



ГОСУДАРСТВЕННЫЙ НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ

ИНСТИТУТ ФИЗИКИ ВЫСОКИХ ЭНЕРГИЙ

ИФВЭ 2000–29
ОРИ

Н.П. Лукутцова¹, О.Ю. Козлов, Г.И. Крупный,
Я.Н. Расцветалов, А.А. Янович

К ВОПРОСУ О КОЭФФИЦИЕНТЕ ЭМАНИРОВАНИЯ СТРОИТЕЛЬНЫХ МАТЕРИАЛОВ

Направлено в АЭ

¹Брянская государственная инженерно-технологическая академия

Протвино 2000

Аннотация

Лукутцова Н.П. и др. К вопросу о коэффициенте эманирования строительных материалов: Препринт ИФВЭ 2000–29. – Протвино, 2000. – 5 с., 1 табл., библиогр.: 9.

С целью выявления и оценки радоновыделения различных групп строительных материалов определены гамма-спектрометрическим методом коэффициенты эманирования ^{226}Ra . Делается вывод об обязательном контроле радона, особенно в строительных материалах, содержащих промышленные отходы (золы, шлаки).

Abstract

Lukutsova N.P. et al. On the Emanation Coefficient of Construction Materials: IHEP Preprint 2000-29. –Protvino, 2000. – p. 5, table 1, refs.: 9.

To estimate radon gas emission from various kinds of construction materials the ^{226}Ra emanation coefficients were measured by the gamma-spectrometry method. It has been concluded that radon gas emission check-up is a compulsory procedure, especially for the construction materials containing the industrial waste (ashes, slags).

Введение

Внутреннее облучение людей, находящихся в помещениях, обусловлено присутствием в воздухе помещения радона-222 и дочерних продуктов его распада. Вклад радона-222 в облучение невелик и при радиоактивном равновесии между радоном и дочерними продуктами его распада он не превышает 2%. Поэтому при оценках дозы внутреннего облучения используют эквивалентную равновесную объемную активность радона [1]:

$$C = 0.1046 C_{RaA} + 0.5161 C_{RaB} + 0.3793 C_{RaC},$$

где C_{RaA} , C_{RaB} , C_{RaC} – объемные активности полония-218, свинца-214 и висмута-214, соответственно.

Величина потока радона с единицы поверхности строительной конструкции зависит от многих факторов: коэффициента эманирования – $K_{ЭМ}$ и удельной активности радия-226 – A_{Ra} , геометрии конструкции, состояния ее поверхности и др. Для стены (перекрытия) толщиной $2d$, изготовленной из однородного материала плотностью ρ_0 , плотность потока радона равна:

$$Q = A_{Ra} K_{ЭМ} \rho_0 \lambda_0 d \operatorname{th}(\beta) / \beta,$$

где $\beta = d / l_0$ – отношение половины толщины стены к длине диффузии радона;

$$l_0 = \sqrt{\frac{D}{\rho_0 \cdot \lambda_0}} \text{ – длина диффузии радона в пористом материале;}$$

λ_0 – постоянная распада радона.

В случае, если длина диффузии больше или равна толщине стены ($\beta < 0.5$), значение коэффициента $\operatorname{th}(\beta)/\beta$ в формуле для скорости потока близко к единице, плотность потока радона при этом достигает максимального значения. Для радона-222 длина диффузии в строительных конструкциях составляет около 20 см [1]. Для стен и перекрытий толщиной от 50 до 10 см значения $\operatorname{th}(\beta)/\beta$ лежат в диапазоне от 0.68 до 0.98. В этом случае, при прочих равных условиях, основными параметрами строительного материала, определяющими плотность потока радона и его объемную активность в воздухе помещения, являются удельная активность A_{Ra} радия-226 и коэффициент эманирования $K_{ЭМ}$.

В настоящее время изучение эманирующей способности строительных материалов в нашей стране (да и за рубежом, за исключением нескольких видов строительных материалов) основано на единичных измерениях, которых явно недостаточно.

Поэтому с целью выявления и оценки радоновыделения различных групп строительных материалов была поставлена задача определения коэффициентов эманирования радия-226 местных строительных материалов, промышленных отходов и материалов на их основе.

Отбор и подготовка проб

Отбор и подготовку проб проводили в соответствии с ГОСТ 30108-94. Для сыпучих материалов пробу, полученную путем перемешивания и квартования не менее 10 точечных проб, отбирали из контрольных точек штабелей по периметрам горизонтальных сечений с интервалом не более 10 м; на картах намыва – в узлах прямоугольной сетки 10x10 м². Пробу с размерами фракций более 5 мм измельчали до размеров менее 5 мм.

