

OZNACZANIE STĘŻENIA IZOTOPU ^{210}Pb W PRÓBKACH STAŁYCH DLA POTRZEB OCENY ZAGROŻENIA RADIACYJNEGO WYSTĘPUJĄCEGO W KOPALNIACH

Michał Bonczyk

Główny Instytut Górnictwa, e-mail: mbonczyk@gig.eu

Streszczenie

Izotop ^{210}Pb , element naturalnego szeregu promieniotwórczego ^{238}U , jak dotąd nie był uwzględniany przy ocenie ryzyka zagrożenia radiacyjnego, szczególnie w odniesieniu do systemu ochrony radiologicznej w podziemnych zakładach górniczych (Rozporządzenie 2002) czy kontroli narażenia radiacyjnego związanego z wydobywaniem oraz przetwórstwem ropy i gazu (Radiation... 1999). Okazuje się jednak, że ze względu na swoje właściwości fizykochemiczne nuklid ten może zachowywać się zupełnie niezależnie od pozostałych elementów szeregu, w którym występuje. Wyniki badań prowadzonych w ramach rutynowej kontroli zagrożenia radiacyjnego w podziemnych zakładach górniczych świadczą o tym, że dla większości osadów dołowych, powstających na skutek współstrącenia radu i baru w postaci siarczanu radowo-barowego, obserwuje się znacznie wyższe jego stężenia, niż wynikałoby to z samego tylko rozpadu ^{226}Ra . Implikuje to konieczność monitorowania stężenia ^{210}Pb w tych osadach, co jest związane z wieloma trudnościami analitycznymi i pomiarowymi. Niniejszy artykuł poświęcony jest wyznaczaniu współczynnika poprawkowego związanego ze zjawiskiem samoabsorpcji w próbkach stałych podczas oznaczania ^{210}Pb metodą spektrometrii promieniowania gamma. Uzyskane współczynniki wahały się w granicach 0,51–6,96 cm^2/g , co dowodzi, że nieuwzględnienie poprawki na samoabsorpcję, może prowadzić do poważnych błędów i niedoszacowań w ocenie zagrożenia radiacyjnego.

Słowa kluczowe

samopochlanianie, współczynnik poprawkowy, spektrometria gamma, ołów Pb-210

1. WPROWADZENIE

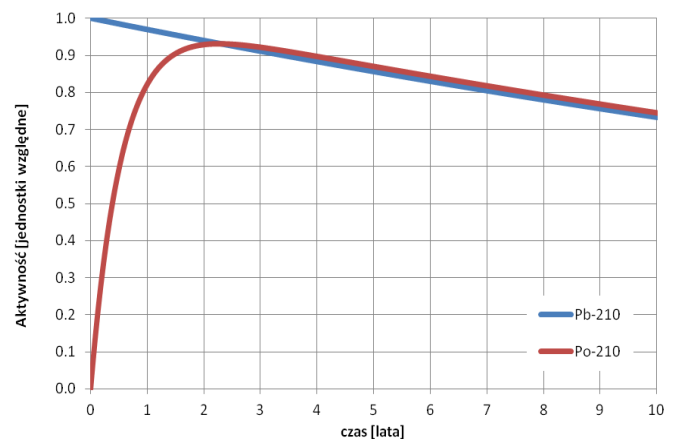
Ołów ^{210}Pb jest naturalnie występującym nuklidem promieniotwórczym, elementem uranowego (^{238}U) szeregu promieniotwórczego. Powstaje w wyniku rozpadu tzw. krótkożyciowych pochodnych ^{222}Rn , bezpośrednio z rozpadu ^{214}Po (99,98%) oraz ^{214}Bi przez ^{219}Tl (0,02%). ^{210}Pb ulega rozpadowi typu beta do ^{210}Bi . Przemianie tej towarzyszy emisja kwantu promieniowania gamma o energii 46,5 keV. ^{210}Bi ulega również rozpadowi typu beta, w rezultacie którego powstaje ^{210}Po , ten zaś ulega rozpadowi typu alfa do stabilnego izotopu ^{206}Pb . Przemianie tej towarzyszy emisja tylko promieniowania alfa. W związku z tym analiza stężenia ^{210}Po wymaga dość skomplikowanych metod pomiarowych, bazujących na jego chemicznej separacji (Clayton, Bradley 1995). Z drugiej strony ^{210}Po , jako nuklid alfa-promieniotwórczy, jest niezwykle niebezpieczny w przypadku wniknięcia do organizmu człowieka. Wartości jednostkowych dawek obciążających dla kilku wybranych nuklidów szeregu uranowego przedstawiono w tabeli 1.

