom sačinjen od organske materije, ali neki elementi u tragovima u uglju su prirodno radioaktivni i čine prirodno prisutni radioaktivni materijal (*Normally Occurring Radioactive Material* – NORM). Ovi radioaktivni elementi uključuju uranijum (U), torijum (Th), njihove brojne produkte raspadanja, uključujući radijum (Ra) i radon (Rn). Tokom sagorevanja uglja

većina U i Th i njihovih produkata raspadanja odlazi iz njegove strukture i raspoređuje se između gasne faze i čvrstih produkata sagorevanja. Skoro celokupan gas radon prisutan u gorivnom uglju prelazi u gasnu fazu i gubi se u emisiji. Nasuprot njemu, manje gasoviti elementi, kao što su Th i U i većina produkata njihovog raspada zadržavaju se u čvrstom otpadu koji nastaje u procesu sagorevanja.

EKSPERIMENTALNI DEO

Kontrola prirodnih radionuklida u uglju Kolubarskog basena

Ispitivanja sadržaja prirodnih radionuklida u uzorcima uglja Kolubarskog basena vršena su 2003. i 2005. godine, u okviru projekta Geohemijska ispitivanja u funkciji pronalaženja novih ležišta fosilnih goriva i zaštite životne sredine. Projekat je finansiran od strane Ministarstva nauke i zaštite životne sredine Republike Srbije, a realizovao ga je Rudarsko–geološki fakultet Univerziteta u Beogradu. Tom prilikom izvršeno je ispitivanje sadržaja uranijuma 238 (²³⁸U) i torijuma 232 (²³²Th) u 95 uzoraka iz 8 basena uglja lignita u Srbiji i Crnoj Gori [5].

Za potrebe analize, uzorci su razloženi pomoću tehnike mikrotalasa. U ovom ispitivanju, uranijum i torijum su analizirani pomoću plazma masenog spektroskopa koji je induktivno spojen sa ICP-MS korišćenjem NIST standarda u laboratoriji BGR u Saveznom zavodu za geonauku i mineralne sirovine (*Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe*; BGR) u Hanoveru (Nemačka). Analizirani uzorki su takođe provereni na XRF analizatoru [6].

U cilju ujednačavanja kvaliteta uglja koji se isporučuje termoelektranama, u rudarskom basenu Kolubara je tokom 2008. godine uveden sistem selektivnog otkopavanja i homogenizacije uglja. Jedan od osnovnih elemenata u ovom sistemu bili su kontinualni (online) analizatori kvaliteta uglja čiji je rad zasnovan na merenju prirodne radioaktivnosti mineralnih materija u uglju. Merenjem intenziteta ukupne radioaktivnosti prirodnih radioizotopa ili pojedinačnog intenziteta radioaktivnosti radionuklida iz uranijumovog ili torijumovog niza, odnosno kalijuma 40, prisutnih u mineralnim materijama u uglju, a uz pomoć poznatih kalibracionih postupaka sprovedenih za svaki tip uglja, moguće je odrediti maseni sadržaj mineralnih materija u uglju. Shodno tome tokom 2008. godine obavljeno je uzorkovanje 22 uzoraka uglja površinskog kopa Tamnava-Zapadno polje i urađeno ispitivanje na specifičnu aktivnost i sadržaj uranijuma 238, torijuma 232 i kalijuma 40, metodom gama-spektrometrijske analize uz pomoć poluprovodničkog HPGe detektora (GEM30-70, SV-GEM, S/N: AME-TEK-AMT ORTEC-SAD) relativne efikasnosti 37% i rezolucije 1,66 keV [7].

Obrada spektara izvršena je pomoću softverskog programa Genie 2000 (Canberra), a obrada rezultata merenja pomoću originalnog programa koji je razvijen u okviru programa Mathematica 5.2 (Wolfram Research, Inc.) [7].

Uzorci uglja koji su prethodno pripremljeni na odgovarajući način (sušenjem i sitnjenjem) stavljeni su u plastične Marinelli posude zapremine 500 ml. Masa uzoraka koji su stavljeni u Marinelli posude varirala je od 298.21 g do 473.11 g u zavisnosti od gustine samog uzorka. Ove posude su zatopljene prirodnim voskom. Svrha zatapanja posuda sa uzorcima je da se onemogući da radioaktivni gasovi, pre svega ^{222}Rn , difunduju, odnosno da se omogući uspostavljanje ravnoteže između radionuklida čvrste i gasovite faze. Ravnoteža se uspostavlja nakon približno 40 dana od zatapanja, što podrazumeva da je uspostavljen stalni odnos nuklida-pretka i njegovih potomaka u uranovoj seriji, odnosno ista aktivnost svih članova radioaktivnog niza. Na taj način omogućava se kvalitativna i kvantitativna analiza uzoraka [7].