Из готовых строительных изделий (кирпич, бетонные плиты и блоки) отбирали пробу массой от 2.5 до 10 кг. Пробу измельчали, просеивали через контрольное сито с круглыми отверстиями диаметром 5 мм и высушивали до постоянной массы. Объем проб в геометрии сосуда Маринелли составлял 1000 см³. Масса проб определялась взвешиванием на электронных весах с точностью ± 5 г. В соответствии с выбранной методикой измерения коэффициента эманирования [2] пробы, в которых содержание ²²⁶Ra находилось на уровне фона спектрометра, герметично укупоривались и выдерживались в течение 30 суток с целью достижения равновесия ²²⁶Ra с дочерними продуктами распада.

Обсчет проб

Измерения проводились на гамма-спектрометрическом комплексе [3] по методике [2]. В работе использовался гамма-спектрометр с полупроводниковым детектором типа ДГДК-80 в стальной защите. Собственный фон детектора в диапазоне энергий 100 – 3000 кэВ составляет 5.8 с⁻¹. Энергетическое разрешение спектрометра – 2.5 кэВ при E_γ = 1.332 МэВ (⁶⁰Co). Программное обеспечение комплекса позволяет выделять гамма-линии в аппаратурном спектре, производить их идентификацию, расчет удельных активностей проб, определение погрешностей [3].

Градуировка спектрометра по энергии выполнена с помощью стандартного набора образцовых гамма-источников (ОСГИ), а эффективность регистрации гамма-квантов с энергиями 186 кэВ (²²⁶Ra), 583 кэВ (²⁰⁸Tl), 609 кэВ (²¹⁴Bi) и 1460 кэВ (⁴⁰K) определена с помощью образцовых источников специального назначения (ОИСН) различной плотности в геометрии сосуда Маринелли, содержащих ²²⁶Ra, ²³²Th (с дочерними продуктами распада) и ⁴⁰K. Это позволило корректно учесть зависимость эффективности регистрации спектрометра от плотности вещества пробы. Погрешность аттестованных ОИСН составляет 5% по радиевому и ториевому рядам и 7% по калию-40.

Поскольку активность ²²⁶Ra определялась по линии 186 кэВ, то необходимо было учесть вклад в аппаратурный спектр от ²³⁵U (линия 185,7 кэВ). Согласно [2] этот вклад можно учесть с помощью поправочного коэффициента $R = 0.5687 \pm 0.0023$. При этом истинная активность ²²⁶Ra (A_{Ra}) определяется как

$$A_{Ra} = R \cdot A_{Ra}^*$$

где A_{Ra}^* – полная активность ²²⁶Ra и ²³⁵U, определяемая по линии 186 кэВ.

Коэффициент эманирования материала по радону в пробе рассчитывается по формуле:

$$K_{ЭМ} = 1 - \frac{A_{Ra}(\text{по } ^{214}\text{Bi})}{A_{Ra}}$$

Данная методика определения коэффициента эманирования при малых концентрациях ²²⁶Ra в веществе пробы и коэффициентах эманирования $K_{ЭМ} < 0,1$ дает значительные погрешности. Тем не менее, для целей настоящей работы ее применение вполне оправданно.

Результаты и комментарий

Результаты измерений, расчетных величин и их погрешностей представлены в сводной таблице.

Таблица. Эманирующие способности строительных материалов

№ п/п	Наименование материала	Удельная активность радия, Бк/кг	Коэффициент эманирования	$A_{Ra} \cdot K_{ЭМ}$, Бк/кг
1	Нефтегрунт (на кварцевом песке)	18±8	0.11±0.06	2.0
2	Кирпич магнезиальный	18±8	0.14±0.07	2.5
3	Песок кварцевый	8±1	0.37±0.08	3.0
4	Базальт	14±6	0.24±0.13	3.4
5	Раствор с полиэтиленом	16±3	0.25±0.08	4.0
6	Шлак отвалный пористый	18±4	0.23±0.07	4.1
7	Кирпич керамический	49±18	0.10±0.05	5.0
8	Плитка керамическая глазурованная	80±10	0.07±0.01	5.6
9	Бетон тяжелый	21±4	0.28±0.08	5.9
10	Арболит	29±13	0.28±0.09	8.1
11	Шлак отвалный плотный	36±11	0.24±0.10	8.6
12	Трепел	35±8	0.25±0.08	8.8
13	Щебень гранитный	51±7	0.18±0.04	9.2
14	Цементный камень	31±13	0.31±0.17	9.6
15	Керамзитовый гравий	55±26	0.19±0.10	10.5
16	Кирпич шамотный	120±12	0.10±0.02	12.0
17	Керамзитобетон	40±7	0.34±0.09	13.6
18	Отработанная формовочная смесь	31±9	0.50±0.21	15.5
19	Мелкозернистый бетон на отработанной формовочной смеси	27±8	0.60±0.24	16.2
20	Перлитобетон	29±5	0.63±0.17	18.3
21	Газобетон	37±8	0.51±0.19	18.9
22	Золобетон	59±18	0.36±0.15	21.2
23	Шлак электротермофосфорный гранулированный	230±30	0.10±0.02	23.0
24	Зола	155±31	0.25±0.07	38.9

