

# GAMMA-SPEKTROMETRIA JAKO METODA WERYFIKACJI I ZWIĘKSZENIA DOKŁADNOŚCI DOKUMENTOWANIA PARAMETRÓW RADIOLOGICZNYCH SUROWCÓW MINERALNYCH W ZŁOŻU

## GAMMA SPECTROMETRY AS A TOOL OF VERIFICATION AND REFINEMENT OF RADIOLOGICAL PARAMETERS DOCUMENTATION OF MINERAL RESOURCES IN DEPOSIT

Andrzej Solecki, Kamila Nowak, Wojciech Śliwiński, Dagmara Tchorz-Trzeciakiewicz – Zakład Gospodarki Surowcami Mineralnymi, Instytut Nauk Geologicznych, Uniwersytet Wrocławski

*Porównano gamma-spektrometryczne pomiary aktywności  $^{40}\text{K}$  oraz izotopów z szeregów rozpadu  $^{238}\text{U}$  i  $^{232}\text{Th}$  wykonane spektrometrem RS230 in situ w zakładach eksploatujących złoża surowców mineralnych z wynikami laboratoryjnymi CLOR. Kombinacja tych wyników w formie wskaźników aktywności  $f_1$  i  $f_2$  jest podstawą oceny bezpieczeństwa materiałów budowlanych. Przy pomocy radiometru EKO-D mierzono całkowitą (obejmująca promieniowanie kosmiczne) moc dawki równoważnej promieniowania gamma. Wykazano, że dokładność pomiarów in situ jest porównywalna z wynikami analiz laboratoryjnych i że pomiary całkowitej mocy dawki równoważnej promieniowania gamma wykonywane przy użyciu radiometru EKO-D mogą być w wielu wypadkach wystarczające do oceny bezpieczeństwa materiału budowlanego.*

*In situ gamma spectrometric measurements of  $^{40}\text{K}$ , U and Th series activity performed by means of RS230 radiometer have been compared with standard CLOR laboratory analyzes. Combination of these parameters in form of  $f_1$  and  $f_2$  activity indices is crucial for radiological safety assessment of building material. Total gamma dose rate (including cosmic radiation) has been measured by means of EKO D radiometer. Obtained results indicate that in situ measurements are comparable with laboratory analyzes and total gamma dose rate measured by means of EKO D radiometer can be used for radiation safety estimation.*

### Wstęp

Przeprowadzone badania miały na celu:

- sprawdzenie czy gamma-spektrometryczne pomiary in situ dostarczają wyniki porównywalne ze standardowymi procedurami laboratoryjnymi,
- sprawdzenie radiologicznego efektu grubości warstwy materiału budowlanego wyrażonego jako generowana moc dawki pochłoniętej i obserwowane aktywności izotopów promieniotwórczych,
- sprawdzenie czy pomiary całkowitej mocy dawki promieniowania gamma wykonywane przy użyciu radiometru EKO-D mogą być wystarczające do oceny bezpieczeństwa materiału budowlanego.

### Terminy podstawowe

**Dawka pochłonięta** - energia promieniowania jonizującego pochłonięta przez jednostkową masę materii, której jednostką jest grej (Gy). Moc dawki pochłoniętej w czasie określana jest w nGy/h [12,13].

**Dawka równoważna** [12], równoważnik dawki [13] - dawka pochłonięta w tkance lub narządzie wyznaczona z uwzględnieniem rodzaju i energii promieniowania, której jednostką jest siver (Sv). Moc dawki równoważnej w czasie określana jest w  $\mu\text{Sv h}^{-1}$ . Uwzględnienie rodzaju promieniowania polega na przemnożeniu wartości dawki pochłoniętej przez odpowiedni współczynnik (przykładowo dla promieniowania gamma równy 1, dla promieniowania alfa równy 20 [6]).

**Dawka skuteczna (efektywna)** - suma dawek równoważnych pochodzących od zewnętrznego i wewnętrznego narażenia wyznaczona z uwzględnieniem odpowiednich współczynników

wagowych narządów i tkanek, obrazująca narażenie całego ciała.

**Dawka graniczna** - wartość dawki promieniowania jonizującego, wyrażona jako dawka skuteczna lub równoważna, dla określonych osób, pochodząca od kontrolowanej działalności zawodowej, której - poza przypadkami przewidzianymi w ustawie - nie wolno przekroczyć [12].

### Pomiary promieniowania gamma

Promieniowanie gamma, z powodu swojej przenikliwości jest szczególnie istotne z punktu widzenia ochrony radiologicznej. Pomiary promieniowania gamma mogą być prowadzone dwoma sposobami. Najprostszym i najmniej kosztownym sposobem pomiaru jest rejestracja całkowitej liczby impulsów promieniowania gamma o wszystkich energiach, bez próby ich rozdzielania. Jest to wystarczające do monitorowania mocy zewnętrznej dawki pochłoniętej promieniowania gamma. Bardziej zaawansowane pomiary gamma -spektrometryczne polegają na rejestracji zarówno natężenia jak i energii fotonów gamma, co umożliwia identyfikację źródła promieniowania. Ostatecznie, wyniki pomiaru są przedstawiane w jednostkach koncentracji izotopów promieniotwórczych.

### Najważniejsze izotopy promieniotwórcze w skorupie ziemskiej

Materiały budowlane produkowane są z surowców mineralnych występujących w skorupie ziemskiej. Zawartość izotopów promieniotwórczych w tych surowcach decyduje o radiologicznym bezpieczeństwie materiałów budowlanych.

