

Оценка влияния обжига на радиоактивность глинистых горных пород и материалов

П.Э. Соколов¹, С.А. Сентенберг²

¹Волгоградский государственный технический университет,

²Волгоградский технологический колледж

Аннотация: Проведены исследования по оценке влияния обжига на удельные активности и эффективные удельные активности глинистых горных пород. Корреляционный анализ позволил установить зависимости между исследованными характеристиками. Это позволило построить модель полиномиальной регрессии для удельных активностей и эффективной удельной активности естественных радионуклидов. Результаты исследований позволяют, используя полученные уравнения регрессии и технологические режимы производства уменьшить эффективную удельную активность и, следовательно, дозы облучения населения от этих материалов.

Ключевые слова: естественная радиоактивность, обжиг, глинистые горные породы, радионуклид, корреляционный анализ, полиномиальная регрессия.

В настоящее время признана гипотеза об отсутствии порога действия радиации. Считается, что любые, сколь угодно малые, дополнительные дозы радиации оказывают негативное воздействие на живой организм [1].

Значительный вклад в дозу облучения населения вносят природные источники ионизирующего излучения, «привносимые» в жилые, общественные и производственные здания строительными материалами [2].

Концентрация естественных радионуклидов (ЕРН) в горных породах обуславливает радиоактивность готовых строительных материалов.

Литературные источники содержат значительное количество данных об удельных активностях ЕРН как для горных пород, применяемых для производства строительных материалов, так и для готовых материалов [3-5]. Наряду с этим имеют место исследования влияния тепловой обработки на коэффициент эманирования радона [6-8].

Исследованию связи между различными материалами, средами и радионуклидами посвящен ряд публикаций [9, 10]. Однако вопрос влияния тепловой обработки на удельные активности ЕРН и эффективную удельную активность глинистых горных пород и материалов остается малоизученным.

Поэтому изучение влияния обжига на радиоактивность глинистых горных пород, а также поиск путей и возможностей ее снижения при производстве строительных материалов представляет интерес. С этой целью были проведены исследования влияния тепловой обработки на радиоактивность глинистых горных пород и материалов.

Исследуемые материалы представлены тремя видами глин из различных месторождений Волгоградской области. Все исследованные глины применяются для производства различных видов строительных материалов (керамического кирпича, портландцемента, керамзита). Применение этих строительных материалов обязывает соблюдать все нормы и требования безопасности. Одной из нормируемых величин является эффективная удельная активность ЕРН, а как следствие удельные активности нормируемых радионуклидов – ^{40}K , ^{226}Ra и ^{232}Th (ГОСТ 30108-94, НРБ-99/2009).

Отобранные пробы исследованных материалов отбирались по стандартной методике [11]. Определение удельных активностей ЕРН производилось на сцинтилляционном гамма-спектрометре. Полученные значения удельных активностей использовались для расчета эффективной удельной активности ЕРН по формуле (ГОСТ 30108-94):

$$A_{эфф} = 0,09A_K + A_{Ra} + 1,3A_{Th} , \quad (1)$$

где A_K – удельная активность ^{40}K , Бк/кг; A_{Ra} – удельная активность ^{226}Ra , Бк/кг; A_{Th} – удельная активность ^{232}Th , Бк/кг.

Далее пробы подвергались постадийной тепловой обработке, с шагом 150°C , в интервале температур от 20 до 1500°C . После каждой стадии обжига для каждой пробы определялись удельные активности и рассчитывалась эффективная удельная активность ЕРН. Полученные результаты исследований приведены в таблице № 1.

