

УДК 658.562.4:620.267

<https://doi.org/10.5281/zenodo.7263924>

Радіаційні властивості відходів виробництва

Е.Б. Хоботова¹, І.В. Грайворонська², Н.Г. Гончарова³, Г.А. Ляшенко⁴^{1, 2, 3} Харківський національний автомобільно-дорожній університет (м. Харків, Україна)⁴ Харківський національний технічний університет сільського господарства
імені Петра Василенка, (м. Харків, Україна)email: ¹ elinahobotova@gmail.com; ² inna_gra@ukr.net;³ chemistry@khadi.kharkov.ua; ⁴ lyashgen@gmail.com

Проблема отримання екологічно безпечних матеріалів особливо важлива при використанні відходів, які концентрують в собі природні радіонукліди (ПРН), які становлять небезпеку для здоров'я людини і навколишнього середовища. До подібних концентраторів ПРН відносяться відходи вуглевидобувної і теплоенергетичної галузі. Метою роботи було визначення радіонуклідного складу фракцій відходів вуглевидобутку і паливних золошлаків і їх відповідність нормам радіаційної безпеки України і міжнародним радіологічними показниками. У складі паливних золошлаків і відвальних порід вуглевидобутку виявлені ПРН: ²²⁶Ra, ²³²Th та ⁴⁰K. Вміст радіонуклідів варіює за фракціями відходів. Основний внесок у величину ефективної питомої активності C_{ef} відходів вносять ²²⁶Ra та ²³²Th. Найбільший розкид питомих активностей за фракціями паливних золошлаків і горілих порід вуглевидобутку характерний для ²²⁶Ra. Всі досліджені відходи відносяться до I класу радіаційної небезпеки ($C_{\text{ef}} < 370$ Бк/кг) і можуть використовуватися в будівництві без обмежень. Згідно з міжнародними радіологічними показниками перевищено значення індексу використання активності практично для всіх досліджених відходів. Гамма-випромінювання горілої породи шахти «Ольховатська» (фракція <0,63 мм) перевищує рекомендовані межі за величиною індексу внутрішньої небезпеки і гамма-індексу. Величини еквівалентної активності ²²⁶Ra і альфа-індексу свідчать, що досліджені золошлаки і відвальні породи не становлять небезпеки підвищеної еманацияї радону і дочірніх продуктів його розпаду у повітря приміщення. Концентрація радону, що надходить у повітря приміщення, не перевищує 200 Бк/м³. Потужність поглиненої дози на відкритому повітрі для досліджених відходів і річна ефективна еквівалентна доза вище середньосвітових значень, відповідно: 58 нГр/год. та 0,07 мЗв, але нижче значення, рекомендованого МАГАТЕ для населення, 1 м³/рік. Надлишковий довільний канцерогенний ризик вище середньосвітового значення $0,29 \cdot 10^{-3}$, але нижче межі 0,05, встановленої МКРЗ.

Ключові слова: радіонукліди, паливні шлаки, відходи вуглевидобутку, ефективна питома активність, клас радіаційної небезпеки, індекси радіаційної небезпеки, дози радіації

Вступ. Утилізація промислових відходів, що мають ресурсну цінність, може привнести забруднення в одержуваний продукт і негативно впливати на організм робітників, що беруть участь в технологічному процесі. Проблема отримання екологічно безпечних матеріалів особливо важлива при використанні відходів, які концентрують в собі природні радіонукліди (ПРН), які становлять небезпеку для здоров'я людини і навколишнього середовища. До подібних концентраторів ПРН відносяться відходи вуглевидобувної і теплоенергетичної галузі.

Визначення проблеми. Радіоекологічний моніторинг сировини і промислових відходів актуальний на сучасному етапі. Виявлення чинників, що визначають вміст ПРН (²³⁸U, ²²⁶Ra, ²³²Th і ⁴⁰K) в сировині, їх поведінку в процесі технологічної переробки, дозволить прогнозувати їх вміст в кінцевому матеріалі, внести корективи і уникнути додаткового опромінення населення. Необхідний

систематичний радіологічний моніторинг вугілля і продуктів його згоряння. Згідно даних НКДАР [1] середні питомі активності ПРН у вугіллі складають, Бк/кг: ²³⁸U – 37, ²²⁶Ra – 35, ²³²Th – 30, ⁴⁰K – 400. Відносно високий вміст ПРН зафіксовано на деяких вугільних родовищах США, Китаю, Росії та Сербії [2]. У нігерійському вугіллі середні питомі активності склали, Бк/кг: ²²⁶Ra – 8,2, ²³²Th – 7, ⁴⁰K – 27,4 при середніх значеннях еквівалентної активності радію Ra_{eq} 20,26 Бк/кг та індексів зовнішньої небезпеки I_{ex} 0,05, внутрішньої небезпеки I_{in} 0,08 і гамма-індексу 0,14 [3]. Авторами з Китаю [4] визначено середні питомі активності ²³⁸U, ²³²Th, ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²¹⁰Po і ⁴⁰K, Бк/кг: 46,6; 87; 38,8; 42,6; 23,8 і 540 для вугілля; 85,8; 139; 72; 122; 78,5 і 758 для летючої золи; 93,2; 144; 76,3; 636; 386 і 747 для твердих частинок димових газів. ПРН у вугільній товщі пов'язані як з неорганічними (глинисті, різні осадові породи), так і з органічними речовинами. Th зв'язується з цирконом

ZrSiO₄. На підставі аналізу розподілу природного гамма-випромінювання вугілля і покривельних порід 7 вугільних шахт Китаю розроблено принцип розпізнавання вугільних розривів з використанням методу природного гамма-випромінювання [5].

