

УДК 628.518:539.16

ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЕ И ЭМАНАЦИЯ РАДОНА СТРОИТЕЛЬНЫМИ МАТЕРИАЛАМИ

Хоботова Э. Б., Здвизова Ю. В., Уханева М. И.
Харьковский национальный автомобильно-дорожный университет

Определены эффективные удельные радиоактивности естественных радионуклидов в строительных материалах и отходах производства. Рассчитаны величины доз облучения человека. Оценено поступление изотопов радона в воздух помещений.

Важнейшими компонентами естественного облучения человека являются, во-первых, облучение в помещении от строительных материалов, изготовленных из природного сырья, содержащего в своем составе естественные радионуклиды (ЕР) — ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K [1, 2]; во-вторых, радиоактивный газ радон, образующийся при распаде ^{226}Ra и ^{232}Th и поступающий в воздух помещений из стен и почвы под зданием. Суммарно эти источники вносят до 70% в общую дозу облучения населения [2]. Внедрение безотходных технологий стимулирует использование отходов различных производств как компонентов бетонов: вяжущих и заполнителей. Так как многие отходы производства концентрируют естественные радионуклиды, могут возрасти дозы облучения людей, находящихся в каменных помещениях.

Работа выполнена в рамках государственной программы охраны окружающей среды — 4-ое направление научно-исследовательских работ Министерства образования и науки Украины.

Проведено исследование радиационных свойств образцов строительных материалов предприятия ЗАО «Балаклеяского райаггостроя». Гамма-спектрометрическим методом в строительных материалах и отходах производства наряду с ЕР ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K обнаружены искусственные радионуклиды ^{137}Cs , ^{131}I . Экспериментальные и расчетные данные представлены в таблице 1. 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 для строительных материалов ($25,5 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$) и по Украине ($33 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$) [1, 2] в образцах № 1, 4, 6. C_{Ra} образцов № 4, 6 превышала среднюю C_{Ra} по СНГ ($26,6 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$) и по Украине ($28 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$) [1, 2].

Таблица 1. Результаты гамма-спектрометрического анализа строительных материалов

№	Материал	Удельная радиоактивность, Бк·кг ⁻¹ (вклад, %)				Сумма удельных активностей , Бк·кг ⁻¹	$\frac{C_{эф.(1)}}{C_{эф.(2)}}$, Бк·кг ⁻¹
		²³² Th	²²⁶ Ra	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs		
1	Глина	40,8 (11,3)	19,5 (5,4)	299 (83,2)	-	359	<u>98,3</u>
2	Вода (для производства кирпича)	-	3,25 (100,0)	-	-	3,25	<u>3,25</u>
3	Уголь	20,2 (11,2)	26,2 (14,6)	133 (74,2)	-	180,0	<u>40,2</u>
4	Зола (для производства бетона)	50,7 (8,2)	58,2 (9,5)	494 (80,1)	13,3 (2,2)	159	$\frac{167,1}{171}$
5	Высушенный кирпич	3,65 (6,8)	2,46 (4,6)	47,6 (88,6)	-	53,7	<u>11,3</u>
6	Обожженный кирпич	50,8 (8,0)	40,8 (6,5)	541 (85,5)	-	632	<u>153</u>

Влияние термической обработки на величину удельной активности образцов можно проследить при сравнении образцов № 5 и № 6, соответственно высушенного и обожженного кирпичей. Уровень C_{Th} , C_{Ra} и C_K у обожженного кирпича соответственно в 14; 16,5; 11 раз выше, чем у высушенного. Сумма удельных активностей обожженного кирпича в 12 раз выше, чем высушенного, а значение $C_{эф.}$ — в 13,5 раз больше. Такая разница в значениях удельных активностей может быть связана с уменьшением количества воды на единицу массы кирпича, а, следовательно, с увеличением массового вклада радионуклидов. При высушивании в готовом изделии остается вода во внутренних глубоких слоях. Большая часть этой воды впоследствии свяжется в кристаллогидраты. Обжиг уменьшает как количество несвязанной, так и связанной в кристаллогидраты воды за счет их разрушения.