Tabela 1. Jednostkowe dawki obciążające e(g) dla pracowników, związane z wniknięciem wybranych nuklidów do ich organizmów drogą oddechową i pokarmową

Nuklid	Droga oddechowa		Droga pokarmowa
	e(g) 1 μm Sv/Bq	e(g) 5 μm Sv/Bq	e(g) Sv/Bq
^{210}Pb	8,9·10 ⁻⁷	1,1·10 ⁻⁶	6,9·10 ⁻⁷
^{210}Bi	1,1·10 ⁻⁹	1,4·10 ⁻⁹	1,9·10 ⁻⁹
^{210}Po	6,0·10 ⁻⁷	7,1·10 ⁻⁷	2,4·10 ⁻⁷

Wzajemny stosunek okresów połowicznego rozpadu ^{210}Pb , ^{210}Bi i ^{210}Po powoduje, że nuklidy te stosunkowo szybko osiągną stan wiekowej równowagi promieniotwórczej (rys. 1). Fakt ten powinien być uwzględniany w każdym przypad-

ku oceny zagrożenia radiacyjnego czy też oceny oddziaływania na środowisko oraz może być wykorzystywany (lub stanowić ograniczenie) w metodach pomiaru ^{210}Pb .



Rys. 1. Zmiany stężenia w czasie ^{210}Pb i ^{210}Po w układzie izolowanym (stan wiekowej równowagi promieniotwórczej między ^{210}Pb i ^{210}Bi jest osiągnięty po około 50 dniach)

Ze względu na stosunkowo długi okres połowicznego rozpadu (22,3 roku) ^{210}Pb jest jedynym naturalnym promieniotwórczym izotopem ołowiu, którego występowanie w środowisku nie jest bezpośrednio związane z obecnością jego izotopu macierzystego. Jego stężenie może ulegać zmianom pod wpływem naturalnych procesów środowiskowych (atmosferycznych, hydrologicznych) lub antropogenicznych.

Do najistotniejszych czynników zagrożenia radiacyjnego w kopalniach należą promieniotwórcze wody dołowe oraz powstające z nich osady zawierające podwyższone stężenia izotopów radu (^{226}Ra i ^{228}Ra). Powstają one przez współstrą-

cenie radu z siarczanem baru i późniejszą sedymentacją. Ponieważ obserwowane w wodach dołowych stężenie ^{210}Pb jest na ogół bardzo niskie, zakłada się, że nie uczestniczy on w procesie tworzenia osadów, w związku z czym nie powinien występować w tych osadach w chwili ich powstawania. Jego akumulacja związana jest z rozpadem radu, zgodnie z prawem rozpadu promieniotwórczego (Michalik 2011).