Таблица № 1

Удельные активности и эффективные удельные активности ЕРН (Бк/кг) при различных температурах обжига (°С)

Показатель	Температура обжига					
	20	150	300	450	600	750
	Глина 1					
⁴⁰ К	1912,0	1208,0	1502,0	1817,0	1999,0	1164,0
²²⁶ Ra	60,4	39,2	28,6	47,8	89,4	42,7
²³² Th	75,5	74,9	111,2	64,1	103,8	65,6
A _{эфф}	330,6	245,3	308,3	294,6	404,6	232,7
m, г	1000	948	919	913	884	884
	Глина 2					
⁴⁰ К	320,3	201,8	249,8	304,3	333,1	192,2
²²⁶ Ra	13,7	8,9	6,4	10,8	20,3	9,6
²³² Th	16,4	16,2	24,1	13,8	22,5	14,1
A _{эфф}	63,8	48,2	60,3	56,1	79,5	45,2
m, г	1000	961	937	924	869	857
	Глина 3					
⁴⁰ К	972,4	583,4	729,3	904,3	1035,6	573,7
²²⁶ Ra	35,2	22,2	17,2	28,5	51,0	25,3
²³² Th	61,1	57,4	87,4	55,6	86,1	54,9
A _{эфф}	202,1	149,3	196,5	182,2	256,2	148,5
m, г	1000	952	926	909	891	883

Продолжение таблицы № 1

Показатель	Температура обжига				
	900	1050	1200	1350	1500
	Глина 1				
⁴⁰ К	1099,0	879,0	487,0	219,0	21,3
²²⁶ Ra	33,8	31,7	20,1	18,8	9,3
²³² Th	125,7	94,3	60,6	36,0	4,2
A _{эфф}	296,1	233,3	142,6	85,4	16,6
m, г	795	716	644	579	521
	Глина 2				
⁴⁰ К	182,6	144,1	80,1	35,2	3,2
²²⁶ Ra	7,5	7,1	4,5	4,2	2,1
²³² Th	27,2	20,3	13,1	7,7	0,8
A _{эфф}	59,4	46,5	28,8	17,4	3,4
m, г	801	721	652	586	499
	Глина 3				
⁴⁰ К	593,2	457,0	252,8	87,5	19,5

^{226}Ra	20,4	17,9	10,2	11,3	4,9
^{232}Th	97,1	78,7	47,7	91,0	6,7
$A_{\text{эфф}}$	200,1	160,8	94,9	137,5	15,4
$m, \text{ г}$	786	709	647	568	514

Визуализация результатов исследований (см. рис. 1) приведенных в таблице №1 осуществлялась с помощью пакета ggplot2, который представляет собой систему для построения графиков на языке R для статистических вычислений и графики [12].