Kvalitetna analiza ispitivanih uzoraka zahteva dobru kalibraciju i adekvatnu kalibraciju efikasnosti. Pod adekvatnom kalibracijom efikasnosti podrazumeva se da kalibracioni standard i mereni uzorak imaju identičnu geometriju merenja i da je njihov hemijski sastav i specifična gustina što je moguće približniji [7]. Vreme merenja pojedinačnog uzorka obično traje, u zavisnosti od uslova merenja, između 70 000 i 350 000 s. Nakon 40 dana od zatapanja uzoraka, ponovljena su merenja istih uzoraka, koja su trajala između 74 000 i 246 000 s [7].

Kontrola prirodne radioaktivnosti u okolini TENT B

Prirodni radionuklidi se u toku procesa sagorevanja uglja koncentrišu prevashodno u čvrstim produktima sagorevanja uglja (nus produkt), u pepelu i šljaci, koji predstavljaju industrijski otpad termoelektrana. Na taj način, pepeo i šljaka mogu biti obogaćeni, tj. imati povećane količine prirodnih radionuklida. U takvim slučajevima radi se o tehnološki povišenoj prirodnoj radioaktivnosti (*Technologically Enhanced Occurring Radioactive Material* – TENORM) industrijskog otpada. Ovakav otpad se, kako smo rekli, deponuje na odlagalište, na otvorenu deponiju ili se može koristiti kao dodatak građevinskog materijala.

Ciljano ispitivanje sadržaja prirodnih radionuklida uranijumovog (^{238}U i ^{226}Ra) i torijumovog niza (^{232}Th) i kalijuma (^{40}K), izvršeno je 1996. godine da bi se utvrdila potencijalna radioaktivna kontaminacija zemljišta i podzemnih voda poreklom iz industrijskog otpada termoelektrane i to iz pepela i šljake TENT Obrenovac. Tom prilikom uočene su značajne, ali ne i visoke vrednosti sadržaja ovih radionuklida [8].

U naknadnim istraživanju, sprovedenom od 2005. do 2007. godine potvrđen je nizak sadržaj prirodnih radionuklida u okolini TENT B [9]. Izmerene specifične

aktivnosti radona i torona u okolini deponije TENT B, na 28 mernih mesta u zemljištu na dubini od 80 cm, daju srednje vrednosti specifične aktivnosti radioaktivnih gasova ispod $10\,000\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, uz log-normalnu raspodelu specifične aktivnosti radona. Dobijeni rezultati identifikuju okolinu deponije kao zonu sa niskim nivoom osnovnog zračenja iz prirode [9].

Počevši od 1990. godine, za TENT B vrše se redovne kontrole (jedanput godišnje) radioaktivnosti u životnoj i radnoj sredini od strane ovlašćenih institucija.

Cilj kontrole je procena prirodne radioaktivnosti iznad prirodnog fona neposredno i u okolini TENT B, zatim procena odgovarajućeg efekta tehnološki izmenjene prirodne radioaktivnosti na zdravlje populacije koja živi i radi u toj životnoj sredini i da se pronađe i ustanovi poreklo eventualno lokalnog izvora veštačke radioaktivnosti [10].

Kontrola obuhvata gama-spektrometrijsku analizu uzoraka: uglja, šljake, elektrofilterarskog pepela iz procesa proizvodnje; šljake i pepela odloženih na deponijama, zemljišta u neposrednoj okolini deponije, poljoprivrednog zemljišta u krugu prečnika 10 km od elektrane (obradivo). Pored toga kontrolom su bile obuhvaćene biljne kulture sa deponije i biljne kulture sa odgovarajućeg zemljišta, rečne vode (reka Sava pre i posle ispuštanja otpadnih voda) i otpadne vode sa deponija.

Vršena su merenja specifične aktivnosti prirodnih radionuklida uranijumovog (^{238}U i ^{226}Ra) i torijumovog niza (^{232}Th) i ^{40}K , aktivacionih radionuklida (^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{59}Fe , ^{60}Co i ^{65}Zn), proizvedenih radionuklida poreklom iz *fallout*-a (^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{103}Ru , ^{106}Ru , ^{141}Ce , ^{144}Ce , ^{134}Cs i ^{137}Cs) i kosmogenog radionuklida (^7Be). Istovremeno sa uzimanjem uzoraka, od 1992. do 2011. godine, vršeno je merenje jačine apsorbovane doze gama zračenja u vazduhu na jednom metru iznad površine tla. Takođe je urađena i kontrola ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti otpadnih voda i vode reke Save [10,11].

Uzorci uglja, pepela i zemljišta su sušeni na $105\text{ }^\circ\text{C}$, odmereni, zaptiveni pčelinjim voskom u plastične kutije od 100 g. Radi uspostavljanja radioaktivne ravnoteže pripremljeni su uzorci čuvani u laboratoriji 30 dana pre nego što je rađena spektrometrija - gama emitera [11].

Spektrometrija gama-emitera urađena je na HPGe detektorima relativne efikasnosti 20 i 23%, firme Canberra i ORTEC. Rezolucija detektora je 1.8 keV na energiji od 1332 keV.