Цікаві результати вивчення радіоактивності відходів вуглевидобутку [6-8]. Радіоактивність відвальних порід шахт Донбасу перевищує фонові значення, варіювання інтенсивності гамма-випромінювання на відвалах 11-25 мкР/год. У слабометаморфізованих породах типових для Донбасу присутні ізотопи ⁴⁰K та ²²⁶Ra [8]. Видувається вітром пил з поверхні відвалів може містити ПРН, які інгаляційно потрапляють в організм людини і виробляють внутрішнє опромінення. Виміряні середні питомі активності ПРН в пилу териконів Південної Африки рівні, Бк/кг: ²²⁶Ra – 53,6, ²³⁸U – 15,2, ²³²Th – 6,6, ⁴⁰K – 278,5 [9]. У відвалах навколо вугільного розриву Майганга північно-східної Нігерії середні питомі активності склали, Бк/кг: ²²⁶Ra – 11,90, ²³²Th – 17,7, ⁴⁰K – 70,4 [10]. При таких величинах активності відходи не обумовлюють радіологічного ризику і можуть утилізуватися в інших галузях. За величинам індексів радіаційної, зовнішньої, внутрішньої небезпеки і потужності поглиненої дози обґрунтована придатність гірських порід і відкладень вугільних шахт Сілезії в якості будівельних матеріалів [11]. Небезпека еманції радону виникає при значеннях коефіцієнта концентрування ПРН 2-10 в порівнянні з вугіллям [12]. Відсутність нормативних документів призводить до значних труднощів при організації систем контролю вмісту ПРН у вугіллі. Впровадження систем радіаційного контролю вугілля на стадії розробки родовищ дозволить мінімізувати потрапляння ПРН в паливний цикл [13].

При згорянні органічної частини кам'яного вугілля ПРН концентруються в продуктах згоряння – відходах ТЕС: золах, шлаках, летючій золі, що викидається в атмосферу. Актуально створення ефективної системи контролю якості вугілля з урахуванням радіаційно-гігієнічного фактора і забезпечення захисту навколишнього середовища і здоров'я населення [14]. Максимальна концентрація ПРН реєструється для летючої золи, активність ПРН уранового ряду в летючій золі 1442-12641 Бк/кг по зрівнянню з вугіллям 813-2609 Бк/кг [15]. У ґрунті поблизу ТЕС, на який осідає летюча зола, виявлені ПРН ²²⁶Ra, ²³²Th, ⁴⁰K, ²³⁵U, ²³⁸U і ¹³⁷Cs [16]. Радіонуклідний склад золошлаків корелює з їх хімічним складом, тому необхідно визначення елементного і мінерального складу відходів теплоенергетики [17]. Найбільш імовірним механізмом накопичення ПРН є гетеро валентне ізоморфне заміщення в структурах мінералів шлаків, що знаходяться в кристалічному і аморфному стані [18].

Метою роботи було визначення радіонуклідного складу фракцій відходів вуглевидобутку і паливних золошлаків та їх відповідність нормам радіаційної безпеки України та міжнародним радіологічними показниками.

Методика дослідження. Гамма-спектрометричний аналіз шлаку виконаний за допомогою сцинтиляційного гамма-спектрометра СЕГ-001 «АКП-С» з похибкою вимірювання активності <25 %. Обробка результатів вимірювань проводилась за допомогою програмного забезпечення Akwin. Результати гамма-спектрометричного аналізу наведені в таблиці 1.

Відповідність відходів вуглевидобувної і теплоенергетичної галузі нормам радіаційної безпеки України. Критерієм радіаційної небезпеки будівельних, технічних матеріалів, побічних продуктів і відходів виробництва згідно НРБ України [19] є ефективна питома активність ПРН – $C_{\text{еф}}$, яку визначають як зважену суму питомих активностей радію-226 (C_{Ra}), торію-232 (C_{Th}) та калію-40 (C_{K}) за формулою:

$$C_{\text{еф}} = C_{\text{Ra}} + 1,31C_{\text{Th}} + 0,085C_{\text{K}}, \text{ Бк/кг},$$

де: 1,34 та 0,09 – відповідно зважені коефіцієнти для торію-232 та калію-40 по відношенні до радію-226.

За величиною $C_{\text{еф}} < 370$ Бк/кг (табл. 1) всі досліджені відходи відносяться до першого класу радіаційної небезпеки і можуть використовуватися в будівництві без обмежень.

Активність досліджених зразків. Радіонуклідний склад досліджених зразків має деякі особливості. При вигорянні органіки і вуглистих частинок відбувається концентрування ПРН в залишку неорганічної частини. Це відноситься до паливних золошлаків і горілих порід вуглевидобутку.

Паливні золошлаки. Величини ефективної питомої активності досліджених фракцій золошлаків практично не відрізняються між собою. Близькі значення вкладів окремих ПРН в $C_{\text{еф}}$ (табл. 1). Величина $C_{\text{еф}}$ досліджених золошлакових відходів перевищує середню $C_{\text{еф}}$ Для паливних шлаків (194 Бк/кг) та зол (204 Бк/кг) по СНД [20], однак нижча від аналогічної величини для золошлаків Придніпровської ГРЕС (366 Бк/кг) та Криворізької ГРЕС (352 Бк/кг) [21]. Досліджені золи і шлаки мають підвищену $C_{\text{еф}}$ в порівнянні із середнім значенням для будівельних матеріалів по Україні (106 Бк/кг) та СНД (93 Бк/кг), однак діапазон її варіації значно вужче, ніж для будматеріалів [20].

Фракції золошлаків Слов'янської ТЕС можна охарактеризувати за вмістом окремих ПРН. У порядку зменшення відношення (%) максимального розкиду питомих активностей окремих ПРН по фракціям золошлаку від C_i середньої проби, радіонукліди можна розташувати в ряд:
 $^{226}\text{Ra} > ^{40}\text{K} > ^{232}\text{Th}$.

Породи вуглевидобутку. Розподіл ПРН за обсягом терикону може залежати від ряду факторів. Одним з основних є вилуговування водою, яке визначається розою вітрів місцевості. Таким чином, розподіл ПРН в поверхневому шарі вугільної породи має відрізнятися в залежності від сторони світу. Подальша міграція ПРН на глибину визначається розчинністю сполук, що утворюються, аніонним складом вугільної породи, рН, окисно-відновлювальними властивостями та іншими факторами.