Tab. 1. Okresy połowicznego rozpadu i czasy osiągnięcia 99% równowagi radionuklidów szeregu promieniotwórczego uranu  $^{238}\text{U}$   
 Tab. 1. Half-life times and 99% equilibrium times of  $^{238}\text{U}$  decay series

Izotop	Okres połowicznego rozpadu	Jednostka	Czas osiągnięcia 99% równowagi	Jednostka
$^{238}\text{U}$	4,468	$10^9$ lat		
$^{234}\text{Th}$	24,1	dni	160,1	dni
$^{234}\text{Pa}$	1,18	min	7,8	min
$^{234}\text{U}$	2,48	$10^5$ lat	1,6	$10^6$ lat
$^{230}\text{Th}$	7,52	$10^4$ lat	5,0	$10^5$ lat
$^{226}\text{Ra}$	1602	lat	1,0	$10^4$ lat
$^{222}\text{Rn}$	3,825	dni	25,4	dni
$^{218}\text{Po}$	3,05	min	20,3	min
$^{214}\text{Pb}$	26,8	min	178,1	min
$^{218}\text{At}$	2	s	13,3	s
$^{214}\text{Bi}$	19,7	min	130,9	min
$^{214}\text{Po}$	1,64	$10^{-4}$ s	10,9	$10^{-4}$ s
$^{210}\text{Tl}$	1,32	min	8,8	min
$^{210}\text{Pb}$	22,3	lat	148,2	lat
$^{210}\text{Bi}$	5,02	dni	33,4	dni
$^{210}\text{Po}$	138,3	dni	918,8	dni
$^{206}\text{Tl}$	4,19	min	27,8	min

### Potas $^{40}\text{K}$

Najbardziej intensywnym źródłem promieniowania gamma w skorupie ziemskiej jest radioaktywny izotop potasu  $^{40}\text{K}$ . Potas  $^{40}\text{K}$  o okresie połowicznego rozpadu  $1,250 \times 10^9$  lat przechodzi w stabilny izotop  $^{40}\text{Ca}$  w wyniku rozpadu beta (88,8%) lub w stabilny izotop  $^{40}\text{Ar}$  poprzez wychwycenie elektronu lub pozytonu (11,2%) z wydzielaniem fotonu gamma o energii 1,46 MeV [1, 6]. Izotop  $^{40}\text{K}$  stanowi stałą (0,012%) domieszkę potasu naturalnego, dzięki czemu może być wykorzystany do oszacowania całkowitej ilości tego pierwiastka. Ze względu na obecność  $^{40}\text{K}$ , aktywność naturalnego potasu wynosi  $31,3 \text{ kBq kg}^{-1}$  [6]. Średnia zawartość potasu w skorupie ziemskiej wynosi 2,6% [9], co odpowiada aktywności  $814 \text{ Bq kg}^{-1}$ , w granicach średnia zawartość potasu dochodzi już do 5% ( $1565 \text{ Bq kg}^{-1}$ ) przede wszystkim na skutek obecności skałenia potasowego ortoklaz (K[AlSi<sub>3</sub>O<sub>8</sub>]). Jeszcze wyższe zawartości potasu (głównie w postaci skałenia) obserwuje się w kwaśnych tufach wulkanicznych i sjenitach alkalicznych. Potas jest kluczowym składnikiem pokarmu zwierząt i roślin. Zawartość potasu w materii roślinnej waha się od 0,5% ( $157 \text{ Bq kg}^{-1}$ ) do 2% ( $626 \text{ Bq kg}^{-1}$ ).

### Izotopy z szeregów rozpadu uranu $^{238}\text{U}$ i toru $^{232}\text{Th}$

Kolejnym znaczącym źródłem naturalnego promieniowania gamma są radioizotopy szeregów promieniotwórczych uranu i toru. Średnia zawartość uranu w litosferze to 2,5 ppm ( $31 \text{ Bq kg}^{-1}$ ), w skorupie ziemskiej 4,8 ppm ( $60 \text{ Bq kg}^{-1}$ ), a w skorupie oceanicznej 0,6 ppm ( $7,4 \text{ Bq kg}^{-1}$ ) [8, 11]. Dwa naturalne izotopy uranu:  $^{238}\text{U}$  i  $^{235}\text{U}$  dają początek szeregom rozpadów, które kończą się stabilnymi izotopem,  $^{206}\text{Pb}$  i  $^{207}\text{Pb}$ . Większe znaczenie dla środowiska ma izotop  $^{238}\text{U}$ , który stanowi 99,27% naturalnego uranu. Okres połowicznego rozpadu  $^{238}\text{U}$  to  $4,46 \times 10^9$  lat. Nie emituje on promieniowania gamma, dlatego też do gamma-spektrometrycznego pomiaru koncentracji uranu  $^{238}\text{U}$  wykorzystywane są fotony gamma bizmutu  $^{214}\text{Bi}$ , jednego z kolejnych produktów rozpadu  $^{238}\text{U}$ . Ta procedura opiera się na założeniu istnienia równowagi w szeregu rozpadu uranu  $^{238}\text{U}$ , co oznacza, że aktywności wszystkich produktów rozpadu, włączając rad  $^{226}\text{Ra}$ , radon  $^{222}\text{Rn}$  i bizmut  $^{214}\text{Bi}$ , są takie same jak aktywność uranu  $^{238}\text{U}$ . Zawartość uranu mierzona w ten sposób często oznaczana jest jako tzw. równoważna zawartość

uranu (eU). Założenie istnienia stanu równowagi nie zawsze jest jednak słuszne. Okres połowicznego rozpadu oraz czasy uzyskiwania 99% równowagi w szeregu rozpadu uranu  $^{238}\text{U}$  podane są w tabeli 1. Równowaga w szeregu rozpadu uranu  $^{238}\text{U}$  może zostać zakłócona przez selektywne ługowanie różnych izotopów, głównie radu  $^{226}\text{Ra}$ . Radon  $^{222}\text{Rn}$  będący gazem szlachetnym może łatwo wydostawać się z układu i koncentrować w nowych miejscach powodując anomalię bizmutu  $^{214}\text{Bi}$  o wysokim promieniowaniu gamma, co może być błędnie zinterpretowane jako koncentracja radu lub nawet uranu. Jak to pokazano w tabeli 1, osiągnięcie stanu równowagi może zająć dni, tygodnie lub nawet miliony lat.