Kalibracija detektora sprovedena je sekundarnim referentnim radioaktivnim materijalom u matriksu zemlje, a materijal je potom odložen u plastične kutije od 100 g. Sekundarni referentni materijal dobijen je od primarnog referentnog materijala, koga je proizveo: National office of Measures, Budapest, matriksa zemlje, nakapanim ^{22}Na , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{89}Y , ^{133}Ba i ^{137}Cs , ukupne specifične aktivnosti 1500 Bq/kg , na dan 01.07.1991. godine i Czech Metrological institute, Praha, 9031-OL-

116/8 type erx, ukupne aktivnosti 114,9 kBq na dan 03.03. 2008.godine (^{241}Am , ^{109}Cd , ^{139}Ce , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{88}Y , ^{113}Sn , ^{137}Cs i ^{210}Pb) [12]. Vreme merenja uzorka trajalo je 52 000 s [12].

REZULTATI MERENJA I DISKUSIJA

Statistička obrada podataka dobijenih hemijskim ispitivanjem sadržaja uranijuma (^{238}U) i torijuma (^{232}Th) u 95 uzoraka iz 8 basena uglja lignita u Srbiji i Crnoj Gori je prikazana je u tabeli 1 [5]. U odnosu na ugljeve navedenih basena u Republici Srbiji, ugaj Kolubarskog basena ima nizak sadržaj uranijuma 238 (^{238}U), dok je sadržaj torijuma 232 (^{232}Th) viši, što je takođe slučaj sa ugljem basena Krepoljin.

Ugalj iz basena Krepoljin ima viši sadržaj uranijuma i najveći sadržaj torijuma u odnosu na sav proučavan ugaj. Sadržaj uranijuma i torijuma u uglju iz basena Sjenica i Soko Banje je nizak. Karakteristike uglja iz basena Senje-Resavica je niska koncentracija uranijuma i torijuma. Ugaj iz basena Pljevlja (Crna Gora) pokazuje veoma nisku koncentraciju uranijuma i torijuma [5].

Laboratorijska gama – spektrometrijska merenja prirodnih radionuklida u uglju Tamnava-Zapadno polje, obavljena tokom 2008. godine prikazana su u tabeli 2 i pokazuju nizak sadržaj radionuklida [7]. Vrednosti specifične aktivnosti i sadržaja prirodnih radionuklida iznosile su:

- uranijum 238 (^{238}U): 0,46–32,9 Bq/kg, odnosno izmerene koncentracije se kreću u intervalu 0,036–2,69 mg/kg;
- torijum 232 (^{232}Th): 3,8–20,42 Bq/kg, odnosno izmerene koncentracije se kreću u intervalu 0,84–5,05 mg/kg;
- kalijuma 40 (^{40}K): 10,57–100,6 Bq/kg, odnosno izmerene koncentracije se kreću u intervalu 350–3330 mg/kg.

Na osnovu gama-spektrometrijskih merenja obavljenih u periodu od 1990. do 2011. godine u tabeli 3 dati su rezultati spektrometrije gama-emitera za TENT B. Prikazane su minimalne i maksimalne vrednosti, vrednosti aritmetičkih i geometrijskih sredina i medijana, specifične aktivnosti prirodnih radionuklida uranijumovog (^{238}U i ^{226}Ra) i torijumovog niza (^{232}Th) i kalijuma 40 (^{40}K) [11,12].

Analiza rezultata merenja koncentracija prirodnih radionuklida u uglju, kotlovskoj šljaci, letećem pepelu i pepelu sa deponije prikazanih u tabeli 3 pokazuje sledeće:

- U uzorcima uglja, kotlovske šljake, letećeg pepela, pepela sa deponije, detektovani su prirodni radionuklidi uranijum 238 i uranijum 235 (^{238}U i ^{235}U), radijum 226 (^{226}Ra) i torijum 232 (^{232}Th) kao i kalijum 40 (^{40}K).
- Leteći pepeo obogaćen je prirodnim radionuklidima, pri čemu prosečne specifične aktivnosti ^{232}Th u uglju iznose 25,2 Bq/kg, a u letećem pepelu 84,2 Bq/kg;

Tabela 1. Sadržaj prirodnih radionuklida ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u ugljevima Srbije, uporedno sa ugljem Crne Gore [5]; MD – medijana
Table 1. Natural radionuclides content ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K in coal in the Republic of Serbia compared with coal in the Republic of Montenegro [5]; MD – median values

Ugljeni basen	^{238}U , mg/kg			^{232}Th , mg/kg		
	Min	Max	MD	Min	Max	MD
Kostolac	0,60	70,10	0,95	0,20	2,60	1,08
Kolubara	0,65	3,20	1,84	0,84	6,57	3,18
Krepoljin	0,95	6,59	2,99	1,48	6,48	3,65
Sjenica	1,20	6,05	3,11	0,12	2,71	1,18
Soko Banja	0,80	6,66	3,17	0,13	4,95	0,80
Bogovina-Istočno polje	0,18	89,90	13,55	0,14	3,48	0,33
Senje-Resavica	0,19	4,14	1,35	0,29	3,56	0,90
Pljevlja	0,28	3,52	1,30	0,17	1,89	0,78