Из исследованных материалов только один образец № 2 (вода) характеризуется наличием единственного радионуклида ²²⁶Ra с малой удельной активностью 3,25 Бк·кг⁻¹.

Относительно активности искусственных радионуклидов можно отметить следующее. Значение C_{Cs-137} в образце № 4 (зола) составляет 13,3 Бк·кг⁻¹. С таким уровнем активности радионуклид ¹³⁷Cs не зарегистрирован более ни в одном образце. Его присутствие можно объяснить протеканием реакции спонтанного деления ²³⁸U, о первоначальном присутствии которого свидетельствует наличие дочернего продукта деления ²²⁶Ra. В других образцах обнаружены минимальные количества искусственных изотопов ¹³⁷Cs и ¹³¹I,

которые также можно объяснить протеканием спонтанного деления ^{238}U .

Для всех исследованных образцов рассчитано два варианта эффективной удельной активности ЕР ($C_{\text{эф.}}$), используемой для сравнительных оценок радиоактивности стройматериалов по уравнениям

$$C_{\text{эф. (1)}} = C_{\text{Ra}} + 1,31C_{\text{Th}} + 0,086C_{\text{K}}, \quad (1)$$

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

Результаты приведены в таблице 1. Сопоставление $C_{\text{эф.}}$ с данными о радиоактивности горных пород, почв и земной коры показало, что средние значения $C_{\text{эф.}}$ в строительных материалах СНГ близко к средней величине $C_{\text{эф.}}$ для почв и приблизительно в 1,5 раза ниже среднего значения для земной коры.

Для образцов № 4 и 6 величина $C_{\text{эф.}}$ превышает среднюю $C_{\text{эф.}}$ по СНГ ($93 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$) и по Украине ($106 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$). Использование золы (образец № 4) в качестве вяжущего и заполнителя может привести к повышению $\bar{C}_{\text{эф.}}$ готового многокомпонентного бетона и к увеличению дозы. $\bar{C}_{\text{эф.}}$ материала рассчитывается с учетом массовых вкладов составляющих его компонентов по формуле [2]

$$\bar{C}_{\text{эф.}} = \frac{\sum (C_{\text{эф.}})_i \cdot m_i}{\sum m_i}, \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}. \quad (3)$$

Таким образом, необходимо строгое дозирование золы в качестве компонентов бетона. Обожженный кирпич также может применяться для сооружения зданий при условии, что другие совместно используемые строительные материалы будут иметь низкие значения $C_{\text{эф.}}$.

Все исследуемые материалы относятся к I классу радиационной опасности стройматериалов, используемых в строительстве без ограничений. Для них выполняется условие [3]

$$C_{\text{эф.}} \leq 370 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}. \quad (4)$$

Величину годовой эффективной эквивалентной дозы γ -излучения в каменном помещении $D_{\text{пом.}}$ рассчитывали по формуле [2]

$$D_{\text{пом.}} = 4,74\bar{C}_{\text{эф.}}, \text{ мкЗв}\cdot\text{год}^{-1}. \quad (5)$$

Формула выведена, исходя из оценки НКДАР ООН, что жители промышленно развитых стран 80% времени проводят в помещениях, 15% — в дороге и 5% — на открытой местности.

Ниже приведены результаты расчета $\bar{C}_{\text{эф.}}$ для бетонных и кирпичных помещений. Для бетонных помещений расчет велся по компонентам со следующими массовыми вкладами: цемент — 0,15, песок (отработанная формовочная смесь ОФС) — 0,14, вода — 0,07,

гравий — 0,51, зола — 0,13. Удельные активности золы и воды взяты из данных таблицы 1. Удельная активность цемента — из работы [4]. Удельные активности песка (ОФС) и гравия — из работы [3]. Отсюда $\overline{C}_{\text{эф.бетон.}} = (80 \times 0,15) + (39,4 \times 0,14) + (3,25 \times 0,07) + (81 \times 0,51) + (167 \times 0,13) = 80,8$ Бк/кг.