Z punktu widzenia zagrożenia radiologicznego materiałów budowlanych, rad i jego radioaktywne produkty rozpadu (rys. 1) są najważniejszymi elementami w szeregu rozpadu uranu. Izotopy poprzedzające rad  $^{226}\text{Ra}$  nie są silnymi gamma emiterni i nie są na tyle mobilne, aby wnikać do ludzkiego ciała i napromieniować je cząstkami alfa. Dopiero radon,  $^{222}\text{Rn}$ , z okresem



Rys. 1. Szereg rozpadu  $^{238}\text{U}$   
 Fig. 1.  $^{238}\text{U}$  decay series

Tab. 2. Okresy połowicznego rozpadu i czasy osiągnięcia 99% równowagi radionuklidów szeregu promieniotwórczego toru  $^{232}\text{Th}$   
 Tab. 2. Half-life times and 99% equilibrium times of  $^{232}\text{Th}$  decay series

Izotop	Okres połowicznego rozpadu	Jednostka	Czas osiągnięcia 99% równowagi	Jednostka
$^{232}\text{Th}$	1,39	$10^{10}$ lat		
$^{228}\text{Ra}$	5,75	lat	38,2	lat
$^{228}\text{Ac}$	6,13	h	40,7	h
$^{228}\text{Th}$	1,913	lat	12,7	lat
$^{224}\text{Ra}$	3,64	dni	24,2	dni
$^{220}\text{Rn}$	55,6	s	369,4	s
$^{216}\text{Po}$	0,145	s	1,0	s
$^{212}\text{Pb}$	10,64	h	70,7	h
$^{212}\text{Bi}$	60,5	min	402,0	min
$^{212}\text{Po}$	3,04	$10^{-7}$ s	20,2	$10^{-7}$ s
$^{208}\text{Tl}$	3,1	min	20,6	min

połowicznego rozpadu równym 3,8 dnia jest niebezpiecznym gazowym alfa emitery. Zalecenie ICRP (1990) podkreśla, że ważna jest nie tylko dawka od wdychanego radonu, ale przede wszystkim dawka pochodząca od jego wysokoaktywnych produktów rozpadu, tj. izotopów polonu, ołowiu i bizmutu. Podczas inhalacji radioizotopy te ulegają depozycji na powierzchni dróg oddechowych człowieka, a najwyższe dawki pochodzą z napromieniowania alfa nabłonka dróg oddechowych. Najbardziej znaczącym emitery promieniowania gamma w szeregu promieniotwórczym uranu jest bizmut  $^{214}\text{Bi}$ . Jego zastosowanie do gamma spektrometrycznej oceny ryzyka związanego z już wspomnianymi radioizotopami jest uzasadnione przez fakt, że równowaga pomiędzy radem  $^{226}\text{Ra}$ , radonem  $^{222}\text{Rn}$  i bizmutem  $^{214}\text{Bi}$  może być stosunkowo łatwo osiągnięta (tab.1).

Tor jest radioaktywnym metalem o średniej zawartości w skorupie ziemskiej równej 8-12ppm ( $32-49 \text{ Bq kg}^{-1}$ ) [6]. Naturalnie występujący tor składa się niemal wyłącznie z  $^{232}\text{Th}$ . Niewielkie ilości toru  $^{230}\text{Th}$  pochodzą z szeregu rozpadu promieniotwórczego uranu  $^{238}\text{U}$ . Tor  $^{232}\text{Th}$ , którego okres połowicznego rozpadu wynosi  $1,39 \times 10^{10}$  lat, daje początek szeregowi rozpadów, który zakończony jest stabilnym izo-

topem ołowiu  $^{208}\text{Pb}$ . Okresy połowicznego rozpadu i czasy uzyskiwania 99% równowagi w szeregu promieniotwórczym toru  $^{232}\text{Th}$  są podane w tabeli 2. Większość izotopów szeregu promieniotwórczego toru  $^{232}\text{Th}$  to alfa emitery, które są nieszkodliwe dopóki zamknięte są w materiałach budowlanych. Migracja jedyne go gazowego izotopu, radonu  $^{220}\text{Rn}$  (toronu), jest zazwyczaj pomijana w ocenie ryzyka radiologicznego z powodu jego krótkiego okresu połowicznego rozpadu 55,6 s. Tor  $^{232}\text{Th}$  nie emituje promieniowania gamma, dlatego też do gamma-spektrometrycznego oszacowania zawartości toru wykorzystywane są fotony gamma talu  $^{208}\text{Tl}$ , będącego produktem rozpadu toru. Zawartość toru mierzona w ten sposób często określana jest mianem równoważnej zawartości toru (eTh). Ze względu na stosunkowo krótki okres półtrwania produktów jego rozpadu (rys.2, tab. 2) tor szybko osiąga stan równowagi w przyrodzie [6].