Tabela 2. Prirodni radionuklidi ^{238}U , ^{232}Th i ^{40}K u uglju Kolubarskog basena, sa kopa Tamnava-Zapadno polje [7]
Table 2. Natural radionuclides ^{238}U , ^{232}Th and ^{40}K in coal in the Kolubara Mining Basin, from the Tamnava West Field OCM [7]

Vrednost	Specifična aktivnost, Bq/kg			Sadržaj, mg/kg		
	^{238}U	^{232}Th	^{40}K	^{238}U	^{232}Th	^{40}K
Min	0,46	3,38	10,57	0,036	0,84	350
Max	32,9	20,42	100,6	2,69	5,05	3330
Aritmetička sredina	16,265	11,75091	60,0681	1,328909	2,928182	1988,095
Medijana	14,61	10,475	60,63	1,195	2,635	2000
Geometrijska sredina	12,82906	10,90072	51,56194	1,046321	2,721521	1706,418

Tabela 3. Rezultati merenja gama-spektrometrije u periodu 1990–2011.godina – TENT B [11–13]; AM – aritmetička srednja vrednost, MD – medijana, GS – geometrijska sredina
 Table 3. Gamma spectrometry measurements results, in period 1990–2011 – TPP Nikola Tesla B [11–13]

Merno mesto	²³² Th, Bq/kg						²²⁶ Ra, Bq/kg						²³⁸ U, Bq/kg						⁴⁰ K, Bq/kg					
	Min	Max	AM	MD	GS	MD	Min	Max	AM	MD	GS	MD	Min	Max	AM	MD	GS	MD	Min	Max	AM	MD	GS	
Ugalj sa dodavača ^a	10,6	66,8	25,2	20,9	22,8	14,1	86,8	36,3	31,0	32,5	11,0	68,9	38,3	37,5	33,8	36,2	376,9	112,2	92,5	97,7				
Šljaka ispod kracera ^a	19,8	91,6	59,0	60,2	55,2	28,9	276,2	88,6	84	79,5	18,9	160,3	81,2	78,0	73,9	118,0	472,4	294,4	326	277,4				
Leteći pepeo ^a	71,0	104,0	84,2	79,5	83,3	91,0	152	127,1	130	125,5	114,0	174,0	142,6	141,	141,2	357	473,0	415,6	405	413,2				
Pepeo ^a Aktivna kasete	11,3	143,0	75,3	74,5	71,6	46,0	318,8	120,9	106	110,9	19,1	284,5	110,7	106	97,4	81,3	693,4	343,2	339,4	331,9				
Pasivna kasete	12,4	109,0	73,9	74,1	70,4	27,0	279,9	117,8	116	109,6	15,5	241,0	119,5	119	108,1	241,0	669,0	398,2	397,3	390,4				
Ugalj sa odlagališta ^b			23±1																			70±3		
Pepeo sa deponije ^b			75±4																			317±15		

^aMerenja su vršena od strane ovlašćenih institucija: Institut za medicinu rada i radiološku zaštitu „Dr. Dragomir Karajović“, Beograd (1990–2002, 2005, 2006 i 2011) i Institut za nuklearne nauke „Vinča“, Beograd, (2003, 2004, 2007–2010); ^bmerenja obavljena 2004. godine (projekat INTAILRISK, EU FP 6, 2004–2007)

^{238}U u uglju iznose 38,3 Bq/kg, a u letećem pepelu 142,60 Bq/kg; ^{40}K u uglju iznose 112,2 Bq/kg, a u letećem pepelu 415,60 Bq/kg.

- Ne postoji velika razlika u sadržaju radionuklida na aktivnim (deo deponije gde se privremeno odlaže pepeo) i pasivnim kasetama u posmatranom periodu. To se može objasniti time da se uloga aktivnih i pasivnih kaset menja tokom godina, tj. aktivne postaju pasivne i obrnuto.

Ukoliko se uporede rezultati spektrometrije gama – emitera uglja i letećeg pepela TENT B sa podacima iz literature objavljenim u drugim delovima sveta (SAD, bivši SSSR, Poljska, Indija i Turska), prikazanim u tabeli 4 [11,12,14–19], primećuje se da su vrednosti uporedive, odnosno istog reda veličine.

Termoelektrane koje sagorevaju kolubarski ugalj, a to se odnosi i na TENT B, redovno su (jedanput godišnje) vršile ispitivanja specifične aktivnosti prirodnih radionuklida u uglju, letećem pepelu, pepelu i šljaci odlaganim na deponijama, okolnom zemljištu, te na biljnim kulturama zasejanim na deponijama u cilju biološke rekultivacije, biljnim kulturama na okolnom zemljištu, površinskim i podzemnim vodama. Međutim, rudarski basen Kolubara nije vršio redovna ispitivanja sadržaja prirodnih radionuklida u uglju na kopovima kolubarskog basena. Shodno tome, postojeće programe ispitivanja karakteristika uglja kopova kolubarskog basena – kojima su obuhvaćeni: petrografska ispitivanja, ispitivanje mineraloškog sastava, tehnička i elementarna analiza

uglja, ispitivanje sadržaja makro- i mikro-elemenata, te ukupnog i sagorljivog sumpora, potrebno je dopuniti ispitivanjem sadržaja i specifične aktivnosti prirodnih radionuklida uranijumovog (^{238}U i ^{226}Ra) i torijumovog niza (^{232}Th), kao i kalijuma (^{40}K). Dosadašnja ispitivanja sadržaja uranijuma i torijuma u ugljevima Srbije i Crne Gore pokazuju da nema osnova za nepovoljan uticaj na prirodu [5].