Na podstawie pomiarów stężenia nuklidów promieniotwórczych w osadach, prowadzonych w ramach rutynowej kontroli zagrożenia radiacyjnego w kopalniach, można stwierdzić, że obserwowane stężenie ołowiu rzadko odpowiada wartości wynikającej tylko z rozpadu radu. Wśród osadów badanych w Laboratorium Radiometrii GIG (obecnie: Śląskie Centrum Radiometrii Środowiskowej GIG) w ciągu ostatnich 20 lat zauważono, że w około 70% przypadków stężenie promieniotwórcze ^{210}Pb znacznie przekraczało wartość wynikającą z samego tylko rozpadu ^{226}Ra . Dla około 22% badanych osadów stwierdzono zgodność stężenia ołowiu z tą wartością, natomiast w blisko 8% przypadków stężenie ^{210}Pb okazało się być znacznie niższe od wartości spodziewanej. Oznacza to, że dla większości powstających osadów akumulacja ^{210}Pb następuje nie tylko na skutek rozpadu ^{226}Ra , ale również w wyniku dotąd bliżej nierozpoznanych procesów geochemicznych. Zaobserwowane stężenia ^{210}Pb w osadach wytrącających się z wód dołowych sięgają nawet kilkunastu kilobekkereli na kilogram masy osadu. Dla porównania, typowe wartości stężenia ^{210}Pb w glebie na terenie Polski wynoszą średnio kilkadziesiąt bekereli na kilogram (od 7,9 do 91,2 Bq/kg) (Radiologiczny... 1997). Tak wysoka aktywność ołowiu stanowi znaczący wkład do dawki skutecznej otrzymywanej przez pracowników kopalń zatrudnionych w bezpośrednim sąsiedztwie takich osadów (głównie w wyniku przypadkowego wniknięcia do organizmu). Z drugiej strony, wysoka liczba próbek, w których stężenie ołowiu jest znacznie niższe od wartości spodziewanych na podstawie rozpadu radu, wskazuje na istotną mobilność tego nuklidu. W związku z tym istnieje niebezpieczeństwo jego przedostania się do środowiska z miejsca deponowania osadów (składowisk) bądź wprost z osadników znajdujących się na powierzchni, najczęściej nie dość skutecznie odizolowanych od otoczenia. Istotne staje się ryzyko migracji tego izotopu, na przykład do wód podziemnych, czego konsekwencją może być skażenie wód pitnych. Ze względu na swoje właściwości chemiczne ołów nie jest usuwany z organizmu człowieka. Po jego wniknięciu do organizmu człowieka należy się spodziewać stosunkowo szybkiego narastania ^{210}Po , który charakteryzuje się również dużą wartością jednostkowej dawki obciążającej. W rezultacie wniknięcie każdego bekerela izotopu ^{210}Pb drogą pokarmową (lub oddechową), na przykład na skutek konsumpcji, może prowadzić do istotnego, ze względu na wymagania ochrony radiologicznej, wzrostu narażenia na promieniowanie. W związku z powyższym konieczne staje się dokładne oznaczenie ^{210}Pb w różnych próbkach środowiskowych.

Właściwości fizykochemiczne ołowiu oraz parametry rozpadu izotopu ^{210}Pb są powodem trudności w precyzyjnym oznaczeniu tego nuklidu, w szczególności w próbkach, które znacznie różnią się gęstością i składem chemicznym, co jest znamienne w przypadku osadów powstających z wód dołowych. Poniżej omówiono trzy metody analitycznego oznaczenia stężenia ^{210}Pb w próbkach.

2. PRZEGLĄD METOD BADAWCZYCH

W czasie rozpadu atomu ołowiu ^{210}Pb emitowane jest promieniowanie beta i gamma. Jak wspomniano, stosunkowo szybko ustala się stan wiekowej równowagi promieniotwórczej ołowiu i polonu, który jest emitorem promieniowania alfa. Zatem do pomiaru stężenia ^{210}Pb mogą być zastosowane metody pomiarowe oparte na detekcji każdego z rodzajów promieniowania jonizującego.