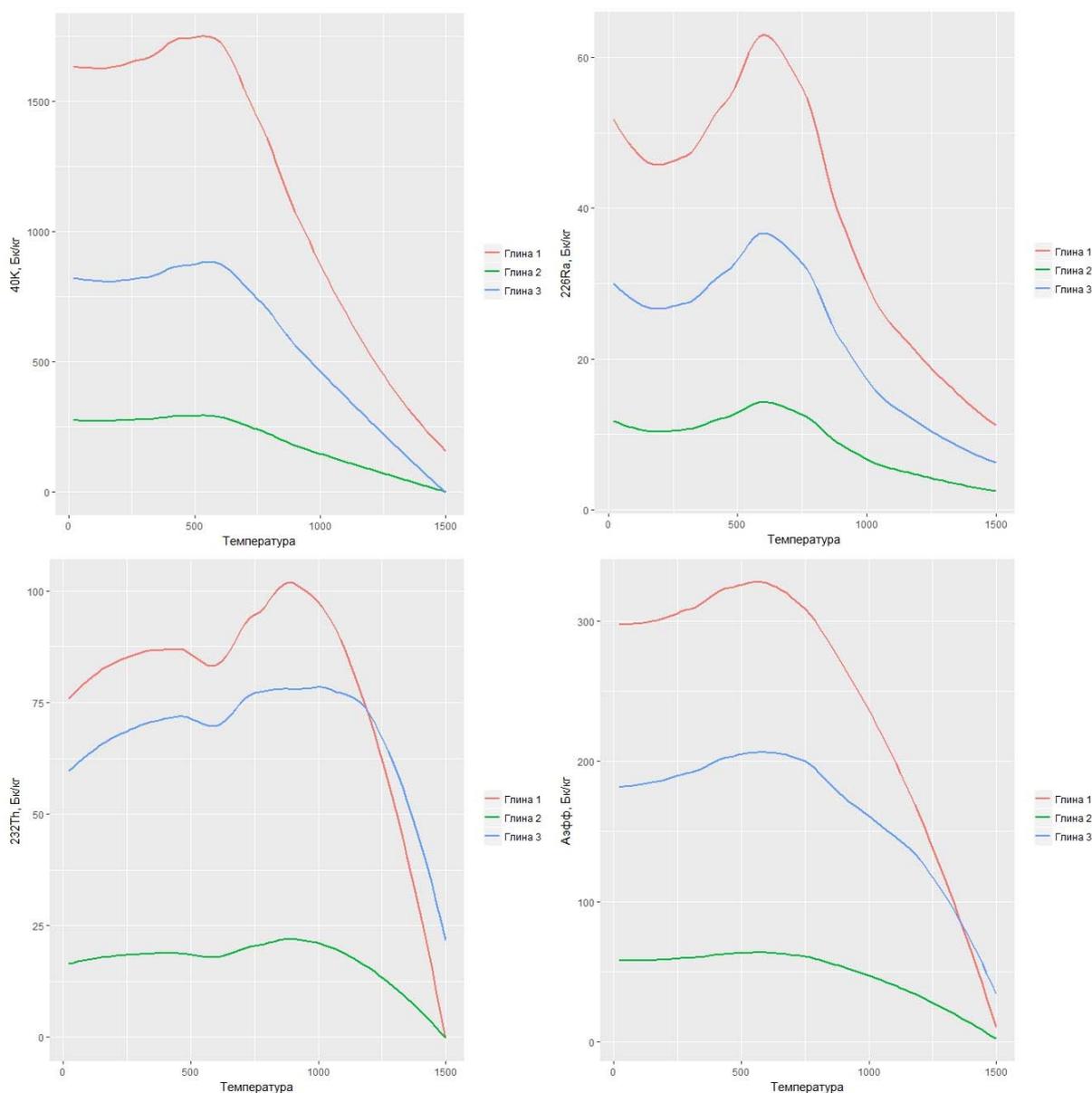


Рис. 1. – Изменения удельных и эффективных удельных активностей ЕРН при различных температурах обжига

Как видно из рис. 1 удельные активности и эффективная удельная активность ЕРН в процессе обжига изменяются различным образом.

Удельная активность ^{40}K увеличивается в интервале температур от 20°C до 600°C . Повышение температуры обжига до 1500°C приводит к значительному уменьшению удельной активности. Однако такие высокие температуры обжига имеют место достаточно редко (например, при производстве портландцемента). В остальных случаях (керамический кирпич, керамзит) температуры обжига колеблются от 900°C до 1100°C , что обусловлено различным минералогическим и химическим составом глинистого сырья.

Несколько иначе ведет себя при обжиге ^{226}Ra . В интервале температур $20 - 250^\circ\text{C}$ его удельная активность уменьшается, далее наблюдается рост вплоть до 650°C . В дальнейшем при температурах более 650°C удельная активность ^{226}Ra снижается по пологой кривой, достигая минимальных значений.

Удельная активность ^{232}Th в отличие от первых двух радионуклидов возрастает вплоть до температур 900°C , после чего снижается вплоть до минимальных активностей.

Полученные экспериментальные данные позволяют получить зависимости удельных активностей и эффективной удельной активности ЕРН от температуры обжига.

Оценим связь и зависимость удельных активностей и эффективной удельной активности ЕРН от температуры обжига с помощью полиномиальной модели регрессии. Осуществим это на примере глины 1.

Полученные при исследовании данные (см. таблицу №1) имеют стохастический (вероятностный) характер, определим, имеет ли место связь между ними. Для этого воспользуемся функцией $\text{cor}()$ входящей в базовый

пакет base языка R. Результаты корреляционного анализа представлены в таблице №2.