Upotreba pepela u građevinskoj industriji

Prema raspoloživim podacima, u Srbiji je upotreba pepela u metalurgiji, poljoprivredi, građevinskoj i hemijskoj industriji prilično mala. Upotreba pepela poboljšava karakteristike cementnih proizvoda – smanjuje njihovu poroznost i otpornost na degradaciju. Prilikom izgradnje puteva ugrađuje se u podlogu puta što smanjuje potrošnju konvencionalnih sirovina za ove svrhe. To umanjuje cenu izgradnje i šteti izvoru – smanjuje eksploataciju prirodnih resursa – konvencionalnih sirovina za ove svrhe (peska, koji ima slične karakteristike, ili kamena).

Da bi se proširila upotreba pepela u industrijske svrhe, potrebno je primeniti nove tehnologije u pojedinim industrijskim granama. Naročito je značajna upotreba pepela u izgradnji puteva, jer ona omogućava njegovo korišćenje u velikim količinama [2]. Kako sadržaj prirodnih radionuklida u pepelu može da ograniči njegovu upotrebu u građevinskoj industriji, neophodno je poznavanje podataka o sadržaju prirodnih radionuk-

Tabela 4. Specifična aktivnost radionuklida u uglju i letećem pepelu, uporedno TENT B sa nekim zemljama u svetu i (Bq/kg) [11,12,14–19]

Table 4. Comparison of coal and fly ash specific radionuclides activity between TPP Nikola Tesla B and some world countries (Bq/kg) [11,12,14–19]

Država		^{232}Th		^{226}Ra		^{238}U		^{40}K	
		Min	Max	Min	Max	Min	Max	Min	Max
SAD	Pepeo	78	122	42	141	111	204	259	370
	Ugalj	8	23	1	30	16	30	52	120
Bivši SSSR	Pepeo	185		185		–		1850	
	Ugalj	–		28		–		120	
Poljska	Pepeo	47	92	75	120	–	–	448	759
	Ugalj	8	21	13	29	38		43	181
Indija	Pepeo	96	178	40	152	–	–	148	840
	Ugalj	–	–	11	67	–	–	14	445
Turska	Pepeo	58		149		–		94	
	Ugalj	11		14		–		123	
Kina	Pepeo	119	196	76	166	–	–	262	521
	Ugalj	34	38	23	30	–		93	110
Nemačka	Pepeo	88		118		133		514	
	Ugalj	<20		20		<40		–	
Srbija	Pepeo	71	104	91	152	114	178	311	509
		84		130		143		408	
	Ugalj	11	27	14	38	18	68	48	157
		20		25		35		101	

lida. Pored ispitivanja radioaktivnosti pepela i šljake, radi njihovog odlaganja u životnu sredinu, ispituje se i mogućnost njihove upotrebe u građevinarstvu, u niskogradnji i visokoj gradnji. Naročito je povoljna upotreba letećeg pepela u građevinarstvu ako je specifična aktivnost građevinskih proizvoda u okviru granica dozvoljenog.

Na osnovu višegodišnjih ispitivanja potvrđena je mogućnost upotrebe pepela u industriji [2]. Zbog povećane prirodne radioaktivnosti u uzorcima pepela i šljake, obavezna je stalna kontrola industrijskih proizvoda i ulaznih komponenti koji bi se koristili u građevinarstvu. Propisani su različiti kriterijumi graničnih vrednosti sadržaja radionuklida u građevinskom materijalu. Ovi kriterijumi dati su u tabeli 5, a odnose se na građevinske materijale koji se upotrebljavaju u visokoj gradnji za enterijer i eksterijer, te u niskogradnji za podloge za puteve, igrališta i ostalu niskogradnju (ispod sloja za prekrivanje) [20].

Da bi neki materijal mogao da se koristi u građevinarstvu, specifične aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K moraju da zadovolje sledeću relaciju:

$$\frac{C_{\text{Ra}}}{\text{Max}(\text{Ra})} + \frac{C_{\text{Th}}}{\text{Max}(\text{Th})} + \frac{C_{\text{K}}}{\text{Max}(\text{K})} < 1 \quad (1)$$

gde su sa C_x označene koncentracije odgovarajućih radionuklida, a sa $\text{Max}(x)$ su označene granice sadržaja radionuklida (tabela 5) za odgovarajuću kategoriju primene materijala u visokoj gradnji (enterijer i eksterijer) i niskogradnji (putevi i igrališta).