Горілі породи вуглевидобутку шахти «Ольховатська». Фракція >20 мм є найбільш радіаційно-чистою. Фракція <0,63 мм характеризується максимальним значенням $C_{\text{еф}}$. Зростання $C_{\text{еф}}$ частинок породи з розміром <2,5 мм та особливо <0,63 мм пов'язане з підвищенням питомої активності ^{226}Ra (табл. 1). Вивчення активностей окремих фракцій горілої вугільної породи шахти «Ольховатська» визначає ряд зменшення відношення (%) максимального розкиду питомих активностей ПРН по фракціям золошлаку від C_i середньої проби: $^{226}\text{Ra} > ^{232}\text{Th} > ^{40}\text{K}$.

Негорілі породи вуглевидобутку мають в своєму складі органічну складову, звідси менше величини C_i окремих ПРН та $C_{\text{еф}}$. Внесок ПРН в сумарну активність ($C_{\text{сум}}$) зразків різний. Породи терикону шахти «Павлоградська», для якої зареєстровані максимальні вклади ^{226}Ra та ^{232}Th в сумарну активність, є найбільш небезпечною з позицій еманцій ізотопів ^{222}Rn та ^{220}Rn . Звідси виникає необхідність радіаційного моніторингу териконів, що попереджує їх розробку.

Відповідність відходів вуглевидобувної і теплоенергетичної галузі міжнародним радіологічним показникам. Численні критерії оцінки радіологічного навантаження на населення від впливу радіації в різних компонентах навколишнього середовища представлені в літературі [22-27].

Індекси радіаційної небезпеки. Еквівалентна активність радію $Ra_{\text{еф}}$ використовується для сумарного обліку небезпеки, пов'язаної з окремими ПРН при їх неоднорідному розподілі в навколишньому середовищі. $Ra_{\text{еф}}$ виражається як зважена сума активностей ^{226}Ra , ^{232}Th та ^{40}K в Бк/кг, виходячи з припущення, що 370 Бк/кг ^{226}Ra , 259 Бк/кг ^{232}Th та 4810 Бк/кг ^{40}K характеризуються однаковою потужністю дози гамма-випромінювання [23]:

$$Ra_{\text{еф}} = C_{\text{Ra}} + 1,43C_{\text{Th}} + 0,077C_{\text{K}}, \text{ Бк/кг.}$$

Величина $Ra_{\text{еф}}$ не повинна перевищувати 370 Бк/кг [24].

Індекс зовнішньої небезпеки I_{ex} оцінює небезпеку за рахунок зовнішнього опромінення від ^{226}Ra , ^{232}Th та ^{40}K в досліджених зразках [25]:

$$I_{\text{ex}} = \frac{C_{\text{Ra}}}{370} + \frac{C_{\text{Th}}}{259} + \frac{C_{\text{K}}}{4810}$$

Таблиця 1. Результати гамма-спектрометричного аналізу відходів вуглевидобутку і паливних золошлаків

Фракція, мм	$C_{\text{еф}}$, Бк/кг	C_i , Бк/кг (внесок в сумарну активність, %)		
		^{40}K	^{226}Ra	^{232}Th
Золошлак Слов'янської ТЕС, Донецька обл.				
Середня проба	259	785 (82,2)	101 (10,6)	69,5 (7,3)
10–20	264	792 (82,0)	100 (10,4)	73,5 (7,6)
5–10	269	807 (82,0)	104 (10,6)	72,9 (7,4)
< 5	237	745 (83,0)	83,4 (9,3)	68,6 (7,6)
Золошлак Есхарівської ГРЕС-2, Харківська обл.				
Зола	238	686 (81,1)	95,0 (11,2)	64,4 (7,6)
Золошлак	244	732 (81,9)	97,8 (10,9)	64,0 (7,2)
Шлак	236	750 (83,1)	89,5 (9,9)	62,8 (7,0)
Золошлак Зміївської ГРЕС, Харківська обл.				
Золошлак	254	761 (81,9)	101 (10,9)	67,3 (7,2)
Породи вуглевидобування Горіла порода шахти «Ольховатська», Донецька обл.				
Середня проба	251	1050 (88,1)	73,7 (6,2)	67,7 (5,7)
> 20	240	968 (87,7)	67,4 (6,1)	68,9 (6,2)
10–20	257	1010 (87,2)	77,2 (6,6)	71,8 (6,2)
5–10	258	1110 (88,7)	69,4 (5,5)	71,7 (5,7)
2,5–5	264	1130 (88,5)	74,5 (5,8)	71,7 (5,6)
1,25–2,5	278	1110 (87,3)	84,1 (6,6)	76,4 (6,0)
0,63–1,25	270	1070 (87,2)	84,4 (6,9)	72,3 (5,9)
< 0,63	305	912 (82,0)	111 (10,0)	89,3 (8,0)
Горіла порода шахти ім. Челюскінців, Донецька обл.				
Середня проба	225	610 (80,0)	92,1 (12,0)	61,6 (8,0)
Негоріла порода шахти «Хмельницька», Луганська обл.				
Середня проба	172	815 (90,1)	45,9 (5,1)	43,7 (4,8)
Негоріла порода шахти ім. Свердлова, Луганська обл.				
Середня проба	121	470 (86,8)	40,8 (7,5)	30,6 (5,7)
Негоріла порода шахти ім. Фрунзе, Луганська обл.				
Середня проба	176	839 (90,2)	46,1 (5,0)	44,8 (4,8)
Негоріла порода шахти «Водянська», Донецька обл.				
Середня проба	193	640 (84,3)	56,8 (7,5)	62,7 (8,2)
Негоріла порода шахти «Белицька», Донецька обл.				
Середня проба	210	746 (85,4)	68,6 (7,8)	59,2 (6,8)
Негоріла порода шахти «Павлоградська», Дніпропетровська обл.				
Середня проба	184	171 (53,4)	82,3 (25,7)	66,6 (20,8)