Таблица № 2

Величина коэффициента корреляции между исследованными показателями

	T, °C	⁴⁰ K, Бк/кг	²²⁶ Ra, Бк/кг	²³² Th, Бк/кг	A _{эфф} , Бк/кг	m, г
T, °C	1,000	-0,862	-0,611	-0,508	-0,780	-0,967
⁴⁰ K, Бк/кг	-0,862	1,000	0,859	0,634	0,951	0,918
²²⁶ Ra, Бк/кг	-0,611	0,859	1,000	0,482	0,844	0,696
²³² Th, Бк/кг	-0,508	0,634	0,482	1,000	0,828	0,598
A _{эфф} , Бк/кг	-0,780	0,951	0,844	0,828	1,000	0,862
m, г	-0,967	0,918	0,696	0,598	0,862	1,000

Представим полученные результаты с помощью матрицы диаграмм рассеяния значений зависимой и независимых переменных. Для ее создания воспользуемся функцией `pairs()` из пакета `gclus` языка R (см. рис. 2). Пары переменных, диаграммы которых расположены ближе к главной (диагональной) оси, скоррелированы сильнее.

Как видно из таблицы №2 и рис. 2 между исследованными показателями имеет место корреляция. Так между температурой обжига и остальными показателями она отрицательная, т.е. зависимость обратно пропорциональная. Причем между температурой и удельной активностью ⁴⁰K, а также массой – зависимость весьма сильная. Между температурой и эффективной удельной активностью ЕРН – зависимость сильная. Умеренная зависимость наблюдается между температурой и удельной активностью ²²⁶Ra, а также ²³²Th.

Весьма сильная зависимость просматривается между удельной активностью ⁴⁰K и удельной активностью ²²⁶Ra, эффективной удельной активностью ЕРН и массой пробы. Зависимость между удельной активностью ⁴⁰K и ²³²Th носит умеренный характер.

Удельная активность ^{226}Ra весьма сильно коррелирует с эффективной удельной активностью ЕРН, сильно с массой пробы и умеренно с удельной активностью ^{232}Th .

Сильная зависимость имеет место между удельной активностью ^{232}Th и эффективной удельной активностью ЕРН, а умеренная между удельной активностью ^{232}Th и массой пробы. Эффективная удельная активностью ЕРН имеет весьма сильную зависимость от массы пробы.