Для кирпичных помещений учитывались компоненты с массовым вкладом: кирпич — 0,8, цемент — 0,04, вода — 0,08, песок — 0,08. Удельные активности воды и кирпича (образец № 6) взяты из данных таблицы 1. Отсюда

$$\overline{C}_{\text{эф.кирпич}} = (153 \times 0,8) + (80 \times 0,04) + (3,25 \times 0,08) + (39,4 \times 0,08) = 129 \text{ Бк/кг.}$$

Таким образом, дозы гамма-излучения составляют:

- для бетона $D_{\text{пом.}} = 4,74 \times 80,8 = 383 \text{ мкЗв} \cdot \text{год}^{-1}$;
- для кирпича $D_{\text{пом.}} = 4,74 \times 129 = 611 \text{ мкЗв} \cdot \text{год}^{-1}$.

Доза, полученная за счет γ -излучения ЕР стройматериалов, $\Delta D_{\text{ЕР}}$, рассчитывается по разности [3]

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

где $305 \text{ мкЗв} \cdot \text{год}^{-1}$ — это доза, которую получили бы люди, находясь весь год на открытой местности (для географических широт Украины) [3].

Отсюда для кирпичных помещений (обожженный кирпич)

$$\Delta D_{\text{ЕР}} = 611 - 305 = 306 \text{ мкЗв} \cdot \text{год}^{-1},$$

для бетонных помещений

$$\Delta D_{\text{ЕР}} = 383 - 305 = 78 \text{ мкЗв} \cdot \text{год}^{-1}.$$

Доза гамма-излучения для кирпичных помещений приближается к средней эквивалентной дозе γ -излучения строительных материалов в развитых странах ($350\text{--}411 \text{ мкЗв} \cdot \text{год}^{-1}$) [3], а для бетона — намного меньше. Однако в последнее время многокомпонентные бетоны все более различаются по составу. Становится четкой тенденция использования отходов различных производств в качестве вяжущего компонента и наполнителя в многокомпонентных бетонах. В связи с этим представлял интерес расчет доз гамма-излучения многокомпонентных бетонов с включением золы (образец № 4). Рассматриваемый нами отход производства также может быть использован в бетонах в качестве различных компонентов. Рассмотрено три возможных варианта бетона:

- смешанное цементно-зольное вяжущее и мелкий заполнитель ОФС;

- цементное вяжущее (Ц) ($C_{\text{цемент}}=80 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$), смешанный мелкий заполнитель — зола (З) и отработанная формовочная смесь (ОФС) ($C_{\text{эф.ОФС}} = 39,4 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$ [3]);
- смешанное цементно-ОФС вяжущее и мелкий заполнитель — зола.

Результаты расчета, приведенные в таблице 2, показывают, что $D_{\text{пом.}}$ и $\Delta D_{\text{ЕР}}$ достаточно велики и мало зависят от $C_{\text{эф.}}$ цементной составляющей, а в основном определяются активностью золы. Во втором и третьем случаях превышено среднее значение $\Delta D_{\text{ЕР}}$ по СНГ $100 \text{ мкЗв}\cdot\text{год}^{-1}$ [3]. С позиций необходимости снижения гамма-фона в помещении рекомендуются варианты бетона первый либо второй при условии, что доза излучения от ЕР не превысит $100 \text{ мкЗв}\cdot\text{год}^{-1}$. Это возможно при вкладе золы в бетон не более 30% (расчет № 3).