Spektrometria promieniowania gamma jest możliwa do stosowania, gdy w badanych materiałach występuje względnie wysoka aktywność ^{210}Pb . Typowy limit detekcji dla tej metody wynosi około 0,4 Bq/kg. Zastosowanie niskotłowych osłon z ołowiu pozbawionego izotopu ^{210}Pb pozwala nieco obniżyć tło i tym samym poprawić limit detekcji. Jednak rozwiązania takie są niezwykle kosztowne. Dodatkowe utrudnienia przy pomiarach metodą spektrometrii promieniowania gamma są związane z niską energią promieniowania emitowanego przez ^{210}Pb . Wymusza to konieczność stosowania odpowiednich poprawek związanych nie tylko z gęstością, ale również ze składem chemicznym matrycy. Jedną z metod oszacowania wielkości poprawki jest zastosowanie symulacji Monte Carlo, bazującej na znajomości składu chemicznego (Jodłowski 2006). Główną wadą tego rozwiązania jest konieczność znajomości składu chemicznego, co zwiększa koszty i czas badania. Alternatywą dla tego rozwiązania (również wymagającą uprzedniej znajomości składu chemicznego) jest stosowanie próbek wzorcowych o składzie chemicznym i gęstości podobnych do tych z badanej próbki. Odmiernym rozwiązaniem, szeroko stosowanym w laboratoriach, jest oszacowanie wielkości samopochłaniania za pomocą eksperymentu transmisyjnego (Cutshall, Larsen, Olsen 1983). Po pomiarze i wstępnym oznaczeniu aktywności ^{210}Pb nad badaną próbką znajdującą się na detektorze promieniowania umieszcza się punktowe źródło ^{210}Pb o znanej aktywności. W celu ograniczenia rozpraszania i uzyskania spójnej wiązki promieniowania prostopadłej do powierzchni próbki stosuje się kolimator. Następnie wyznacza się intensywność pochłaniania w pikie odpowiadającym energii 46,5 keV i za pomocą odpowiednich wzorów oblicza się poprawkę. Główną zaletą tego rozwiązania jest brak konieczności wyznaczenia składu chemicznego badanej próbki. Spośród wad tej metody należy wymienić ograniczenia w stosowanej geometrii pomiarowej oraz bardzo uproszczony matematyczny opis zjawiska pochłaniania w próbce, na podstawie którego utworzono wzór pozwalający na obliczenie końcowej poprawki. Zaletą stosowania w ogóle spektrometrii promieniowania gamma jest brak konieczności chemicznej preparatyki próbek poddawanych pomiarowi oraz stosunkowo krótki czas niezbędny do uzyskania wyników badań. Zazwyczaj nie przekracza on 24 godzin.

Spektrometria ciekłoscyntylicyjna (LSC) umożliwia detekcję promieniowania beta, emitowanego przez izotopy promieniotwórcze zawarte w analizowanym materiale, z dużą, praktycznie bliską 100%, wydajnością. Metoda ta jednocześnie umożliwia rozróżnianie energii promieniowania, co w rezultacie pozwala na identyfikację izotopów, będących źródłem rejestrowanego promieniowania. Warunkiem koniecznym do przeprowadzenia pomiaru metodą spektrometrii ciekłoscyntylicyjnej jest wprowadzenie analizowanego materiału do roztworu. Roztwór ten, po zmieszaniu z ciekłym scyntylatorem, stanowi próbkę bezpośrednio mierzoną na