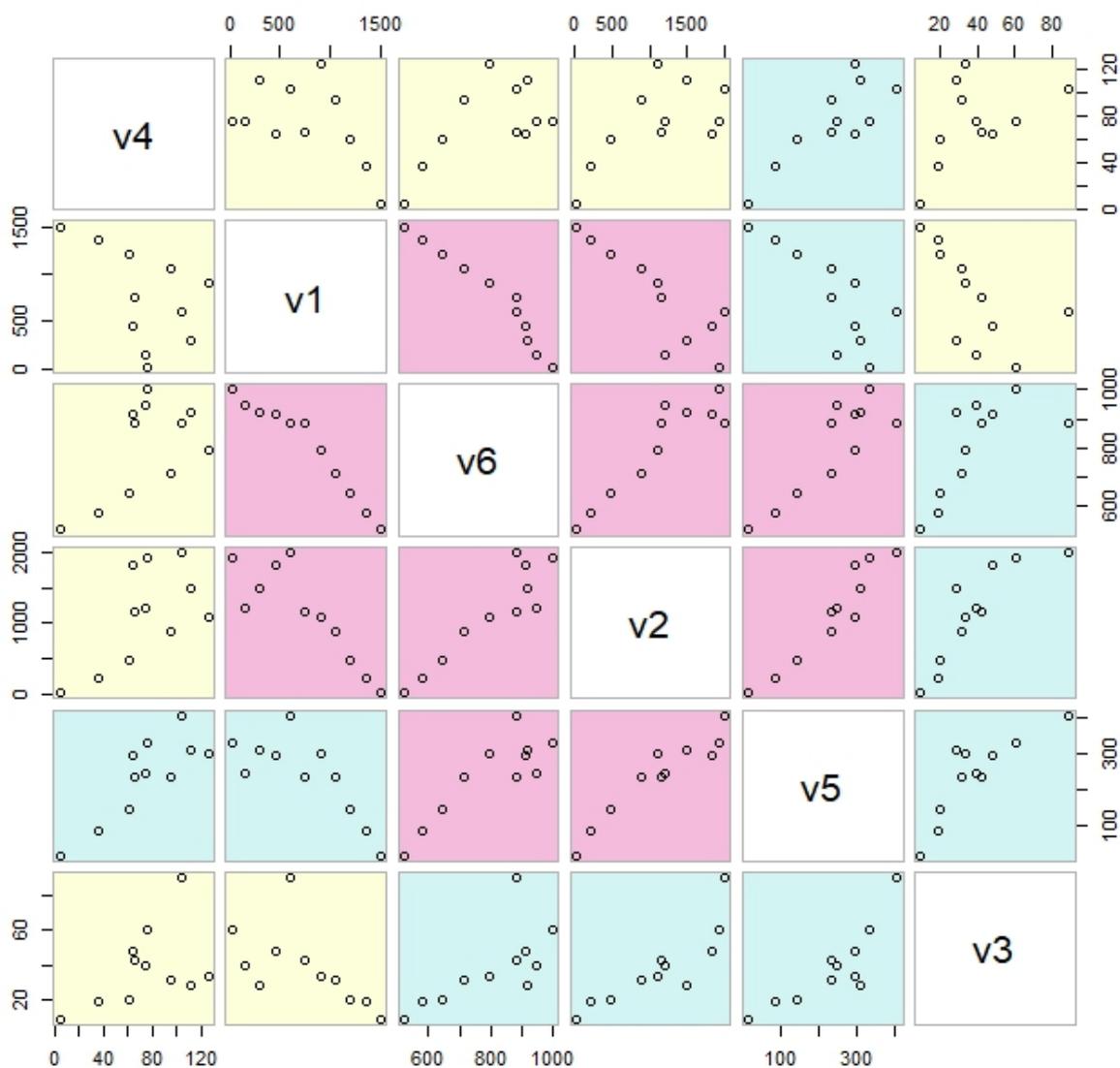


Рис. 2. – Матрица диаграмм рассеяния, упорядоченные и раскрашенные в соответствии с коэффициентами корреляции переменные: v1 – температура,

°С; v_2 – удельная активность ^{40}K , Бк/кг; v_3 – удельная активность ^{226}Ra , Бк/кг; v_4 – удельная активность ^{232}Th , Бк/кг; v_5 – эффективная удельная активность ЕРН, Бк/кг; v_6 – масса пробы, г

Воспользуемся функцией $\text{lm}()$ из программы R для нахождения модели полиномиальной регрессии, а для визуализации результатов пакетом `ggplot2`. Результат визуализации представлен на рис. 3.