Анализируя данные таблицы, можно все исследуемые материалы разделить условно на две группы: одна – материалы, образовавшиеся в результате расплавления с последующим быстрым или медленным охлаждением, другая – материалы, полученные при температурах не превышающих 200 °С.

Известно, что минералы земной коры, образовавшиеся с поглощением большого количества тепла, попадая в зону выветривания, освобождают часть энергии, а соответствующие им элементы группируются в менее энергоемкие соединения. При этом многие из образовавшихся минералов, возникая в коллоидно-дисперсном состоянии [4], характеризуются значительной энергией, способствующей их кристаллизации. С физико-химической точки зрения глины являются активными веществами [5]. Поведение глин при нагревании связано с процессом дегидратации, образованием новых фаз и плавлением при высоких температурах.

Из таблицы видно, что наименьшие коэффициенты эманирования имеют обожженные глинистые материалы: керамический и шамотный кирпичи ($K_{ЭМ} = 0.1$) и керамическая глазурованная плитка ($K_{ЭМ} = 0.07$).

При обжиге каолинита и монтмориллонитов происходит перестройка катиона по схеме $[AlO_4] \rightarrow [AlO_6]$. В общем перестройка решетки заключается в разрыве слоя кремнекислородных тетраэдров и частичном повышении координации ионов алюминия и магния, что сопровождается образованием определенного количества γ -глинозема (в группе каолина), шпинели и стекла (в группе монтмориллонитов).

В процессе обжига происходит образование из глинистой составляющей достаточного количества стекловидной фазы, обволакивающей и цементирующей имеющиеся в массе частицы кварцевого песка или иных отошающих добавок. Поверхность пор покрывается стекловидной пленкой (офлюсовывается) [6]. Основным сырьем для изготовления керамического кирпича являются местные глины. Глинистые минералы таких глин обычно находятся в смеси с примесями кварца, полевого шпата, слюды и др. Структура готовых изделий характеризуется наличием крупных зерен вторичных примесей, вкрапленных в основную массу, состоящую из тонкозернистого муллита и стекла.

Глазури на керамической плитке представляют собой силикатные стекла. Стекловидная фаза в прозрачных блестящих глазурях не содержит никаких включений или пор, и такие глазури имеют совершенно гладкую поверхность.

Керамзитовый гравий – искусственный зернистый материал пористого строения с преобладанием замкнутых пор и со спекшейся прочной шероховатой оболочкой, получаемый путем вспучивания при температуре $1100 \div 1230$ °С некоторых глинистых пород. Низкие значения коэффициента эманирования керамзитового гравия ($K_{ЭМ} = 0.19$) связаны с образованием на поверхности гранул вследствие окисления FeO в Fe_2O_3 кислородом окружающей среды [5].

Шамотные огнеупоры получают из огнеупорных пластичных глин или каолинов и содержат $35 \div 50\%$ муллита и $50 \div 60\%$ (по объему) алюмосиликатного стекла. Они имеют скрытокристаллическую структуру (размер кристаллов муллита не превышает $2 \div 5$ мкм) [7].

Стекло встречается в различных количествах во всех доменных шлаках, кроме тех, которые охлаждались очень медленно. В гранулированных шлаках оно является практически единственной составной частью, если не считать мелкие дендриты CaS [8].

Содержание стекла в овальном шлаке Брянского сталелитейного завода составляет 18%, а в электротермофосфорном – 98%. Соответственно и коэффициенты эманирования имеют значения 0.24 и 0.1, что связано, в первую очередь, с различной структурой материалов.

Основным компонентом отработанной формовочной смеси является кварцевый песок ($80 \div 86\%$), с примесями бетонита и крепителя УСК, ДПО и др., подвергнутый воздействию высоких температур $1200 \div 1500$ °С. Резкий переход β -кварца в α -кварц и обратно вызывает растрескивание зерен кварца [7], что повышает величину коэффициента эманирования до 0.5 по сравнению с кварцевым песком ($K_{ЭМ} = 0.37$). Надо отметить высокое значение коэффициента эманирования кварцевого песка по сравнению с другими материалами. Это связано с невысокой плотностью кристаллической решетки кварца [6] (плотность SiO_2 равна 2650, MgO – 3590, Al_2O_3 – 3960 kg/m^3).