Таблица 2. Значения $C_{\text{эф.}}$ бетона, $D_{\text{пом.}}$ и $\Delta D_{\text{ЕР}}$ для многокомпонентных бетонов

№	Содержание компонентов, %		$\bar{C}_{\text{эф.}}$, Бк·кг ⁻¹	$D_{\text{пом.}}$, мкЗв·год ⁻¹	$\Delta D_{\text{ЕР}}$, мкЗв·год ⁻¹
	Вяжущее	Наполнитель			
1	Ц : 3 8 : 12	ОФС 80	57,6	273,2	-
2	Ц 20	З : ОФС 40 : 40	98,6	467,4	162,4
	Ц 20	З : ОФС 30 : 50	85,4	405	100
3	Ц : ОФС 7 : 13	З 80	144,3	684,1	379,1

γ -Излучение бетонов третьего состава превышает $\Delta D_{\text{ЕР}}$ более, чем в 3 раза и превышает суммарную дозу за счет действия γ -излучения стройматериалов и эманирования из стен изотопов радона ($350 \text{ мкЗв}\cdot\text{год}^{-1}$ [3]). Доза излучения за счет эманирования радона из почвы составляет $690 \text{ мкЗв}\cdot\text{год}^{-1}$ [3]. Таким образом, не рекомендуется использование золы в качестве единственного наполнителя бетона.

В третьем варианте расчета дополнительное гамма-излучение ЕР составляет $379,5 \text{ мкЗв}\cdot\text{год}^{-1}$, а за 50 лет жизни — $0,0189 \text{ Зв}$. Однако эта величина меньше дозы облучения населения за счет ПРН и при медицинских процедурах [5, 6]. Суммарное фактическое облучение за 50 лет жизни людей, проживающих в каменных домах, составит $684,5 \cdot 50 : 1000000 = 0,0342 \text{ Зв}$. В настоящее время принято считать среднюю дозу облучения населения, обусловленную естественным радиационным фоном и медицинскими процедурами, равной $0,1\text{--}0,2 \text{ Зв}$ за 50 лет. При этом соматические отдаленные последствия составят $1\text{--}2\%$.

Изучаемые материалы оценивались по величине радоновыделения. Результаты расчетов приведены в таблице 3. Не обнаружено превышения $C_{эф. Ra}$ для I класса радиационной опасности стройматериалов ($22,2 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$) [3, 7]. Максимальную концентрацию ^{222}Rn в порах образцов материалов $C_{Rn \max}$ рассчитывали по уравнению [3]

$$C_{Rn \max} = \frac{C_{Ra} \cdot \rho \cdot \eta}{P}, \text{ Бк}\cdot\text{л}^{-1}, \quad (7)$$

где ρ — плотность материала, $\text{кг}\cdot\text{л}^{-1}$; η — коэффициент эманирования; P — пористость образца, %.

Значения ρ , η и P приведены в таблице 4.

Таблица 3. Результаты расчета величин концентраций радона внутри пор строительных материалов, в воздухе помещений, годовой тканевой дозы облучения человека для невентилируемого (1) и вентилируемого (2) помещений

Показатель Образец	C_{Ra} , Бк/кг	$C_{Rn \max}$, Бк/л	C_{Rn} , Бк/л	C_{Rn} , Ки/л	$D_{\text{лег. (1)}}$, бэр/год	$D_{\text{лег. (2)}}$, бэр/год	$D_{\text{лег. (2)}}$, мкЗв/год
Высушенный кирпич*	2,46	0,02	$2 \cdot 10^{-4}$	$5,4 \cdot 10^{-15}$	2,7	$7,56 \cdot 10^{-4}$	7,56
Обожженный кирпич**	40,8	0,02	$2 \cdot 10^{-4}$	$5,4 \cdot 10^{-15}$	2,7	$7,56 \cdot 10^{-4}$	7,56

* - кирпич полученный результатом процесса сушки открытого типа;
** - кирпич обожженный при $t = 900^\circ$.