### Radioaktywność materiałów budowlanych

Materiały budowlane produkowane z surowców mineralnych zawierają radioaktywny izotop potasu  $^{40}\text{K}$  i radioaktywne izotopy szeregu rozpadów toru  $^{232}\text{Th}$  oraz uranu  $^{238}\text{U}$ . W szeregu rozpadów uranu  $^{238}\text{U}$ , rad  $^{226}\text{Ra}$  i produkty jego rozpadu mają największe znaczenie dla środowiska, dlatego też zalecenia często odnoszą się do radu  $^{226}\text{Ra}$  zamiast do uranu  $^{238}\text{U}$ . Radioaktywne izotopy zawarte wewnątrz materiałów budowlanych są odpowiedzialne za dawkę równoważną zewnętrzną powodowaną przez przenikliwe promieniowanie gamma. Promieniowanie alfa izotopów pozostających wewnątrz materiałów budowlanych nie jest w stanie dotrzeć do organizmu człowieka, gdyż jego zasięg w powietrzu nie przekracza 0,1 m. Rozpad radu  $^{226}\text{Ra}$  i wydzielanie radonu z materiałów budowlanych może doprowadzić do nagromadzenia radonu w powietrzu wewnątrz pomieszczeń. Wdychany gazowy radon przemieszcza się w obrębie organizmu i jest źródłem wewnętrznej dawki równoważnej obejmującej także promieniowania alfa. Wdychane z powietrzem produkty rozpadu radonu pozostają w drogach oddechowych. Produkty te mogą powstawać również w dowolnej tkance, do której przeniknął migrujący radon.

### Dawka równoważna zewnętrzna

W celu ograniczenia narażenia ludzi na promieniowanie zewnętrzne wprowadzono limity zawartości naturalnych ra-



Rys. 2. Szereg rozpadu  $^{232}\text{Th}$   
 Fig. 2.  $^{232}\text{Th}$  decay series

dionuklidów w materiałach budowlanych. Limity te oparte są na założeniu, że dodatkowa roczna dawka równoważna pochodząca od zewnętrznych źródeł narażenia nie powinna przekraczać wartości od 0,8 mSv do 2 mSv w zależności od kraju [3]. Komisja Europejska [5] zaleca aby dodatkowa roczna dawka promieniowania ze źródeł zewnętrznych zawierała się w granicach od 0,3 mSv do 1 mSv.

Aby móc zastosować wytyczne dotyczące dodatkowej zewnętrznej rocznej dawki równoważnej wprowadzono wskaźnik aktywności promieniotwórczej materiałów budowlanych [2,3,7,10]. Ogólny wzór na wyznaczenie owego wskaźnika jest następujący:

$$I = A_1 C_{Ra} + A_2 C_{Th} + A_3 C_K \quad (1)$$

gdzie:

$A_1$ ,  $A_2$  i  $A_3$  to współczynniki odzwierciedlające udział oddziaływania uranu, toru i potasu. Wielkości tych współczynników różnią się w zależności od kraju. Ich zestawienie znajduje się w tabeli 3.

$C_{Ra}$ ,  $C_{Th}$  i  $C_K$  to zawartości uranu, toru i potasu w analizowanym materiale budowlanym.

W większości krajów stosuje się jedną graniczną wartość wskaźnika  $I$  bez względu na sposób i ilość użytego materiału budowlanego. Jednak zgodnie z zaleceniami Komisji Europejskiej [5] przy wyznaczaniu wartości granicznej wskaźnika aktywności promieniotwórczej powinno się brać pod uwagę to, czy dany materiał budowlany jest podstawowym budulcem wypełniającym ścianę, czy jedynie elementem dekoracyjnym o niewielkiej miąższości. Dlatego też w przypadku materiałów użytych w dużych ilościach wskaźnik  $I$  powinien być mniejszy bądź równy 1 Bq/kg, a w przypadku materiałów użytych w formie cienkich okładzin wskaźnik ten może być mniejszy bądź równy 6 [5]. W inny sposób problem ten został rozwiązany przez władze Tajwanu [3], gdzie od razu przy wyznaczaniu wskaźnika aktywności promieniotwórczej bierze się pod uwagę sumę wyliczoną jako udział warstw materiałów o różnej grubości i zawartości radioizotopów.

Zgodnie z polskimi przepisami [10] wskaźnik ten określany jako  $f_1$  nie może przekraczać o więcej niż 20% wartości 1 Bq kg<sup>-1</sup> w przypadku surowców i materiałów budowlanych stosowanych w budynkach przeznaczonych na pobyt ludzi lub inwentarza.

Ponadto należy pamiętać, iż w przypadku materiałów budowlanych użytych zarówno w formie grubych warstw jak i cienkich okładzin istnieją zagrożenie radiacyjne związane z dawką równoważną pochodzącą od wewnętrznego narażenia

związaną z uwalnianiem radonu do atmosfery pomieszczeń. Proces ten w przypadku materiału o niskiej porowatości obejmuje zazwyczaj stosunkowo cienką, powierzchniową warstwę materiału budowlanego.

### Dawka równoważna wewnętrzna

Dawka ta zgodnie z zaleceniami ICRP [4] nie powinna być większa od 20 mSv a<sup>-1</sup>, a w nowo wybudowanych budynkach większa od 10 mSv a<sup>-1</sup>. Wielkość tej dawki związana jest z obecnością radonu w powietrzu wewnątrz budynków. Zgodnie z tym dokumentem, jeżeli dodatkowa dawka promieniowania nie powinna być wyższa od 20 mSv a<sup>-1</sup> to stężenie radonu w nie może przekraczać 400 Bq m<sup>-3</sup> (w przypadku nowo wybudowanych budynków wartości te wynoszą odpowiednio 10 mSv a<sup>-1</sup> i 200 Bq m<sup>-3</sup>).