Індекс внутрішньої небезпеки I_{in} оцінює ризик для органів дихання від внутрішнього впливу радону та його короткоживучих дочірніх продуктів [25]:

$$I_{in} = \frac{C_{Ra}}{185} + \frac{C_{Th}}{259} + \frac{C_K}{4810}$$

Гамма-індекс I_y розраховують за рівнянням [25]:

$$I_y = \frac{C_{Ra}}{300} + \frac{C_{Th}}{200} + \frac{C_K}{3000}$$

I_y використовують для ідентифікації матеріалів, які представляють інтерес в будівництві. Для матеріалів, використовуваних у великих обсягах, наприклад, для бетону $I_y \leq 1$, що відповідає річній ефективній дозі меншій або рівній 1 мЗв. $I_y \leq 0,5$ відповідає до річної ефективної дози меншій або рівній 0,3 мЗв [25].

Альфа-індекс I_α оцінює еманацию радону з матеріалів [25]:

$$I_\alpha = \frac{C_{Ra}}{200}$$

При активності ^{226}Ra в матеріалі вище 200 Бк/кг, концентрація радону, що надходить в повітря приміщення, може бути рівною 200 Бк/м³. $I_\alpha \leq 1$ відповідає активності ^{226}Ra , що не вище 200 Бк/кг.

Індекс використання активності AUI визначає потужність дози в повітрі при різних комбінаціях ^{226}Ra , ^{232}Th та ^{40}K в промислових відходах. Індекс розраховується на основі питомих активностей ПРН C_i і дробних вкладів ПРН f_i в сумарну потужність дози гамма-випромінювання в повітрі за співвідношенням [10]:

$$AUI = \frac{C_{Ra} \cdot f_U}{50} + \frac{C_{Th} \cdot f_{Th}}{50} + \frac{C_K \cdot f_K}{500}$$

Дробні вклади f_U , f_{Th} і f_K в сумарну потужність дози гамма-випромінювання у повітрі від ^{226}Ra , ^{232}Th та ^{40}K складають 0,462, 0,604 і 0,041; середні питомі активності ^{40}K , ^{232}Th та ^{226}Ra у ґрунтах складають, Бк/кг: 500, 50 та 50 [24].

Згідно рекомендаціям НКДАР [23] величина I_{ex} , I_{in} , I_y , I_α і AUI не повинна перевищувати одиниці, в даному випадку матеріали можуть використовуватися в будівництві без радіологічної загрози населенню. Результати розрахунків індексів радіаційної небезпеки наведені в таблиці 2. Величина Ra_{eq} всіх зразків не перевищує 370 Бк/кг, що відповідає величині дози зовнішнього опромінення 1,5 мЗв/рік [24]. Індекс зовнішньої небезпеки всіх зразків $I_{ex} \leq 1$. Індекс внутрішньої небезпеки для двох зразків, які зазнали

термічної обробки незначно перевищує одиницю (виділено в табл. 2). Гамма-індекс $I_y \leq 1$ для зразків за винятком фракції <0,63 мм горілої породи шахти «Ольховатська». Альфа-індекс $I_\alpha \leq 1$ для всіх зразків, що відповідає активності ^{226}Ra не перевищує 200 Бк/кг. Значне перевищення виявлено для індексу використання активності AUI практично для досліджених порід і золошлаків. Для фракції <0,63 мм горілої породи шахти «Ольховатська» $AUI > 2$.

Дози радіації. Потужність поглиненої дози на відкритому повітрі D_R за рахунок гамма-випромінювання ПРН навколишнього середовища розраховується за формулою [26]:

$$D_R = 0,462C_{Ra} + 0,604C_{Th} + 0,0417C_K, \text{ нГр/год.}$$

Коефіцієнти перерахунку 0,462, 0,604 та 0,0417 Бк/кг відповідно для ^{226}Ra , ^{232}Th та ^{40}K , визначені НКДАР ООН [26], використовуються для оцінки D_R на 1 м над рівнем землі в результаті гамма-випромінювання ^{226}Ra , ^{232}Th та ^{40}K , що містяться у ґрунті.

Річна ефективна еквівалентна доза $AEDE$ визначає ризик впливу на людину потужності поглиненої дози. Коефіцієнти перерахунку: 0,70 Зв/Гр перетворює D_R в ефективну дозу; коефіцієнт перебування на відкритому повітрі 0,2 [23]. $AEDE$ при перебуванні на повітрі оцінюють за формулою:

$$AEDE = 1,21 \cdot 10^{-3} D_R, \text{ мЗв/рік.}$$

Величини D_R досліджених відходів виробництва вище середньосвітового значення 58 нГр/год., наведеного в [26]. Аналогічно величина $AEDE$ для більшості зразків відходів вище середньосвітової ефективної дози, отриманої на відкритому просторі, 0,07 мЗв [23]. Однак розраховані величини $AEDE$ менші річної ефективної дози, рекомендованої МАГАТЕ для населення, 1 мЗв/рік [28].

Надлишковий довільний канцерогенний ризик $ELCR$ при опроміненні розраховується на основі величини $AEDE$ за рівнянням [27]:

$$ELCR = AEDE \cdot DL \cdot RF,$$

де: DL – тривалість життя 70 років; RF – фактор ризику, що дорівнює 0,05 1/Зв для стохастичних ефектів в будь-якій популяції [27].

Величини $ELCR$ для деяких зразків досліджених відходів вище середньосвітового значення $0,29 \cdot 10^{-3}$ [23], але нижче межі 0,05, встановленої Міжнародною комісією з радіаційного захисту [27]. Таким чином, ймовірність виникнення раку у населення в цілому через використання досліджених відходів вуглевидобутку і теплоенергетики незначна.