liczniku scyntylacyjnym. Typowy limit detekcji dla tej metody kształtuje się na poziomie kilkudziesięciu milibekereli na próbkę. Zastosowanie preparatyki chemicznej pozwalającej na ekstrakcję ołowiu i jego zatężenie, umożliwia uzyskanie jeszcze niższych limitów detekcji. Sprowadza się to jednak do konieczności opracowania konkretnej procedury preparatyki chemicznej dla każdej matrycy. Z uwagi na fakt, że dostępne obecnie spektrometry ciekłoscyntylacyjne nie są w stanie całkowicie rozdzielić sygnału pochodzącego od rejestracji promieniowania beta ^{210}Pb i ^{210}Bi , optymalny poziom sygnału w stosunku do tła można uzyskać po ustaleniu się wiekowej równowagi promieniotwórczej między izotopem ^{210}Pb i ^{210}Bi . Powoduje to, że czas oczekiwania na wyniki pomiaru wydłuża się do prawie miesiąca od zakończenia preparatyki chemicznej. Pomiar można oczywiście wykonać wcześniej, ale w takiej sytuacji należy zastosować identyczny reżim czasowy dla badanych próbek i próbek wzorcowych wykorzystanych do kalibracji, co w znacznym stopniu komplikuje cykl pomiarowy, a w rezultacie nie zapewnia optymalnego limitu detekcji. Mała rozdzielczość energetyczna spektrometrów ciekłoscyntylacyjnych wymusza również stosowanie preparatyki chemicznej, która gwarantuje usunięcie z próbki innych nuklidów promieniotwórczych, będących emiterami promieniowania beta, których występowanie w analizowanej próbce nie jest w żaden sposób powiązane z występowaniem izotopu ^{210}Pb . Dotyczy to głównie izotopów radu i toru, a także ich pochodnych, w szczególności tych, które występują w szeregu torowym.

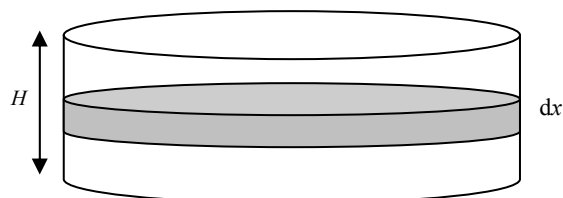
Pomiar stężenia ^{210}Pb można wykonać również za pomocą spektrometrii promieniowania alfa, wykorzystując fakt ustalenia się równowagi promieniotwórczej między ^{210}Pb i ^{210}Po (Vajda i in. 1997). Metoda ta, uzupełniona o odpowiednią preparatykę chemiczną, pozwala oznaczać stężenie ołowiu na niższym poziomie niż metoda ciekłych scyntylatorów. Jej wadą jest konieczność znajomości aktualnego stosunku izotopu ^{210}Pb do ^{210}Po w badanej próbce, ponieważ nie zawsze, a w szczególności w materiałach pochodzenia biologicznego, można założyć istnienie stanu trwałej równowagi promieniotwórczej między tymi nuklidami. Najbezpieczniejszym rozwiązaniem jest przeprowadzenie ekstrakcji polonu z badanej próbki po upływie pięciu okresów połowicznego rozpadu izotopu ^{210}Po od jej pobrania, co daje prawie dwa lata. Tak długi czas oczekiwania na wynik badania jest nie do przyjęcia z wielu względów.

3. METODA ZASTOSOWANA W ŚLĄSKIM CENTRUM RADIOMETRII ŚRODOWISKOWEJ GŁÓWNEGO INSTYTUTU GÓRNICTWA

W Śląskim Centrum Radiometrii Środowiskowej ^{210}Pb rutynowo oznacza się w materiałach stałych metodą spektrometrii promieniowania gamma. Jak zaznaczono wcześniej, głównym ograniczeniem stosowania tej metody jest zjawisko samopochłaniania niskoenergetycznego promieniowania gamma w materiale próbki. Zjawisko to wywołane jest głównie absorpcją fotoelektryczną oraz rozpraszaniem Comptona. Intensywność samopochłaniania wzrasta proporcjonalnie do gęstości próbki oraz zawartości pierwiastków ciężkich (a więc wraz z efektywną liczbą atomową). W rezultacie promieniowanie gamma, emitowane przez zawarte w próbce nuklidy ołowiu, ulega osłabieniu w stopniu zależnym od