Stężenie radonu wewnątrz budynków zależne jest od wielkości ekshalacji tego gazu z podłoża, wielkości ekshalacji z materiałów budowlanych oraz stopnia wentylacji budynku. Na wielkość ekshalacji z materiałów budowlanych ma decydujący wpływ aktywność radu w materiale budowlanym i efektywność migracji radonu do atmosfery pomieszczeń. Mimo, że migracja radonu może być silnie zróżnicowana w zależności od porowatości materiału i sposobu występowania radu <sup>226</sup>Ra, to w Polsce [10] jedynym wskaźnikiem brany pod uwagę jest wskaźnik aktywności <sup>226</sup>Ra w materiale budowlanym. Jest to tzw. wskaźnik  $f_2$ , który nie może przekraczać o więcej niż 20% wartości 200 Bq kg<sup>-1</sup> w przypadku surowców i materiałów budowlanych stosowanych w budynkach przeznaczonych na pobyt ludzi lub inwentarza żywego.

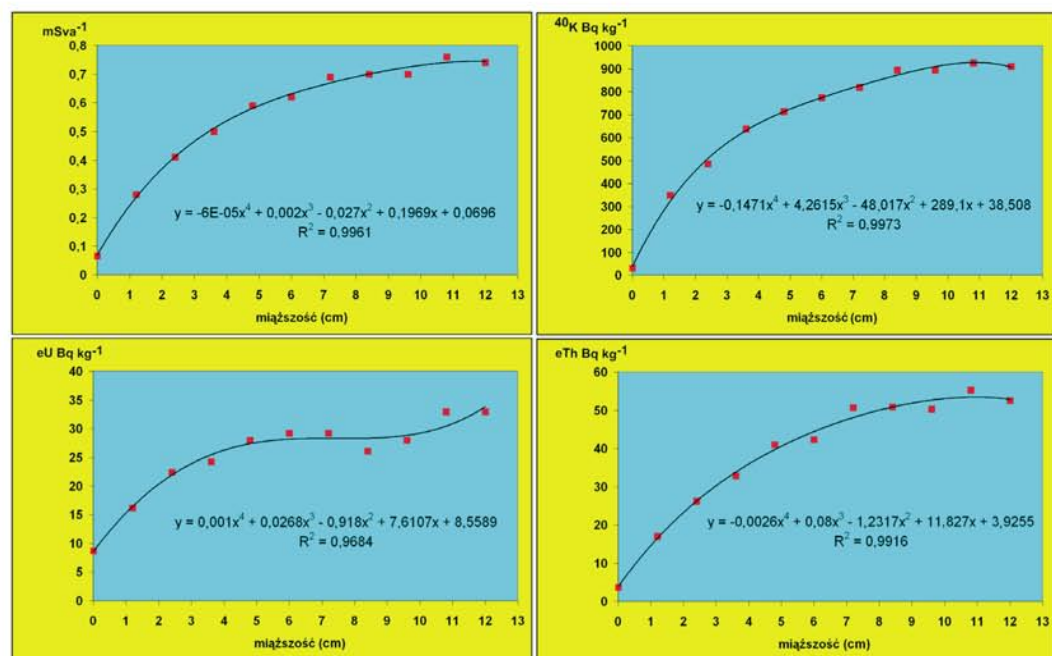
Trzeba zaznaczyć, że dla stężenia <sup>226</sup>Ra na poziomie 200 Bq kg<sup>-1</sup> wartość wskaźnika aktywności  $f_1$  będzie równa 0,7 Bq kg<sup>-1</sup>. Bardzo mało prawdopodobna jest sytuacja kiedy rad <sup>226</sup>Ra byłby jedynym izotopem promieniotwórczym w materiale budowlanych, zazwyczaj współwystępują z nim izotopy z szeregu <sup>232</sup>Th oraz <sup>40</sup>K, które mają znaczący, dodatkowy wpływ na wartość wskaźnika aktywności  $f_1$ . Dlatego też, kiedy wielkość wskaźnika aktywności  $f_1$  (będącego sumą ważoną aktywności radu <sup>226</sup>Ra, toru <sup>232</sup>Th oraz potasu <sup>40</sup>K) będzie poniżej granicznej wartości  $I$  to mało prawdopodobne jest to, że aktywność samego radu <sup>226</sup>Ra będzie wyższa od 200 Bq kg<sup>-1</sup> (granicznej wartości wskaźnika aktywności  $f_2$ ).

Należy podkreślić, że zgodnie z opinią Komisji Europejskiej [5] wyznaczanie wskaźnika aktywności promieniotwórczej materiałów budowlanych powinno być traktowane jedynie jako narzędzie pomocnicze, które nie może jednoznacznie wykluczać materiałów budowlanych z użycia. Przy określaniu przydatności materiałów budowlanych powinno

Tab. 3. Współczynniki  $A_1$ ,  $A_2$ ,  $A_3$  stosowane w różnych państwach

Tab. 3.  $A_1$ ,  $A_2$ ,  $A_3$  coefficients used in different countries

Państwo	$A_1$	$A_2$	$A_3$
ROSJA	1/370	1/260	1/4810
W NIEMCY [2] 1,5 mSv	1/370	1/260	1/4810
POLSKA	1/370	1/233	1/3700
SZWECJA	1/999	1/703	1/9990
CHINY	1/350	1/260	1/4000
AUSTRIA	1/740 (1+0,1ESD)	1/520	1/9620
KOMISJA EUROPEJSKA 1999	1/300	1/200	1/3000



Rys. 3. Moc dawki pochłoniętej i obserwowana aktywność <sup>40</sup>K, U, Th dla wzrastającej miąższości warstwy granitu  
Fig. 3. Gamma dose and apparent <sup>40</sup>K, U and Th activity concentration for increasing thickness of granite source

się brać pod uwagę to, jaką dodatkową dawkę promieniowania dostarczałoby ich użycie. Materiały budowlane, których użycie generuje dodatkową dawkę promieniowania poniżej 0,3 mSv a<sup>-1</sup> nie powinny być obejmowane żadnymi ograniczeniami w zastosowaniu.