Цементные растворы и бетоны являются многокомпонентными материалами, в которых коэффициент эманирования будет определяться не только величинами $K_{ЭМ}$ его составляющих, но и структурой материала в целом. Высокие значения $K_{ЭМ}$ бетонов и растворов (0,28 и более) объясняются их капиллярно-пористой структурой и образованием микротрещин в процессе усадки при гидратации. При взаимодействии цемента с водой основная масса новообразований получается в виде гелевидных масс, состоящих преимущественно из субмикроскопических частичек гидросиликатов кальция. Частички, слагающие гель, характеризуются кристаллической структурой, однако исключительно высокая дисперсность обуславливает их коллоидные свойства [9]. Повышение пористости (снижение плотности) приводит к увеличению коэффициента эманирования, что прослеживается в ряду: тяжелый бетон, керамзитобетон, газобетон ($K_{ЭМ}$ равны соответственно 0.28, 0.34, 0.51). Причем первостепенную роль будет играть

капиллярная пористость, так как поры геля радиусом менее 10^{-5} см при обычных условиях будут заполнены адсорбционной влагой.

Введение в состав укрепленного грунта (цементогрунта) сырой нефти для повышения водонепроницаемости приводит к заполнению пор материала нефтью, что снижает $K_{ЭМ}$ до 0.1, величины, соответствующей обожженным керамическим материалам.

Проведенные исследования показали, что коэффициенты эманирования радона строительных материалов и промышленных отходов имеют более высокие значения, чем представленные в работе [1].

Для материалов, получаемых расплавлением с последующим резким охлаждением, характерны низкие значения коэффициента эманирования ($K_{ЭМ} = 0.1$) при высокой капиллярной пористости.

Многокомпонентные цементные материалы с меньшей капиллярной пористостью имеют $K_{ЭМ}$ в три и более раз выше за счет высокой удельной поверхности геля цементного камня и наличия микротрещин.

Из исследуемых материалов газо-, золо- и перлитобетоны относятся к материалам с повышенными значениями $A_{Ra} \cdot K_{ЭМ}$, несмотря на то, что по содержанию естественных радионуклидов они относятся к материалам 1 класса в соответствии с ГОСТ 30108-94. В связи с сокращением сырьевых ресурсов и тенденцией к использованию в более широких масштабах промышленных отходов, встает вопрос об обязательном контроле радона в строительных материалах, особенно содержащих промышленные отходы.

Список литературы

- [1] Крисюк Э.М. Радиационный фон помещений. – М.: Энергоатомиздат, 1989, с.120.
- [2] Будаговский С.С., Завалева Л.В., Шевченко Л.Н. и др. Гамма-спектрометрическое определение коэффициента эманирования строительных материалов по радону. Повышение качества строительных работ, материалов и проектных решений. – В кн.: Сборник трудов БГИТА. Брянск, 1998, с. 230-237.
- [3] Крупный Г.И., Стеценко Г.Н., Янович А.А. Методические вопросы использования пороговых активационных детекторов в радиационных исследованиях на ускорительном комплексе ИФВЭ: Препринт ИФВЭ 2000-30. – Протвино, 2000.
- [4] Грим Р.Е. Минералогия и практическое использование глин. – М.: Мир, 1967, с. 340.
- [5] Мчедлов-Петросян О.П. Химия неорганических строительных материалов. – М.:Изд-во литературы по строительству, 1971, с. 224.
- [6] Кингери У.В. Введение в керамику. – М.: Изд-во литературы по строительству, 1967, с. 499.
- [7] Перепелицын В.А. Основы технической минералогии и петрографии. – М.: Недра, 1987, с. 255.
- [8] Инсли Г., Фрешетт В.Д. Микроскопия керамики, цементов, стекол, шлаков и формовочных песков. – М.: Госстройиздат, 1960, с. 298.
- [9] Волженский А.В. Минеральные вяжущие вещества. – М.: Стройиздат, 1986, с. 480.

Рукопись поступила 7 июля 2000 г.

Н.П. Лукутцова и др.
К вопросу о коэффициенте эманирования строительных материалов.

Оригинал-макет подготовлен с помощью системы Word.

Редактор Л.Ф. Васильева.

Технический редактор Н.В. Орлова.

Подписано к печати 11.07.2000. Формат 60 × 84/8. Офсетная печать.
Печ.л 0,62. Уч.- изд.л. 0,5. Тираж 130. Заказ 170. Индекс 3649.
ЛР №020498 от 17.04.97.

ГНЦ РФ Институт физики высоких энергий,
142284, Протвино Московской обл.

Индекс 3649

П Р Е П Р И Н Т 2000-29, ИФВЭ, 2000