Tabela 5. Granice sadržaja radionuklida u građevinskom materijalu [20]
Table 5. Radionuclides content limits in the construction material [20]

Propisana vrednost	^{226}Ra , Bq/kg	^{232}Th , Bq/kg	^{40}K , Bq/kg
Za enterijer	300	200	3000
Za eksterijer	400	300	5000
Za podloge za puteve i igrališta	700	500	8000

Tabela 6. Specifična aktivnost prirodnih radionuklida (Bq/kg) u letećem pepelu u TENT B [11,12]
Table 6. Fly ash specific radionuclides activity (Bq/kg) in TPP Nikola Tesla B [11,12]

Godina ispitivanja	^{232}Th	^{226}Ra	^{40}K
2004	104	152	363
2005	98	152	311
2006	99	147	509
2007	71	112	405
2008	72	120	357
2009	79	138	382
2010	80	130	461
2011	71	91	473
Min	71	91	311
Max	104	152	509
Srenja vredost	84,24	130,25	407,63
Medijana	79,5	134	393,5
Geometrijska sredina	83,27	128,54	402,73

Na osnovu podataka o specifičnoj aktivnosti prirodnih radionuklida u letećem pepelu u TENT B (tabela 6) i korišćenjem relacije (1) izračunati su gama indeksi za leteći pepeo u slučaju korišćenja u visokoj gradnji i niskogradnji, koji iznose manje od jedan (tabela 7) [21].

Na osnovu prikazanih rezultata u tabelama 6 i 7 o sadržaju prirodnih radionuklida i izračunatom gama indeksu može se zaključiti da se pepeo iz TENT B može koristiti i u građevinarstvu (u niskogradnji), pošto je gama-indeks manji od jedan [21]. Kod primene u visokoj gradnji udeo pepela, kao dodatka drugim građevinskim materijalima, zavisi od njegovih fizičkih i hemijskih karakteristika, a zavisi i od specifične aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K . Shodno tome, neophodna je redovna kontrola sadržaja prirodnih radionuklida svih ulaznih komponenti (sirovina), kao i finalnog proizvoda.

Korišćenje elektrofiltarskog pepela poreklom iz TENT B isplativo je i ekološki opravdano za ekotroprirodu iz sledećih razloga: 1) Manjeg iznosa obavezne novčane naknade za odlaganje otpada, 2) ostvarenja dobiti od prodaje pepela, 3) umanjenja troškova za transport i odlaganje (manja je količina pepela koji se odlaže na deponije), 4) produženja radnog veka deponije, 5) manje eksploatacije prirodnih resursa (peska, koji ima slične karakteristike), kao i 6) redukcije ekoloških problema [2]. Primena nove tehnologije sakupljanja, malovodnog transporta i odlaganja pepela i šljake u TENT B i drugim termoelektranama, omogućila je zasebno skladištenje šljake i suvog pepela u silosima, te isporuku suvog letećeg pepela građevinskoj industriji

Tabela 7. Gama indeks za leteći pepeo TENT B za slučaj upotrebe u visokoj gradnji i niskogradnji [21]

Table 7. Fly ash gamma index in TPP Nikola Tesla B in case of use in building construction and civil engineering [21]

Godina	Visoka gradnja		Niskogradnja
	Za eneterijer	Za eksterijer	Za podloge za puteve i igrališta
2007.	0,86	0,60	0,35
2008.	0,88	0,61	0,36
2009.	0,98	0,68	0,40
2010.	0,99	0,68	0,40
2011.	0,82	0,56	0,33
Min.	0,82	0,56	0,33
Max.	0,99	0,68	0,40
Sr.vred.	0,91	0,63	0,37

pomoću auto-cisterni. Tokom 2011. godine TENT B je na osnovu ugovora isporučio suvi leteći pepeo i to: 40336 t cementari Lafarge, Beočin, i 3045 t cementari Titan, Kosjerić. Pored toga, isporučeno je i 5267 t šljake Javnom preduzeću za izgradnju Obrenovca, koja je upotrebljena kao podloga za izradu nekategorisanih puteva.

ZAKLJUČAK

1. U uzorcima uglja, letećeg pepela, pepela sa deponije, detektovani su prirodni radionuklidi uranijum 238 i uranijum 235 (^{238}U i ^{235}U), radijum 226 (^{226}Ra), torijum 232 (^{232}Th).

2. Leteći pepeo koji nastaje u kotlovima TENT ima povećanu koncentraciju prirodnih radionuklida u odnosu na ugalj. Radi se o tehnološki povišenoj prirodnoj radioaktivnosti (*Technologically Enhanced Occurring Radioactive Material* – TENORM) industrijskog otpada, pri čemu prosečne specifične aktivnosti ^{232}Th u uglju iznose 25,2, a u letećem pepelu 84,2 Bq/kg. Specifične aktivnosti ^{238}U u uglju iznose 38,3, a u letećem pepelu 142,60 Bq/kg. Specifične aktivnosti ^{40}K u uglju iznose 112,2, a u letećem pepelu 415,60 Bq/kg.