## Metodyka

Pomiary gamma spektrometryczne wykonywano przy pomocy dwóch gamma spektrometrów przenośnych RS230 z detektorem BGO (germanian berylu) o objętości 103 cm<sup>3</sup> i autostabilizacji opartej o pik talu <sup>208</sup>Tl 2615 keV. Zakres zliczanych kwantów obejmował przedział od 30 keV do 3000 keV. W trybie Assay Mode wyniki podawane były jako: %K, ppm U i Th w oparciu o analizę fotonów gamma zliczanych w oknach związanych z pikami 1461 keV (<sup>40</sup>K), 1765 keV (<sup>214</sup>Bi) i 2615 keV (<sup>208</sup>Tl).

Całkowita (obejmująca promieniowanie kosmiczne) moc dawki skutecznej promieniowania gamma mierzona była przy pomocy kieszonkowego Radiometru Cyfrowego typu EKO-D wyposażonego w licznik Geigera-Müllera o zakresie energetycznym pomiaru promieniowania od 50 keV do 1,5 MeV.

Zakres pomiarowy mocy dawki tego sprzętu obejmuje przedział od 0,01 μSv h<sup>-1</sup> do 999,9 μSv h<sup>-1</sup> ± 20% (± 1 cyfra).

Badania prowadzone były w kamieniołomach, żwirowniach i piaskowniach. Pomiary wykonywane były na płaskich powierzchniach wyrobisk i stoków hałd usypanych z wydobytego materiału. Ponadto każdorazowo pobierano próbę materiału skalnego do analizy zawartości radu, toru i potasu w certyfikowanym laboratorium. Pomiary laboratoryjne wykonywane były w Centralnym Laboratorium Ochrony Radiologicznej w sposób zgodny ze standardami opisanymi w Rozporządzeniu RM z dnia 2 stycznia 2007.

Pomiary na płytkach granitu yellow tiger ułożonych w formie kwadratu 1m na 1m zostały wykonane równocześnie przy użyciu dwóch przenośnych spektrometrów gamma RS320. Wyniki uzyskane z tych dwóch urządzeń zostały uśrednione i przedstawione na rysunku 3. Aby obniżyć wpływ otoczenia badania wykonano na drewnianym pomoście na rzece Odrze. Wykonano pomiary tła, które na prezentowanych wykresach (rys. 3) odpowiadają miąższości 0. Kolejne pomiary wykonano dla nakładanych dziesięciu warstw płytek o grubości 1,2 cm, tak że końcowa grubość utworzonej płyty wyniosła 12 cm. Po ułożeniu każdej dodatkowej warstwy wykonywano pomiary.

Tab. 4. Porównanie wyników klasycznych analiz wykonanych w CLOR z wynikami pomiarów *in situ*  
Tab. 4. Comparison of standard CLOR analyzes with *in situ* measurements

	K (Bq kg <sup>-1</sup> )		eU (Bq kg <sup>-1</sup> )		eTh (Bq kg <sup>-1</sup> )		Fl (Bq kg <sup>-1</sup> )	
	CLOR	<i>in situ</i>	CLOR	<i>in situ</i>	CLOR	<i>in situ</i>	CLOR	<i>in situ</i>
Strzeblów, granit	1043,0	1183,3	55,5	65,9	74,0	91,9	0,9	1,1
Sobótka, granit	928,0	1001,2	34,7	37,3	49,4	52,1	0,7	0,7
Mikoszów, granit	851,0	1081,1	37,1	52,4	98,6	98,3	0,9	1,0
Dębno, żwir	431,0	479,4	14,3	20,1	19,2	24,8	0,3	0,4
Piława, amfibolit	427,0	453,3	26,1	37,8	17,4	21,9	0,3	0,4
Barwałd, piaskowiec	426,0	447,5	18,6	23,6	19,8	23,1	0,3	0,3
Romanowo, wapień krystaliczny	30,7	59,2	3,3	11,9	0,0	3,8	0,0	0,1
Osiecznica, piasek szklarski	11,2	28,2	2,4	11,2	3,8	6,9	0,0	0,1
Nasławice, serpentynit	4,9	18,2	1,8	10,9	0,0	3,3	0,0	0,1

## Wyniki

Zestawienie wyników otrzymanych z badań terenowych i laboratoryjnych znajduje się w tabeli 4. Oprócz zawartości radu, toru i potasu podano tam wyliczone wartości wskaźników aktywności  $f_1$ , które wahają się w granicach od 0,1 do 1,1. W celu porównania wyników pomiarów terenowych i laboratoryjnych sporządzono wykresy (rys. 4.) i obliczono współczynniki korelacji Pearsona (tab. 5). W przypadku zawartości toru i potasu zaobserwowano bardzo silną korelację – współczynnik korelacji Pearsona = 0,99; w przypadku toru współczynnik regresji prawie równy 1 (1,03). Nieznacznie słabszą korelację – współczynnik korelacji równy 0,98 wyliczono dla uranu. Należy tu zauważyć, że linia regresji jest w tym przypadku przesunięta i przecina oś  $y$  w miejscu o wartości  $7,7 \text{ Bq kg}^{-1}$ . Przesunięcie to może wynikać z wpływu atmosferycznego bizmutu  $^{214}\text{Bi}$  na pomiary wykonywane przy użyciu spektrometru gamma. Wartość  $7,7 \text{ Bq kg}^{-1}$ , odpowiada stężeniu radonu w atmosferze na poziomie  $6 \text{ Bq m}^{-3}$ .

Bardzo silną korelację (1,0) otrzymano dla współczynnika  $f_1$ , co potwierdza przydatność zastosowania terenowych pomiarów gamma-spektrometrycznych w celu określenia bezpieczeństwa radiologicznego materiałów budowlanych.