Таблица 4. Значения плотности (ρ), пористости (P) и коэффициента эманирования (η) для высушенного и обожженного кирпича [7]

Значение параметра	Кирпич	Высушенный	Обожженный
Интервал ρ , $\text{кг}/\text{л}$		1,5–2,0	1,3–1,65
Среднее значение ρ , $\text{кг}/\text{л}$		1,75	1,5
Интервал P , %		6–10	8–16
Среднее значение P , %		8	12
η , %		3,8	0,4

Величина $C_{Rn \max}$ определяет значение объемной активности радона в воздухе помещений C_{Rn} . Последняя, в свою очередь, зависит от скорости воздухообмена. Концентрация радона в воздухе помещения C_{Rn} составляет $0,01 \cdot C_{Rn \max}$, что связано со стек-эффектом и присутствием отходов в стройматериалах, главным образом, в виде добавок. Расчетные результаты (таблица 3) показывают, что несмотря на почти 20-ти кратное превышение C_{Ra} в обожженном кирпиче по сравнению с высушенным, значения внутрипоровой и объемной концентрации радона в воздухе помещения совпадают. Причиной является изменение способности материала к эманированию радона при термической обработке материала. Сплавление частиц и

укупоривание пор приводит к снижению коэффициента эманирования с 3,8% для высушенного кирпича против 0,4% — для обожженного. Незначительное повышение пористости не может скомпенсировать данный эффект. Если пор и становится больше, то они в основном замкнутые, что препятствует выходу радона. Это подтверждают экспериментальные данные по определению объемной активности радона, полученные с помощью радиометра РРА-01. Исходя из них, равновесная концентрация радона в воздухе, контактирующем со строительным материалом, равна 24 Бк/м³ для обоих образцов кирпича. Это значение ниже предельно допустимой концентрации по радону 100 Бк/м³.

Среднюю годовую тканевую (легочную) дозу облучения человека за счет радона ($D_{\text{лег.}}$) для неветилируемого помещения рассчитывали по формуле [8]

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

где C_{Rn} , Ки·л⁻¹.

Легочная доза для вентилируемого помещения составляет [8]

$$D_{\text{лег.}} = 1,4 \cdot 10^{11} \cdot C_{\text{Rn}}, \text{бэр} \cdot \text{год}^{-1}. \quad (9)$$

Исследованные материалы могут быть рекомендованы в качестве строительных материалов, используемых для сооружения жилых зданий, где воздухообмен интенсивный, так как не превышено среднее значение $D_{\text{лег.}}$ по СНГ (350 мкЗв·год⁻¹ [8]) для помещений с интенсивным воздухообменом.

Основная опасность при использовании исследованного кирпича будет связана с повышенным γ -излучением ЕР строительных материалов. Для уменьшения γ -излучений ЕР рекомендуется при строительстве комбинировать кирпич с другими строительными материалами; использовать отделочные материалы, способствующие уменьшению гамма-излучений. Использование многокомпонентного бетона с включением золы возможно при условии строго дозирования данного отхода производства в качестве наполнителя (не более 30%).

Литература

1. Крисюк Э. М. Нормирование радиоактивности строительных материалов // Гигиена и санитария, 1980. — № 12. — С. 32–34.
2. Крисюк Э. М. Радиационный фон помещений. — М.: Энергоиздат, 1989. — 120 с.
3. Ахременко С. А. Управление радиационным качеством строительной продукции. — М.: Изд. Ассоциации строительных вузов, 2000. — 234 с.
4. Хоботова Э. Б., Дмитриченко Л. В., Самоквит А. В., Шмырева Ю. А. Радиационно-химическая оценка материалов, используемых в строительстве // Вестник национального технического университета «ХПИ». Сб. научных трудов.

Тематич. вып. «Химия, химические технологии и экология», 2004. — № 15. — С. 123–128.

5. Нормирование радиоактивности строительных материалов при разном виде их использования / Э.М. Крисюк, В.И. Карпов, П. Кляус и др. // Report SAAS-250. Berlin, 1979. — S. 205–213.

6. Сивинцев Ю. В. Фоновое облучение человеческого организма. — М.: Атомиздат, 1960.

7. Крисюк Э. М. Радиационно-гигиеническая оценка строительных материалов: Методические рекомендации. — Л.: МЗ РСФСР, ЛНИИРГ, 1976. — 86 с.

8. Перцов Л. А. Ионизирующие излучения биосферы. — М.: Энергоиздат, 1973.

30.04.08