Таблиця 2. Індекси радіаційної небезпеки, дози радіації і канцерогенний ризик відходів вуглевидобувної і теплоенергетичної галузі

Фракція, мм	Індекси радіаційної небезпеки						Дози		$ELCR \cdot 10^{-3}$
	≤ 370 Бк/кг	(≤ 1)					$AEDE,$ мЗв/рік	$D_R,$ нГр/год.	
	$Ra_{eq},$ Бк/кг	I_{ex}	I_{in}	I_y	I_α	AUI			
Золошлак Слов'янської ТЕС, Донецька обл.									
Середня проба	260,83	0,70	0,98	0,95	0,51	1,84	0,15	121,4	0,53
10–20	266,09	0,72	0,99	0,96	0,50	1,88	0,15	123,6	0,53
5–10	270,4	0,56	1,01	0,98	0,52	1,91	0,15	125,7	0,53
< 5	238,86	0,65	0,87	0,87	0,42	1,66	0,13	111,0	0,46
Золошлак Есхарівської ГРЕС-2, Харківська обл.									
Зола	239,91	0,65	0,90	0,87	0,48	1,71	0,13	111,4	0,46
Золошлак	245,68	0,66	0,93	0,89	0,49	1,74	0,14	114,4	0,49
Шлак	237,05	0,64	0,88	0,86	0,45	1,65	0,13	110,6	0,46
Золошлак Зміївської ГРЕС, Харківська обл.									
Золошлак	255,84	0,69	0,96	0,93	0,51	1,81	0,14	119,0	0,49
Породи вуглевидобування									
Горіла порода шахти «Ольховатська», Донецька обл.									
Середня проба	251,36	0,68	0,88	0,93	0,37	1,58	0,14	118,7	0,49
> 20	240,46	0,65	0,83	0,89	0,34	1,53	0,14	113,1	0,49
10–20	257,64	0,70	0,90	0,95	0,39	1,66	0,15	121,2	0,53
5–10	257,40	0,70	0,88	0,96	0,35	1,60	0,15	121,7	0,53
2,5–5	264,04	0,71	0,91	0,98	0,37	1,65	0,15	124,8	0,53
1,25–2,5	278,82	0,75	0,98	1,00	0,42	1,79	0,16	131,3	0,56
0,63–1,25	269,78	0,73	0,96	0,88	0,42	1,74	0,15	127,3	0,53
< 0,63	308,92	0,83	1,13	1,12	0,56	2,18	0,17	143,2	0,60
Горіла порода шахти ім. Челюскінців, Донецька обл.									
Середня проба	227,16	0,61	0,86	0,82	0,46	1,65	0,13	105,2	0,46
Негоріла порода шахти «Хмельницька», Луганська обл.									
Середня проба	171,15	0,46	0,59	0,64	0,23	1,02	0,10	81,6	0,35
Негоріла порода шахти ім. Свердлова, Луганська обл.									
Середня проба	120,75	0,33	0,44	0,45	0,20	0,79	0,07	56,9	0,25
Негоріла порода шахти ім. Фрунзе, Луганська обл.									
Середня проба	174,77	0,47	0,60	0,66	0,23	1,04	0,11	88,3	0,39
Негоріла порода шахти «Водянська», Донецька обл.									
Середня проба	195,74	0,53	0,68	0,72	0,28	1,33	0,11	90,8	0,39
Негоріла порода шахти «Белицька», Донецька обл.									
Середня проба	210,70	0,57	0,75	0,77	0,34	1,41	0,12	98,6	0,42
Негоріла порода шахти «Павлоградська», Дніпропетровська обл.									
Середня проба	190,71	0,52	0,74	0,66	0,41	1,58	0,10	85,4	0,35

Висновки.

Виявлено присутність у відходах вугледобувної і теплоенергетичної галузі ПРН: ^{226}Ra , ^{232}Th і ^{40}K та варіювання їх активності за гранулометричними фракціями. Основний внесок в величину $C_{\text{еф}}$ вносять радіонукліди ^{226}Ra та ^{232}Th . Найбільший розкид питомих активностей за фракціями паливних золошлаків і горілих порід вуглевидобутку характерний для ^{226}Ra . Згідно величині $C_{\text{еф}}$ всі досліджені відходи вуглевидобування і теплоенергетики відносяться до І класу радіаційної небезпеки ($C_{\text{еф}} < 370 \text{ Бк/кг}$) та можуть використовуватися в будівництві без обмежень.

Уточнення особливостей гамма-випромінювання відходів при розрахунку індексів радіаційної небезпеки показало, що гамма-випромінювання горілої породи шахти «Ольховатська» (фракція $< 0,63 \text{ мм}$) перевищує рекомендовані межі і може привести до опромінення ефективною дозою більше 1 мЗв/рік . Виявлено перевищення індексу використання активності практично для досліджених порід і золошлаків. Згідно величині еквівалентної активності ^{226}Ra і альфа-індексу досліджені золошлаки та відвальні породи не становлять небезпеки підвищеної емансації радону і дочірніх продуктів його розпаду в повітря приміщення. Потужність поглиненої дози на відкритому повітрі для досліджених відходів і річна ефективна еквівалентна доза вище середньосвітових значень, відповідно: 58 нГр/год . та $0,07 \text{ мЗв}$, але нижче значення, рекомендованого МАГАТЕ для населення, 1 мЗв/рік . Надлишковий довічний канцерогенний ризик нижче межі $0,05$, встановленого МКРЗ.