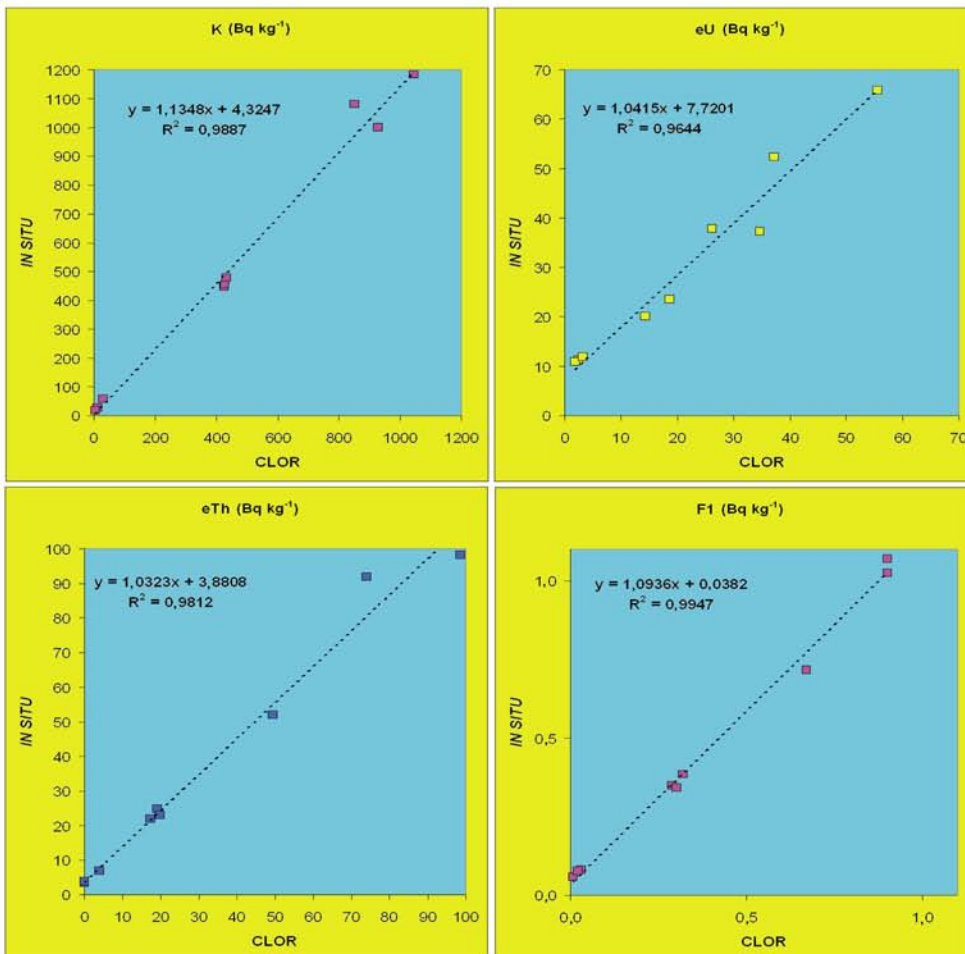
Wyniki badań, które wykonywano na płytkach granitu yellow tiger przedstawiono na wykresach (rys. 3).

Analizując moc dawki promieniowania gamma można zauważyć, iż jej wielkość dla jednej warstwy płytek granitowych o miąższości 1,2 cm stanowiła 38% wartości wyniku

uzyskanego dla 10 warstw. Taką samą zależność otrzymano w przypadku  $^{40}\text{K}$ . Największa różnica w pomiarach była widoczna w przypadku eTh. Wynik uzyskany dla jednej warstwy stanowił 0,32 % wyniku otrzymanego dla 10 warstw płytek o łącznej grubości 12 cm. Najmniejszą różnicę w pomiarach uzyskano w przypadku eU, gdzie wynik pomiarów dla jednej warstwy płytek granitowych były jedynie o około połowę (49%) niższy od tego uzyskanych dla 10 warstw. Należy tu również zauważyć że linia regresji w przypadku eU (rys. 4) przecina się z osią  $y$  na poziomie  $8,6 \text{ Bq kg}^{-1}$ . Przesunięcie to, jak i niewielka różnica w pomiarach, może wynikać z obecności związanego z radonem bizmutu  $^{214}\text{Bi}$  w atmosferze.

Porównanie mocy dawki promieniowania gamma wyznaczanej przy użyciu radiometru EKO-D z wartościami współczynników  $f_1$  wyznaczonymi na podstawie wyników pomiarów gamma spektrometrycznych w terenie zestawiono na wykresie (rys. 5).

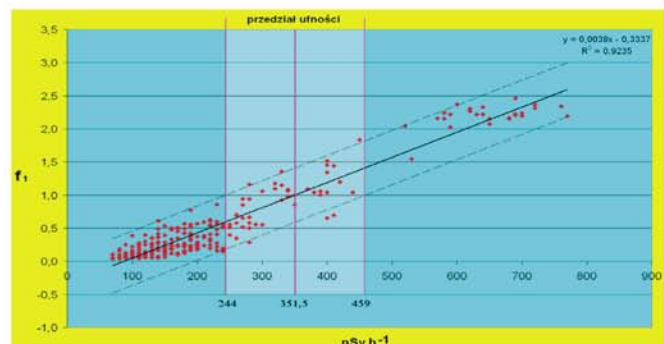
Analizując rozkład wyników można zauważyć, że dawka promieniowania gamma o wartości  $351,5 \text{ nSv h}^{-1}$  odpowiada współczynnikowi  $f_1$  o wartości 1. Biorąc pod uwagę 99% próg zaufania, to wartości dawki promieniowania gamma będą się zawierały w przedziale od 244 do  $459 \text{ nSv h}^{-1}$ . Ponadto można zauważyć przesunięcie krzywej w taki sposób, że przecina się ona z osią  $x$  w miejscu o wartości  $88 \text{ nSv h}^{-1}$ . Przesunięcie to może wynikać z tego, że na wyniki mocy dawki promieniowania gamma otrzymywane przy użyciu radiometru mają wpływ zarówno promieniowanie kosmiczne, jak i zawartość