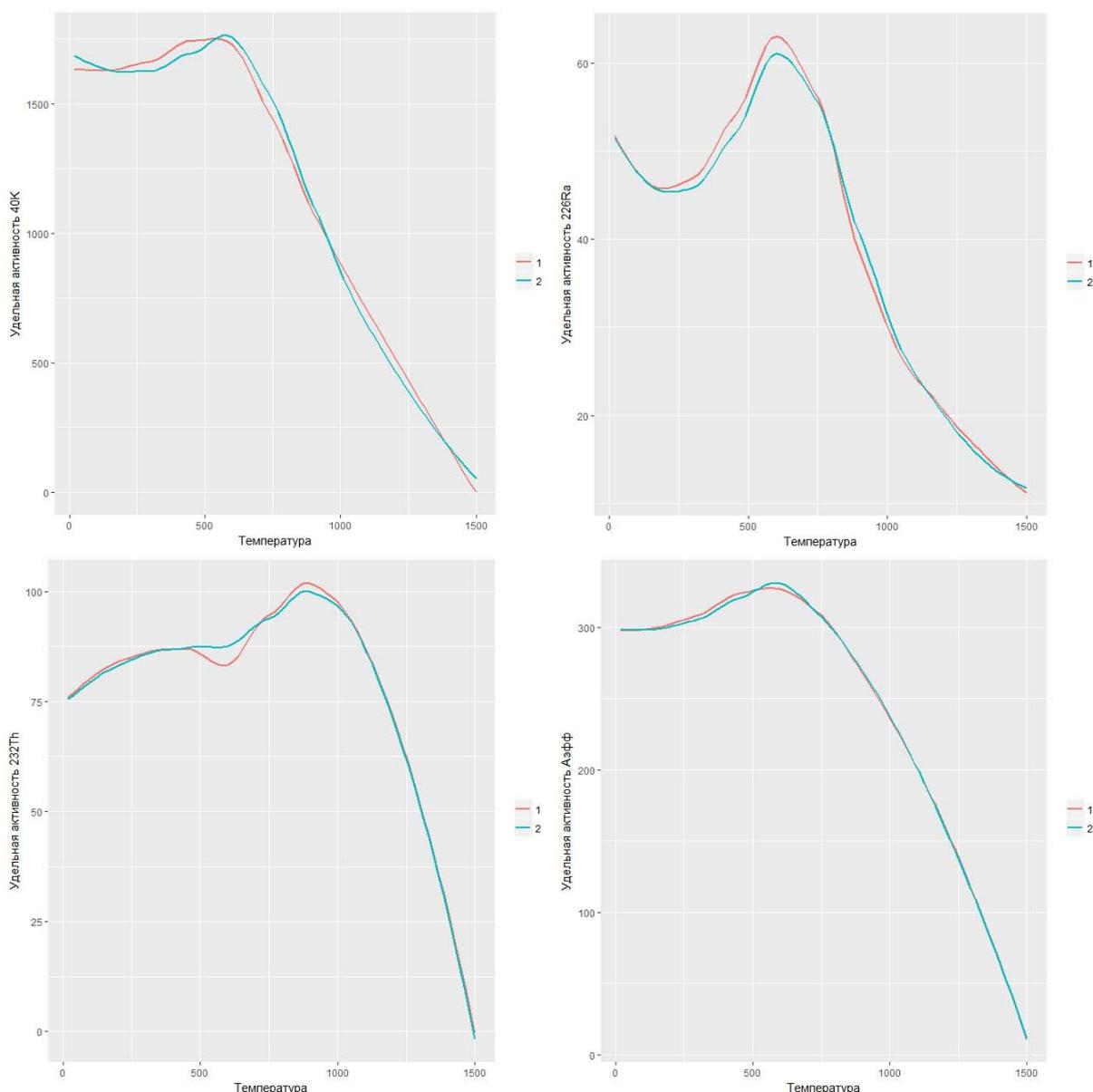


Рис. 3. – Графическое представление связи и зависимости удельных активностей и эффективной удельной активности ЕРН для глины 1: 1 –

кривая экспериментально полученных данных; 2 – кривая уравнения полиномиальной регрессии

Уравнение полиномиальной регрессии для удельной активности ^{40}K представлено формулой (2), при величине достоверной аппроксимации равной $R^2 = 0,9463$:

$$y = -1E - 11x^5 + 6E - 08x^4 - 8E - 05x^3 + 0,0495x^2 - 10,743x + 2064 , \quad (2)$$

для ^{226}Ra формулой (3), величина достоверной аппроксимации составляет $R^2 = 0,7622$:

$$y = -3E - 16x^6 + 7E - 13x^5 + 7E - 10x^4 - 3E - 06x^3 + 0,0021x^2 - 0,5352x + 72,394 , \quad (3)$$

для ^{232}Th формулой (4), при величине достоверной аппроксимации $R^2 = 0,7527$:

$$y = 7E - 16x^6 - 3E - 12x^5 + 3E - 09x^4 - 1E - 06x^3 - 0,0001x^2 + 0,1528x + 69,72 , \quad (4)$$

для $A_{\text{эфф}}$ формула полиномиальной регрессии примет вид (5), а величина достоверной аппроксимации составит $R^2 = 0,8965$:

$$y = 3E - 15x^6 - 1E - 11x^5 + 3E - 08x^4 - 3E - 05x^3 + 0,0118x^2 - 2,0509x + 366,7 . \quad (5)$$

Из приведенных выше формул и величин достоверной аппроксимации видно, что расчетные параметры модели наиболее близки к фактическим данным для ^{40}K и $A_{\text{эфф}}$, более низкие показатели ^{226}Ra и ^{232}Th .