Література

1. Sources and effects of ionizing radiation. – New York: UNSCEAR, 2000. – P. 40-75.
2. Radioactivity of Coal and Its Combustion Wastes / Yu.N. Pak, D.Yu. Pak, M.V. Ponomaryova, M. B. Baizbayev, N. V. Zhelayeva // *Coke Chem.* – 2018. – Vol. 61. – Iss. 5. – P. 188-192. DOI: 10.3103/S1068364X1805006X
3. Quantification and radiological risk estimation due to the presence of natural radionuclides in Maiganga coal, Nigeria / M. T. Kolo, M. U. Khandaker, Y. M. Amin, W. H. B. Abdullah // *PLoS ONE.* – 2016. – Vol. 11. – Iss. 6. – e0158100. DOI: 10.1371/journal.pone.0158100
4. The environmental geochemistry of trace elements and naturally radionuclides in a coal Gangue brick-making plant / C. Zhou, G. Liu, S. Cheng, T. Fang, P.K.S. Lam // *Sci. Rep.* – 2014. – Iss. 4. – Article number 6221. DOI: 10.1038/srep06221
5. Zhang N., Liu C. Radiation characteristics of natural gamma-ray from coal and gangue for recognition in top coal caving // *Sci. Rep.* – 2018. – Iss. 8. – P. 190-199. DOI: 10.1038/s41598-017-18625-y
6. Analysis and risk assessment of natural radioactivity elements in coal wastes from Medan industrial area / H. Marpaung, Z. Alfian, S.L. Raja, D. Akhyariansyah, D. Silalahi, C. Simanjuntak, R. Harahap // *J. of Physics: Conf. Series.* – 2018. – Vol. 1116. – Iss. 4. – Article number 042018. – 4 p. DOI:10.1088/1742-6596/1116/4/042018
7. Терриконы: монографія / Л. Г. Зубова, А. Р. Зубов, А. А. Зубов и др. – Луганск: Ноулідж, 2015. – 716 с.
8. Зубова Л. Г., Зубов А. Р. Оценка радиоактивности породных отвалов угольных шахт ПАО «Лисичанскуголь» // *Уголь Украины.* – 2016. – № 2. – С. 59-65.
9. Dudu V. P., Mathuthu M., Manjoro M. Assessment of heavy metals and radionuclides in dust fall-out in the West Rand mining area of South Africa // *Clean Air J.* – 2018. – Vol. 28. – Iss. 2. – P. 42-52. DOI: 10.17159/2410-972x/2018/v28n2a17
10. Radionuclide concentrations and excess lifetime cancer risk due to gamma radioactivity in tailing enriched soil around Maiganga coal mine, Northeast Nigeria / M. T. Kolo, Y. M. Amin, M. U. Khandaker, W. H. B. Abdullah // *Intern. J. of Radiation Research.* – 2017. – Vol. 15. – Iss. 1. – P. 71-80. DOI: 10.18869/acadpub.ijrr.15.1.71
11. Śleziak M., Duliński M. Suitability of rocks and sediments from Brzeszcze and Silesia coal mines as building materials in terms of radiological hazard // *Nukleonika.* – 2019. – Vol. 64. – Iss. 2. – P. 65-70. DOI: 10.2478/nuka-2019-0008
12. Radioactive pollution generated by the electric powers using coal as combustible / P. Mursa, F. Voheci, R.-O. Dumitrescu, L. D. N. Şufaru // *Intern. Conf. Knowledge-based organization.* – 2018. – Vol. 24. – Iss. 3. – P. 59-65. DOI: 10.1515/kbo-2018-0137
13. Сидорова Г. П., Овсейчук В. А. Определение удельной эффективной активности в гюлях // *Горный информационно-аналитический бюллетень.* – 2016. – № 8. – С. 369-378.
14. Krylov D. A., Sidorova G. P. Radioactivity of coals and ash and slag wastes at coal-fired thermal power plants // *Thermal Engineering.* – 2013. – Vol. 60. – P. 239-243. DOI: 10.1134/S0040601513040046
15. Radioactivity of coal and ashes from Figueira coal power plant in Brazil / M. Flues, I. M. C. Camargo, P. S. C. Silva, B. P. Mazzilli // *J. of Radioanalytical and Nuclear Chem.* – 2006. – Vol. 270. – Iss.3. – P. 597-602.
16. Study of radioactivity in environment around power plants Tent A and Kolubara due to coal burning for 2015 / M. M. Janković, M. M. Rajačić, D. J. Todorović, N. B. Sarap, J. D. Nikolić, G. K. Pantelić, M. M. Krstić // *RAD Conference Proceedings.* – 2016. – Vol. 1. – P. 84-89.
17. Elemental and mineral composition of ash-slag wastes of Slovianska power plant / E. Khobotova, M. Ignatenko, V. Larin, Yu. Kalmykova,

A. Turenko // Chemistry and chemical technology. – 2017. – Vol. 11. – Iss. 3. – P. 378-382. DOI: 10.23939/chch11.03.378

18. Естественные радионуклиды доменных шлаков / Э. Б. Хоботова, Ю. С. Калмыкова, М. И. Игнатенко, В. И. Ларин // Черные металлы. – 2017. – № 1. – С. 23-28.

19. Норми радіаційної безпеки (NRB-97): Державні стандарти гігієни. Київ: Комітет по вопросам гігієнічного регулювання МЗ України, 1997. – 121 с.

20. Крисюк Э. М. Радиационный фон помещений. – М.: Энергоатомиздат, 1989. – 120 с.

21. Соколов И. А. Пути уменьшения уровней ионизирующих излучений естественных радионуклидов строительного производства. – Днепропетровск: ПГАСА, 2004. – 164 с.

22. Tufail M. Radium equivalent activity in the light of UNSCEAR report // Environmental monitoring and assessment. – 2012. – Vol. 184. – Iss. 9. – P. 5663-5667.

23. Sources and effects of ionizing radiation (UNSCEAR (2000)). Report to General Assembly, with scientific annexes. – New York: United Nations, 2000. – 659 p.

24. Exposure to radiation from natural radioactivity in building materials. Report by group of experts of the OECD (NEA-OECD 1979). – Paris: Nuclear Energy Agency (NEA), 1979. – 40 p.

25. Office European Commission report on radiological protection principles concerning the natural radioactivity of building materials radiation protection 112 (EC 1999). – Luxembourg: Directorate-General Environment, Nuclear Safety and Civil Protection, 1999. – 16 p.

26. Effects of ionizing radiation: report to the General Assembly, with scientific annexes (UNSCEAR (2008)). – New York: United Nations, 2010. – Vol. 1. – 683 p.