3. Pepeo se može koristiti u niskogradnji, pošto je gama-indeks manji od jedan. Kod primene u visokoj gradnji udeo pepela kao dodatka drugim građevinskim materijalima zavisi kako od njegovih fizičkih i hemijskih karakteristika, tako i od specifične aktivnosti ^{266}Ra , ^{232}Th i ^{40}K .

4. Postojeće programe ispitivanja karakteristika ugljeva rudarskog basena Kolubara, potrebno je dopuniti ispitivanjima specifične aktivnosti i sadržaja prirodnih radionuklida uranijumovog (^{238}U i ^{226}Ra) i torijumovog niza (^{232}Th) i kalijuma 40 (^{40}K).

5. Ispitivanja koja se odnose na prirodne radionuklide u uglju i pepelu Kolubarskog basena treba nastaviti. Dalja studijska istraživanja zahtevaju multidisciplinarni pristup koji uključuje i procenu uticaja na zdravlje ljudi.

LITERATURA

- [1] D. Kisić, Z. Cokić, N. Milićević, D. Mađarac, I. Radovanović, V. Radonjić, Prilagođavanje mera zaštite životne sredine u TE "Nikola Tesla" B, saglasno novoj tehnologiji malovodnog transporta i odlaganja pepela i šljake, III savetovanje sa međunarodnim učešćem – Stanje i perspektive deponija pepela, šljake i jalovine u termoelektranama i rudnicima, Palić, 2011, str. 42–52.
- [2] D. Kisić, M. Gavrić, N. Milićević, D. Mađarac, S. Cojić, P. Cvijanović, Mere zaštite preduzete u termoenergetskim postrojenjima jpeps u cilju smanjenja emisije praškastih materija u vazduh, Simpozijun sa međunarodnim učešćem „Zaštita vazduha 2010“ – Kvalitet vazduha i zakonska regulativa u zaštiti životne sredine, Subotica, 2010, str. 124–134.
- [3] D. Kisić, Z. Žbogar, S. Marinković, A. Kostić-Pulek, S. Cmiljanić, Mogućnost korišćenja elektrofiltarskog pepela PD TENT d.o.o. Obrenovac u niskoj i visokoj gradnji, Prva regionalna naučno-stručna konferencija o upravljanju industrijskim otpadom – Industrijski otpad, Kopaonik, 2007.
- [4] M. Kezović, Ugljonosnost Kolubarskog basena, Elektroprivreda 2 (2011) 154–163.
- [5] D. Životić, I. Gržetić, H. Lorenz, V. Simić, U and Th in Some Brown Coals of Serbia and Montenegro and Their Environmental Impact, Environ Sci Pollut Res 15 (2008) 155–161.
- [6] A.L. Meier, F.E. Lichte, P.H. Biggs, J.J. Bullock, In: B.F. Arbogast (ed.), Analysis of Coal Ash by Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry: Analytical Methods for the Mineral Resources Surveys Program, U.S. Geological Survey Open File 96–525, 1996, pp. 109–125.
- [7] Izveštaj: Laboratorijsko ispitivanje zavisnosti Prirodne radioaktivnosti uzoraka uglja PK „Tamnava-Zapadno polje“ od sadržaja pepela, Institut za nuklearne nauke Vinča, 2009.
- [8] Ž. Vuković, M. Mandić, D. Vuković, Natural radioactivity of ground waters and soil in the vicinity of the ash repository of the coal-fired power plant "Nikola Tesla" A, Obrenovac (Yugoslavia), J. Environ. Radioact. 33 (1996) 41–48.
- [9] D. Kisić, N. Veselinović, S. Tokonami, I. Čeliković, Z. Stojanović, O. Čuknić, N. Nemčević, R. Simović, Z. Žunić,