rodzaju materiału, z którego została pobrana badana próbka. Fakt ten uniemożliwia poprawne oznaczenie stężenia promieniotwórczego tego nuklidu na podstawie krzywej wydajności detektora, przygotowanej na podstawie wzorca o innym składzie chemicznym niż badana próbka. W związku z powyższym konieczne staje się wyznaczenie poprawki na samopochłanianie dla każdej badanej próbki. W ŚCRŚ wyznacza się ją, korzystając z tzw. metody transmisyjnej, polegającej na pomiarze całkowitego masowego współczynnika absorpcji. Następnie oblicza się poprawkę, którą wykorzystuje się do skorygowania wyniku aktywności ^{210}Pb w badanej próbce, uzyskanego w ramach rutynowego pomiaru. W literaturze można znaleźć kilka wariantów odpowiedniej formuły obliczeniowej (Cutshall, Larsen, Olsen 1980; Khater, Ebaid 2008; Jodłowski 2006). Ze względu na wątpliwości, jakie budzi poprawność obliczeń przeprowadzonych w przywołanych pracach, poniżej przedstawiono dokładne wyprowadzenie wzoru na poprawkę C .

Do badań wzięto próbkę materiału zawierającego ^{210}Pb w kształcie płaskiego walca (rys. 2), leżącą bezpośrednio na płaskim detektorze. Założono, że nuklidy ołowiu są rozłożone równomiernie w całej objętości próbki.



Rys. 2. Próbkę w geometrii cylindrycznej (szalka) o wysokości H

Całą objętość próbki podzielono płaszczyzną równoległą do podstawy na i nieskończenie małych warstw o wysokości dx . Dla każdej tak wyodrębnionej warstwy można założyć, że generowana w niej, w wyniku rozpadu nuklidów ołowiu, liczba kwantów promieniowania gamma (z których część ulegnie samoabsorpcji) będzie równa

$$\frac{I_R}{H} dx \quad (1)$$

gdzie:

I_R – rzeczywista liczba kwantów promieniowania gamma, generowana w całej objętości próbki (liczba ta wynika wprost z aktywności próbki),

H – wysokość próbki,

dx – grubość i -tej warstwy.

Klasycznie osłabienie wiązki kwantów promieniowania gamma w materii można opisać za pomocą (zmodyfikowanego) prawa Lamberta-Beera

$$I = I_0 e^{-\mu x} \quad (2)$$

gdzie:

I – natężenie wiązki po przejściu przez ośrodek o gęstości ρ [$\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$] i grubości x [cm],

I_0 – natężenie wiązki kwantów promieniowania gamma padającej na dany ośrodek,

μ – masowy współczynnik osłabienia [$\text{cm}^2\cdot\text{g}^{-1}$].

Zgodnie z wzorem (2) liczba kwantów promieniowania gamma ($I_{p,i}$) zarejestrowanych w detektorze od i -tej warstwy próbki znajdującej się w odległości x od detektora równa się

$$I_{p,i} = \frac{I_R}{H} dx e^{-\mu p x} \quad (3)$$

Sumując obliczone w ten sposób liczby kwantów promieniowania gamma dla wszystkich i warstw, otrzymuje się

$$I_p = \int_0^H \frac{I_R}{H} e^{-\mu p x} dx \quad (4)$$

Rozwiązaniem całki (4) jest

$$I_p = I_R \frac{1 - e^{-\mu p H}}{\mu p H} \quad (5)$$

Stąd

$$C = \frac{I_R}{I_p} = \frac{\mu p H}{1 - e^{-\mu p H}} \quad (6)$$

Wyznaczoną na podstawie powyższego wzoru wielkość C nazywa się poprawką na samoabsorpcję.