Rys. 4. Porównanie wyników analiz CLOR z pomiarami *in situ*  
 Fig. 4. Comparison of standard CLOR analyzes with *in situ* measurements

Tab. 5. Współczynnik korelacji Pearsona pomiędzy pomiarami *in situ* i laboratoryjnymiTab. 5. Pearson correlation coefficients of *in situ* and CLOR results

	R <sup>2</sup>	R
K	0,9887	0,99
eU	0,9644	0,98
eTh	0,9812	0,99
F1	0,9947	1,00

Rys. 5. Porównanie całkowitej dawki równoważnej mierzonej przy użyciu radiometru EKO-D z wartością wskaźnika  $f_1$  uzyskanego w wyniku gamma-spektrometrycznych pomiarów *in situ*.Fig. 5. Comparison of total gamma dose measured by EKO-D radiometer with  $f_1$  index value obtained by means of *in situ* gamma spectrometry

$^{214}\text{Bi}$  w atmosferze. Nie zmienia to jednak faktu, że jeżeli pomiary wykonane radiometrem EKO-D są mniejsze od  $244 \text{ nSv h}^{-1}$ , to wartość współczynnika  $f_1$  z 99% pewnością będzie mniejsza od 1, a jeżeli odczytane wyniki są większe od  $459 \text{ nSv h}^{-1}$  to z 99% pewnością wartość współczynnika  $f_1$  będzie większa od 1.

## Literatura

- [1] Audi G., Bersillon O., Blachot J., Wapstra A.H., Georges, 2003, *The NUBASE Evaluation of Nuclear and Decay Properties*. Nuclear Physics A (Atomic Mass Data Center) 729, 3–128
- [2] Beretka J., Mathew P.J., 1985, *Natural radioactivity of Australian building materials, industrial wastes and byproducts*. Health Phys. 48, 87-95
- [3] Ching-Jiang Chen, Yu-Ming Lin, 1996, *Assessment of building materials for compliance with regulations of ROC*. Environment International, Vol. 22, Suppl. 1, S221-S226
- [4] *Commission Recommendation of 21 February 1990 on the protection of the public against indoor exposure to radon*. Annals of the ICRP, 1990
- [5] European Commission 1999, *Radiation protection 112 Radiological Protection Principles concerning the Natural Radioactivity of Building Materials*. Directorate-General Environment, Nuclear Safety and Civil Protection, 1-16
- [6] IAEA, 2003, *Guidelines for radioelement mapping using gamma ray spectrometry data* IAEA-TECDOC-1363
- [7] OECD/NEA, 1979, *Exposure to radiation from the natural radioactivity in building materials*. Report by an NEA Group of Experts. Paris OECD-NEA
- [8] Perelman A.J., 1971, *Geochemia krajobrazu*, PWN, pp. 433
- [9] Prudhomme M., Krukowski S.T., 2006, „Potash”. *Industrial minerals & rocks: commodities, markets, and uses*. Society for Mining, Metallurgy and Exploration, 723–740
- [10] Rozporządzenie RM z dnia 2 stycznia 2007 w sprawie wymagań dotyczących zawartości naturalnych izotopów promieniotwórczych potasu K-40, radu Ra-226 i toru-228 w surowcach i materiałach stosowanych w budynkach
- [11] Thomas D.M., Cuff K.E., Cox M.E., 1986, *The association between ground gas radon variation and geological activity in Hawaii*. Journ. of Geophys. Res., Vol.91, No B12, p. 12, 186-12, 198
- [12] <http://www.paa.gov.pl/?frame=15.1>
- [13] <http://www.srodowiskowa.pl/index.php?m=7&id=169>

Artykuł recenzowała dr Joanna Specylak-Skrzypecka  
Rękopis otrzymano 27.09.2011 r. \* 2221

## Wnioski

- Przeprowadzone badania pozwoliły stwierdzić, że:
- gamma-spektrometryczne pomiary *in situ* dostarczają wyników bardzo zbliżonych do wyników uzyskanych zgodnie ze standardowymi procedurami laboratoryjnymi CLOR. Ich niski koszt i krótki (rzędu 3 minut) czas wykonania umożliwiają znacznie bardziej wiarygodne rozpoznanie parametrów radiologicznych niż dotychczas stosowane procedury polegające na badaniu próbek produktów wysłanych do laboratoriów,
  - gamma-spektrometryczne pomiary *in situ* mogą być wykorzystane do rozpoznania stopnia zmienności parametrów radiologicznych w złożu, decydujących o bezpieczeństwie produktu,
  - cienkie warstwy materiałów generują znacząco mniejszą dawkę promieniowania, więc uzasadnionym wydaje się rozważenie dopuszczenia znaczącego przekroczenia wskaźnika  $f_1$  w ich przypadku,
  - pomiar mocy dawki promieniowania gamma możliwy do wykonania przy pomocy niedrogiego i prostego w obsłudze radiometru umożliwia w wielu wypadkach wystarczająco dokładną oceną wartości wskaźnika  $f_1$ .

*Badania były finansowane przez Europejski Funduszu Rozwoju Regionalnego w ramach Programu Operacyjnego Innowacyjna Gospodarka Priorytet 1 - Badania i rozwój nowoczesnych technologii, Poddziałanie 1.3.1 - Projekty Rozwojowe Strategie i scenariusze technologiczne zagospodarowania i wykorzystania złóż surowców skalnych.*