Рассмотрим использование полученных зависимостей на следующем примере. Предположим, что на заводе по производству керамического кирпича обжиг сырца происходит при температуре 900°C . При этой температуре готовый керамический кирпич будет иметь эффективную удельную активность $A_{\text{эфф}} - 296,1$ Бк/кг. Используя полученные уравнения регрессии, рассчитаем, каковым будет этот показатель для температуры обжига – 950°C . В этом случае эффективная удельная активность ЕРН составит $A_{\text{эфф}} - 272,85$ Бк/кг. Следовательно с точки зрения радиационной безопасности увеличение температуры обжига на 50°C приводит к

уменьшению эффективной удельной активности ЕРН на 23,75 Бк/кг, что в свою очередь приведет к уменьшению величины облучения населения которое будет проживать в зданиях возведенных из этого материала [13].

Применение полученных регрессионных моделей на практике позволит рассчитывать удельные активности и эффективную удельную активность ЕРН при различных температурах обжига, а также в случаях, если будут наблюдаться изменения удельных активностей (например, при переходе на разработку следующего пласта сырья). Наряду с регрессионным возможно применение и других видов анализа, например карт Кохонена [14].

Таким образом, из изложенного выше следует, что увеличение температуры обжига глинистого сырья на определенном этапе приводит к уменьшению удельных и эффективной удельной активности ЕРН. Это способствует уменьшению дозы облучения населения. Однако при этом необходимо учитывать, что температуру обжига необходимо контролировать и по возможности уменьшать, снижая тем самым расходы на топливо. Следовательно, одним из перспективных путей направленных на уменьшение дозы облучения будет поиск оптимальной температуры обжига, при которой получение качественной керамической продукции будет сопровождаться наименьшими показателями эффективной удельной активности ЕРН.

Литература

1. Effects of Radiation on the Environment: Report to the General Assembly with Scientific Annex. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR 2000). New York: UN, 2000. 842 p.
2. Соколов П.Э. Радиационные аспекты производства строительных материалов // Форум. 2016. №2 (8). С. 115-120.
3. Соколов П.Э., Дрик В.Ю. Естественная радиоактивность глинистых горных пород применяемых для производства строительных материалов //

Международный научно-исследовательский журнал. 2017. №12(66). Ч.5. С. 148-151.

4. Szabó Z., Völgyesi P, Nagy H., Szabó C., Kis Z., Csorba O. Radioactivity of natural and artificial building materials a comparative study. Journal of Environmental Radioactivity. 2013. №118. pp. 64-74.

5. Соколов П.Э., Чернышев П.Д. Влияние обжига на радиоактивность керамических материалов // Научное обозрение. 2017. №8. С. 34-40.

6. Kovács T., Shahrokhi A., Sas Z., Vigh T., Somlai J. Radon exhalation study of manganese clay residue and usability in brick production. Journal of Environmental Radioactivity. 2017. №168. pp.15-20.

7. Sas Z., Szántó J., Kovács J., Somlai J., Kovács T. Influencing effect of heat-treatment on radon emanation and exhalation characteristic of red mud. Journal of Environmental Radioactivity. 2015. №148. pp. 27-32.

8. Li Y., Lu X., Zhang X. Determination of natural radioactivity, ^{222}Rn and ^{220}Rn exhalation rates and radiation hazards of fly ash and fly ash brick used in Baotou, China. Nuclear Technology and Radiation Protection. 2016. №31(3). pp. 282-290.

9. Стасов В.В., Зорина Л.В., Морозов А.Н. и др. Исследование связи радионуклидного состава почвенных фракций и атмосферных аэрозолей // Инженерный вестник Дона, 2007, №2. URL: ivdon.ru/ru/magazine/archive/n2y2007/29/.