W eksperymencie transmisyjnym (przeprowadzonym wg metody Cutshalla) bezpośrednio na próbce kładzie się źródło promieniowania gamma o energii odpowiadającej energii, dla której należy wyznaczyć poprawkę, i mierzy się liczbę impulsów zarejestrowanych w detektorze (I_{zp}). Następnie powtarza się eksperyment po usunięciu próbki tak, aby źródło pozostało w tej samej odległości od detektora, rejestrując liczbę impulsów (I_{z0}). Korzystając powtórnie z prawa Lamberta-Beera (2), otrzymuje się

$$I_{zp} = I_{z0} e^{-\mu p H} \quad (7)$$

lub

$$\frac{I_{zp}}{I_{z0}} = e^{-\mu p H} \quad (8)$$

Logarytmując formalnie równania (7) i (8) uzyskuje się

$$\mu p H = \ln\left(\frac{I_{z0}}{I_{zp}}\right) \quad (9)$$

Podstawiając (8) i (9) do (6), otrzymuje się

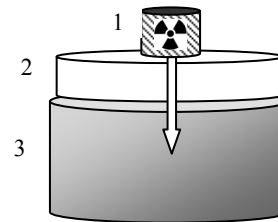
$$C = \frac{\mu p H}{1 - e^{-\mu p H}} = \frac{\ln\left(\frac{I_{z0}}{I_{zp}}\right)}{1 - \frac{I_{zp}}{I_{z0}}} \quad (10)$$

lub bezpośrednio dla pomiarów względem wzorca

$$C = \frac{\ln\left(\frac{I_w}{I_p}\right)}{1 - \frac{I_p}{I_w}} \quad (11)$$

gdzie I_w , I_p to liczby zliczeń rejestrowanych w detektorze przy prześwietlaniu odpowiednio wzorca i próbki.

Wynik oznaczenia uzyskany bezpośrednio z rutynowego pomiaru należy pomnożyć przez obliczoną wartość poprawki C . W realizacji tej metody w celu wyznaczenia poprawki dla ^{210}Pb kluczowym elementem jest zastosowanie silnie skolimowanej wiązki promieniowania o energii 46,5 keV. W tym celu w ŚCRŚ wykorzystano punktowe źródło ^{210}Pb o aktywności 208 ($\pm 4\%$) kBq. Źródło ma kształt płaskiego dysku (o wymiarach: 25 mm – średnica, 3 mm – wysokość) wykonanego z pleksiglasu, z umieszczonym centralnie materiałem promieniotwórczym (ok. 1×1 mm). Zamknięte w ołowianym kolimatorze, umieszczone zostało bezpośrednio nad próbką (rys. 3).



Rys. 3. Układ pomiarowy zawierający źródło ^{210}Pb w kolimatorze (1), badaną próbkę w cylindrycznym naczyniu pomiarowym (2) oraz detektor germanowy (3)

Badana próbka znajdowała się w cylindrycznym pojemniku pomiarowym o wymiarach: 10 mm – wysokość, 90 mm – średnica, rutynowo stosowanym do pomiarów metodą spektrometrii promieniowania gamma. Wykorzystana do analizy ilościowej krzywa wydajności detektora została wyznaczona na podstawie wzorca pomiarowego zawierającego certyfikowany materiał odniesienia RGU-1, wytwarzany przez Międzynarodową Agencję Energii Atomowej (IAEA) w Wiedniu, zawierający nuklidy uranowego szeregu promieniotwórczego znajdujące się w wiekowej równowadze promieniotwórczej. Gęstość materiału wzorcowego wynosi $1,15 \text{ g/cm}^3$.

W eksperymentach używano detektora germanowego typu BEGe (*broad energy*) produkcji firmy Canberra. Detektor ma kształt płaskiego walca o średnicy 81 mm i wysokości 31 mm. Powierzchnia aktywna detektora to około 5000 mm^2 . Rozdzielczość pików (FWHM) dla źródła kobaltu ^{60}Co wynosi: 0,75 keV – dla linii 122 keV oraz 2,2 keV – dla linii 1332,5 keV. Rozdzielczość dla linii 46,5 keV (^{210}Pb) wynosiła typowo 0,60 keV.