27. Recommendations of the International Commission on radiological protection. ICRP (1991) Publication 60: 1990 // Annals of the ICRP: Pergamon Press, 1990. – Vol. 21. – No. 1-3. – 211 p.

28. Радиационная защита и безопасность источников излучения: Международные основные нормы безопасности. – Вена: МАГАТЭ, 2010. – 484 с.

References

1. Sources and effects of ionizing radiation. – New York: UNSCEAR, 2000. – P. 40-75.

2. Pak Yu. N., Pak D. Yu., Ponomaryova M. V., Baizbayev M. B., Zhelayeva N. V. Radioactivity of coal and its combustion wastes. // Coke Chem. – 2018. – Vol. 61. – Iss. 5. – P. 188-192. DOI: 10.3103/S1068364X1805006X

3. Kolo M. T., Khandaker M. U., Amin Y. M., Abdullah W. H. B. Quantification and radiological risk estimation due to the presence of natural radionuclides in Maiganga coal, Nigeria. // PLoS ONE. –

2016. – Vol. 11. – Iss. 6. – e0158100. DOI: 10.1371/journal.pone.0158100

4. Zhou C., Liu G., Cheng S., Fang T., Lam P. K. S. The environmental geochemistry of trace elements and naturally radionuclides in a coal // Gangue brick-making plant. Sci. Rep. – 2014. – Iss. 4. – Article number 6221. DOI: 10.1038/srep06221

5. Zhang N., Liu C. Radiation characteristics of natural gamma-ray from coal and gangue for recognition in top coal caving. // Sci. Rep. – 2018. – Iss. 8. – P. 190-199. DOI: 10.1038/s41598-017-18625-y

6. Marpaung H., Alfian Z., Raja S. L., Akhyarian-syah D., Silalahi D., Simanjuntak C., Harahap R. Analysis and risk assessment of natural radioactivity elements in coal wastes from Medan industrial area. // J. of Physics: Conf. Series – 2018. – Vol. 116. – Iss. 4. Article number 042018. – 4 p. DOI: 10.1088/1742-6596/1116/4/042018

7. Zubova L.G., Zubov A.R., Zubov A.A. et al. Heaps: monograph. Lugansk: Noulidzh. – 2015. – 716 p.

8. Zubova L. G., Zubov A. R. Assessment of the radioactivity of rock dumps in coal mines of PJSC "Lisichanskugol". // Ugol' Ukrainy Coal of Ukraine. – 2016. – No. 2. – P. 59-65.

9. Dudu V. P., Mathuthu M., Manjoro M. Assessment of heavy metals and radionuclides in dust fall-out in the West Rand mining area of South Africa. // Clean Air J. – 2018. – Vol. 28. – Iss. 2. – P. 42-52. DOI: 10.17159/2410-972x/2018/v28n2a17

10. Kolo M. T., Amin Y. M., Khandaker M. U., Abdullah W. H. B. Radionuclide concentrations and excess lifetime cancer risk due to gamma radioactivity in tailing enriched soil around Maiganga coal mine, Northeast Nigeria. // Intern. J. of Radiation Research. – 2017. – Vol. 15. – Iss. 1. – P. 71-80. DOI: 10.18869/acadpub.ijrr.15.1.71

11. Śleziak M., Duliński M. Suitability of rocks and sediments from Brzeszcze and Silesia coal mines as building materials in terms of radiological hazard. // Nukleonika. – 2019. – Vol. 64. – Iss. 2. – P.65-70. DOI: 10.2478/nuka-2019-0008

12. Mursa P., Vochechi F., Dumitrescu R.O., Șufaru L.D.N. Radioactive pollution generated by the electric powers using coal as combustible. // intern. conf. Knowledge-based organization. – 2018. – Vol. 24. – Iss. 3. – P. 59-65. DOI: 10.1515/kbo-2018-0137

13. Sidorova G. P., Ovseychuk V. A. Determination of specific effective activity in coals. Gornyy informatsionno-analiticheskiy byulleten // Mining informational and analytical bulletin. – 2016. – No. 8. – P. 369-378.

14. Krylov D. A., Sidorova G. P. Radioactivity of coals and ash and slag wastes at coal-fired thermal power plants. // Thermal Engineering. – 2013. – Vol. 60. – P. 239-243. DOI:10.1134/S0040601513040046

15. Flues M., Camargo I. M. C., Silva P. S. C., Mazzilli B. P. Radioactivity of coal and ashes from Figueira coal power plant in Brazil. // J. of

Radioanalytical and Nuclear Chemistry. – 2006. – Vol. 270. – Iss.3. – P. 597-602.

16. Janković M. M., Rajačić M. M., Todorović D. J., Sarap N. B., Nikolić J. D., Pantelić G. K., Krstić M. M. Study of radioactivity in environment around power plants Tent A and Kolubara due to coal burning for 2015. // RAD Conference Proceedings. – 2016. – Vol. 1. – P. 84-89.

17. Khabotova E., Ignatenko M., Larin V., Kalmykova Yu., Turenko A. Elemental and mineral composition of ash-slag wastes of Slovianska power plant. // Chemistry and chemical technology. – 2017. – Vol. 11. – Iss. 3. – P 378-382. DOI: 10.23939/chcht11.03.378

18. Khabotova E. B., Kalmykova Yu. S., Ignatenko M. I., Larin V. I. Natural radionuclides of blast furnace slag. // Chernyye metally. Ferrous metals. – 2017. – No. 1. – P. 23-28.

19. Radiation safety standards (NRB-97): National hygiene standards. Kyiv: Committee on Hygienic Regulation of the Ministry of Health of Ukraine, 1997. – 121 p.

20. Krisyuk E. M. Premises radiation background, Moscow: Energoatomizdat, 1989. – 120 p.

21. Sokolov I. A. Ways to reduce the levels of ionizing radiation of natural radionuclides in the construction industry. Dnepropetrovsk: PGASA, 2004. – 164 p.

22. Tufail M. Radium equivalent activity in the light of UNSCEAR report. Environmental monitoring and assessment. – 2012. – Vol. 184. – Iss. 9. – P. 5663-5667.