10. Зорина Л.В., Стасов В.В., Бураева Е.А. Оценка техногенной составляющей загрязнения приземного слоя атмосферы свинцом-210 (на примере Юго-Востока г. Ростова-на-Дону) // Инженерный вестник Дона, 2007, №2. URL: ivdon.ru/ru/magazine/archive/n2y2007/18/.

11. Измерение активности гамма-излучающих радионуклидов на сцинтилляционном спектрометре с использованием пакетов программ SM и EXPRESS: Методические рекомендации / ВНИИФТРИ. М. 1993. 31с.

12. Кабаков Р.И. R в действии. Анализ и визуализация данных в программе R. Пер. с англ. М.: ДМК Пресс. 2014. 588с.

13. Ленников М.С., Соколов П.Э. Расчет эффективной эквивалентной дозы облучения населения с применением электронных таблиц // Международная научно-практическая конференция «Научные исследования высшей школы в области строительства и архитектуры». Новосибирск: НИЦ АЭТЕРНА, 2018. С. 87-92.

14. Соколов П.Э. Использование карт Кохонена для оценки радиоактивности строительного сырья // Вестник науки и образования Северо-Запада России. 2017. №1(3). С. 70-78.

References

1. Effects of Radiation on the Environment: Report to the General Assembly with Scientific Annex. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR 2000). New York: UN, 2000. 842 p.

2. Sokolov P.E. Forum. 2016. №2 (8). pp. 115-120.

3. Sokolov P.E., Drik V.Y. Mezhdunarodnyj nauchno-issledovatel'skij zhurnal. 2017. №12(66). С.5. pp. 148-151.

4. Szabó Z., Völgyesi P, Nagy H., Szabó C., Kis Z., Csorba O. Journal of Environmental Radioactivity. 2013. №118. pp. 64-74.

5. Sokolov P.E., Tchernyshov P.D. Nauchnoe obozrenie. 2017. №8. pp. 34-40.

6. Kovács T., Shahrokhi A., Sas Z., Vigh T., Somlai J. Journal of Environmental Radioactivity. 2017. №168. pp.15-20.

7. Sas Z., Szántó J., Kovács J., Somlai J., Kovács T. Journal of Environmental Radioactivity. 2015. №148. pp. 27-32.

8. Li Y., Lu X., Zhang X. Nuclear Technology and Radiation Protection. 2016. №31(3). pp. 282-290.

9. Stasov V.V., Zorina L.V., Morozov A.N. Inženernyj vestnik Dona (Rus), 2007, №2. URL: ivdon.ru/ru/magazine/archive/n2y2007/29/.

10. Zorina L.V., Stasov V.V., Buraeva E.A. Inženernyj vestnik Dona (Rus), 2007, №2. URL: ivdon.ru/ru/magazine/archive/n2y2007/18/.

11. Izmerenie aktivnosti gamma-izluchajushhih radionuklidov na scintil-ljacionnom spektrometre s ispol'zovaniem paketov programm SM i EXPRESS: Metodicheskie rekomendacii [Measurement of activity of gamma-emitting radionuclides in scintil-translational spectrometer using software packages such as SM and EXPRESS: guidelines]. VNIIFTRI. M., 1993. 31 p.

12. Kabakov R.I. R v dejstvii. Analiz i vizualizaciya dannyh v R. [R in action. Data analysis and graphics with R.] M.: DMK Press. 2014. 588p.

13. Lennikov M.C., Sokolov P.E. Mezhdunarodnaya nauchno-prakticheskaya konferenciya «Nauchnye issledovaniya vysshej shkoly v oblasti stroitel'stva i arhitektury». (International scientific and practical conference «Research of higher school in the field of construction and architecture») Novosibirsk: NIZ AETERNA, 2018. pp. 87-92.

14. Sokolov P.E. Ispol'zovanie kart Kohonena dlya ocenki radioaktivnosti stroitel'nogo syr'ya Vestnik nauki i obrazovaniya Severo-Zapada Rossii. 2017. №1(3). pp. 70-78.