- Norm u okolini TE „Nikola Tesla“ B – eksperimentalni rezultati, XXV simpozijum Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Zbornik radova, Kopaonik, 2009, str. 47–52.
- [10] G. Pantelić, M. Eremić-Savković, M. Tanasković, Lj. Javorina, V. Vuletić, D. Kisić, Ispitivanje povećane prirodne radioaktivnosti u radnoj životnoj sredini termoelektrana u Obrenovcu, Zbornik radova, Međunarodna konferencija Elektra II-ISO 14000, Tara, 2002, str. 294–296.
- [11] Elaborat: Kontrola radioaktivnosti u radnoj i životnoj sredini TE "Nikola Tesla " B (1990–2002, 2005, 2006 i 2011. godina), Institut za medicinu rada i radiološku zaštitu "Dr. Dragomir Karajović", Beograd.
- [12] Elaborati – Kontrola radioaktivnosti u radnoj i životnoj sredini TE "Nikola Tesla " B (2003, 2004, 2007–2010. godina), Institut za nuklearne nauke "Vinča", Beograd.
- [13] Međunarodni Projekat INTAILRISK, EU FP 6, 2004–2007, „Procena rizika na životnu sredinu zbog upotrebe radioaktivnog kontaminiranog industrijskog otpada“.
- [14] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), 1988, Report of the General Assembly, with annexes, Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation, United Nations, New York, 1988.
- [15] G. Rosner, K. Bunzl, H. Hotzl, R. Winkler, Low Level Measurements of Natural Radionuclides in Soil Samples around A Coal – Fired Power Plant, Nucl. Instrum. Methods **223** (1984) 585–589.
- [16] U.C. Mishra, Environmental Impact of Coal Industry and Thermal Power Plants in India, Journal of Environmental Radioactivity **72** (2004) 35–40.
- [17] T. Momdal, D. Sengupt, A. Mandal, Natural Radioactivity of Ash and Coal in Major Thermal Power Plants of West Bengal, India, Curr. Sci. India **91** (2006) 1387–1393.
- [18] R. Kljajić, V. Šipka, M. Radenković, R. Mitrović, Ugljevi i mineralna đubriva kao izvori tehnološkog povećanja prirodne radioaktivnosti, Jonizujuća zračenja iz prirode, Beograd, 1995, str. 95–11.
- [19] U. Cevik, N. Damla, S. Nezir, Radiological Characterization of Cayirhan Coal-fired Power Plant in Turkey, Fuel **86** (2007) 2509–2513.
- [20] Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet, Službeni list RS br. 86/2011.
- [21] D. Kisić, S. Miletić, Đ. Janačković, D. Todorović, V. Radonjić, Prirodna radioaktivnost letećeg pepela iz termoelektrane Nikola Tesla B, kao jedna od značajnih karakteristika kod primene u građevinskoj industriji, I simpozijum Odsumporavanje dimnih gasova, IV savetovanje deponije pepela i šljake i jalovine u termoelektranama i rudnicima, sa međunarodnim učešćem, Palić, 2012, str. 217–227.

SUMMARY

NATURAL RADIOACTIVITY OF COAL AND FLY ASH AT THE NIKOLA TESLA B TPP

Dragica M. Kisić¹, Saša R. Miletić¹, Vladimir D Radonjić¹, Sanja B. Radanović², Jelena Z. Filipović³, Ivan A. Gržetić⁴

¹Public Enterprise Electric Power Industry of Serbia, Serbia

²Kolubara Mining Basin, Serbia

³Vinča Institute of Nuclear Sciences, University of Belgrade, Serbia

⁴University of Belgrade, Faculty of Chemistry, Serbia

(Professional paper)

Serbian thermal power plants (TPPs) produce siliceous fly ash from lignite in the quantity of approximately 6 million tons per year. The potential market for the use of fly ash is operational, but for the time being, only used by cement producers. Fly ash radioactivity could be one of the major points of concern when larger use of fly ash is planned, particularly in the Serbian construction industry. Radioactivity measurements have been conducted regularly from 1980. This paper presents the results of a ten-year fly ash radioactivity measurements at the Nikola Tesla B TPP located in Obrenovac. In addition, the paper compares the natural radionuclides coal content data combusted by the Nikola Tesla B TPP boilers coming from the Kolubara Basin and ash created during coal combustion. Fly ash created in the Nikola Tesla TPPs boilers is characterised by the increased concentration of the natural radionuclides content compared to coal. This is the so-called technologically enhanced natural radioactivity (Technologically Enhanced Occurring Radioactive Material – TENORM) of industrial waste, whereas the average specific activities: ²³²Th in coal amount to 25.2 Bq/kg, and in fly ash and coal 84.2 Bq/kg and ²³⁸U 38.3 Bq/kg, respectively. Following the obtained natural radionuclides content results it may be concluded that the Nikola Tesla B TPP ash may be disposed into the environment. Ash may be used also in the construction industry (civil engineering). In building construction applications, ash share as the additive to other building materials depends from its physical and chemical characteristics, as well as from the radionuclides activity: ²²⁶Ra, ²³²Th and ⁴⁰K. Unlike the thermal power plants regularly (once a year) testing the specific natural radionuclides activity in the combusted coal and boiler fly ash, the Electric Power Industry of Serbia has not performed large-scale investigations of the natural radionuclides content in coal within the Kolubara Mining Basin. Natural radionuclides content in fly ash is compared to the combusted coal some 3–4 times higher and may present a limitation for applying ash in the construction industry. In view of the above, and considering the construction industry interests in using the Nikola Tesla B TPP ash, regular investigations of the natural radionuclides content in ash created in the thermal power plants should be carried out, together with the Kolubara Mining Basin coal combusted by the Nikola Tesla B TPP and other PE EPS thermal power plants. The current Kolubara Mining Basin coal characteristics investigation programme should be supplemented by the natural radionuclides content of the uranium (²³⁸U and ²²⁶Ra) and thorium series (²³²Th) and potassium 40 (⁴⁰K).

Keywords: Serbian power plants • Fly ash
• Radioactivity measurements • Natural radionuclides ²³⁸U, ²³²Th, ²²⁶Ra • Construction industry