23. Sources and effects of ionizing radiation (UNSCEAR (2000)). Report to General Assembly, with Scientific Annexes. // New York: United Nations, 2000. – 659 p.

24. Exposure to radiation from natural radioactivity in building materials. // Report by group of experts of the OECD (NEA–OECD 1979). Paris: Nuclear Energy Agency (NEA), 1979. – 40 p.

25. Office European Commission report on radiological protection principles concerning the natural radioactivity of building materials radiation protection 112 (EC 1999). // Luxembourg: Directorate-General Environment, Nuclear Safety and Civil Protection, 1999. – 16 p.

26. Effects of ionizing radiation: report to the General Assembly, with scientific annexes (UNSCEAR (2008)). // New York: United Nations, 2010. – Vol. 1. – 683 p.

27. Recommendations of the International Commission on radiological protection. ICRP (1991) Publication 60: 1990. // Annals of the ICRP: Pergamon Press, 1990. – Vol. 21. – No. 1-3. – 211 p.

28. Radiation protection and safety of radiation sources: International main safety norms. // Vienna: MAGATE, 2010. – 484 p.

Аннотация

Радиационные свойства отходов производства

Е.Б. Хоботова, И.В. Грайворонская, Н.Г. Гончарова, Г.А. Ляшенко

Проблема получения экологически безопасных материалов особенно важна при использовании отходов, которые концентрируют в себе природные радионуклиды (ПРН), представляющих опасность для здоровья человека и окружающей среды. К подобным концентраторам ПРН относятся отходы угледобывающей и теплоэнергетической отрасли. Целью работы было определение радионуклидного состава фракций отходов угледобычи и топливных золошлаков и их соответствие нормам радиационной безопасности Украины и международным радиологическим показателям. В составе топливных золошлаков и отвальных пород угледобычи обнаружены ПРН: ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K . Содержание радионуклидов варьирует по фракциям отходов. Основной вклад в величину эффективной удельной активности $C_{\text{эф}}$ отходов вносят ^{226}Ra и ^{232}Th . Наибольший разброс удельных активностей по фракциям топливных золошлаков и горелых пород угледобычи характерен для ^{226}Ra . Все исследованные отходы относятся к I классу радиационной опасности ($C_{\text{эф}} < 370 \text{ Бк/кг}$) и могут использоваться в строительстве без ограничений. Согласно международным радиологическим показателям превышен значение индекса использования активности практически для всех исследованных отходов. Гамма-излучение горелой породы шахты «Ольховатская» (фракция $< 0,63 \text{ мм}$) превышает рекомендуемые пределы по величине индекса внутренней опасности и гамма-индекса. Величины эквивалентной активности ^{226}Ra и альфа-индекса свидетельствуют, что исследованные золошлаки и отвальные породы не представляют опасности повышенной эманации радона и дочерних продуктов его распада в воздух помещения. Концентрация радона, поступающего в воздух помещения, не превышает 200 Бк/м^3 . Мощность поглощенной дозы на открытом воздухе для исследованных отходов и годовая эффективная эквивалентная доза выше среднемировых значений, соответственно: 58 НГР / час и $0,07 \text{ мЗв}$, но ниже значения, рекомендованного МАГАТЭ для населения, 1 мЗв / год . Избыточное пожизненный канцерогенный риск выше среднемирового значения $0,29 \cdot 10^{-3}$, но ниже предела $0,05$, установленной МКРЗ.

Ключевые слова: радионуклиды, топливные шлаки, отходы угледобычи, эффективная удельная активность, класс радиационной опасности, индексы радиационной опасности, дозы радиации

Abstract

Radiation properties of industrial waste

E.B. Khobotova, I.V. Hraivoronska, N.G. Honcharova, G.A. Lyashenko

The problem of obtaining environmentally safe materials is especially important when using waste products that concentrate in themselves natural radionuclides (NR), which pose a danger to human health and the environment. Similar concentrators of NR include waste from the coal mining and power engineering industries. The aim of the work was to determine the radionuclide composition of fractions of coal mining waste and fuel ash-slag and their compliance with the radiation safety standards of Ukraine and international radiological indicators. NR: ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{40}K were found in the composition of fuel ash-slugs and slag from coal mining. The content of radionuclides varies by fraction of the waste. The main contribution to the value of the effective specific activity C_{ef} of waste is made by ^{226}Ra and ^{232}Th . The largest variation in specific activities by fractions of fuel ash-slugs and dump rock of coal mining is characteristic of ^{226}Ra . All investigated wastes belong to the I class of radiation hazard ($C_{ef} < 370 \text{ Bq/kg}$) and can be used in construction without restrictions. According to international radiological indicators, the value of the activity utilization index is exceeded for almost all of the investigated wastes. The gamma radiation of the burnt dump rocks of the Olkhovatskaya mine (fraction $< 0.63 \text{ mm}$) exceeds the recommended limits in terms of the value of the internal hazard index and gamma index. The values of radium equivalent activity Ra_{eq} and the alpha index indicate that the investigated ash-slag and dump rock do not pose a danger of increased emanation of radon and daughter products of its decay into the room air. The concentration of radon entering the room air does not exceed 200 Bq/m^3 . The air-absorbed dose rate for the investigated wastes and the annual effective dose equivalent are higher than the world average, respectively: 58 nGy/h and 0.07 mSv , but lower than the value recommended by the IAEA for the population, 1 mSv/y . The excess lifetime cancer risk is higher than the world average value of $0.29 \cdot 10^{-3}$, but below the 0.05 limit established by the ICRP.

Keywords: *radionuclides, fuel slags, coal mining waste, effective specific activity, class of radiation hazard, radiation hazard indices, radiation doses*

Бібліографічне посилання/ Bibliography citation: Harvard

Khobotova, E.B. et al. (2021) "Radiation properties of industrial waste," *Engineering of nature management*, (2(20), pp. 112 - 120.

Подано до редакції / Received: 16.05.2021