4. WYNIKI BADAŃ

Wykonano pomiary liniowego współczynnika absorpcji oraz na jego podstawie obliczono poprawkę C dla 60 różnych próbek osadów kopalnianych. Badane próbki charakteryzowały się szerokim zakresem stężenia promieniotwórczego izotopów radu i ołowiu:

- ^{226}Ra : 41,7–62 230 Bq/kg,
- ^{228}Ra : 16,7–22 250 Bq/kg,
- ^{210}Pb 56,2–6040 (bez korekcji) lub 42,2–11 700 (z korekcją) Bq/kg.

Gęstość badanych próbek wahała się w granicach: $0,45\text{--}1,40 \text{ g/cm}^3$. Szczegółowe wyniki uzyskanych pomiarów przedstawiono w tabeli 2.

Tabela 2. Wyniki pomiarów współczynnika poprawkowego

Lp.	²²⁶ Ra Bq/kg	²²⁸ Ra Bq/kg	²¹⁰ Pb Bq/kg	²¹⁰ Pb* Bq/kg	Gęstość g/cm ³	C	C** cm ² /g
1	17190 ±440	72,9 ±9,9	6040 ±320	8330 ±610	0,99	1,38	1,10
2	2755 ±72	44 ±12	2110 ±120	1920 ±150	0,96	0,91	0,74
3	1531 ±39	56,9 ±4,4	1249 ±58	1199 ±82	0,98	0,96	0,77
4	850 ±26	44,3 ±8,8	896 ±69	725 ±67	0,86	0,81	0,74
5	616 ±19	36,7 ±8,7	607 ±59	491 ±54	0,89	0,81	0,71
6	443 ±12	38,9 ±2,3	355 ±17	273 ±19	0,96	0,77	0,63
7	950 ±28	48,2 ±4,3	758 ±42	598 ±45	0,82	0,79	0,76
8	2018 ±19	40,9 ±5,1	1621 ±77	1590 ±110	1,08	0,98	0,72
9	348 ±9	31,9 ±2,2	327 ±19	297 ±23	1,21	0,91	0,59
10	230 ±8	34,1 ±2,7	249 ±16	209 ±18	0,86	0,84	0,77
11	2692 ±69	39,2 ±6,3	1520 ±80	1380 ±110	0,97	0,91	0,74
12	1497 ±37	32 ±3,4	1015 ±47	954 ±66	1,06	0,94	0,70
13	747 ±20	26,4 ±4,1	502 ±34	416 ±36	1,07	0,83	0,61
14	5530 ±150	47,9 ±5,6	3230 ±150	3130 ±210	0,94	0,97	0,81
15	12800 ±300	89 ±22	4640 ±220	5710 ±390	1,13	1,23	0,85
16	301 ±8	19,5 ±1,7	214 ±13	192 ±16	1,38	0,90	0,51
17	664 ±21	33,9 ±5,9	719 ±46	560 ±46	0,75	0,78	0,82
18	557 ±16	40,2 ±3,2	642 ±22	526 ±32	0,84	0,82	0,77
19	91,5 ±3,1	29,4 ±2,9	133 ±11	102 ±10	0,71	0,77	0,85
20	41,7 ±1,7	27,1 ±2,8	56,2 ±5,7	42 ±5	0,56	0,75	1,06
21	172 ±7	179 ±12	84 ±15	64 ±12	0,67	0,77	0,90
22	1476 ±26	602 ±27	186 ±29	206 ±34	1,40	1,11	0,62
23	23950 ±640	7680 ±380	1410 ±110	3250 ±300	0,90	2,31	2,01
24	2137 ±83	1028 ±67	675 ±83	614 ±82	0,55	0,91	1,30
25	4590 ±120	1173 ±60	860 ±81	808 ±87	0,75	0,94	0,99
26	429 ±17	123 ±9	258 ±22	201 ±20	0,50	0,78	1,22
27	2631 ±85	888 ±50	312 ±38	283 ±38	0,68	0,91	1,05
28	7010 ±190	2150 ±110	661 ±55	978 ±95	0,72	1,48	1,61
29	9610 ±280	3280 ±170	880 ±83	1360 ±150	0,66	1,55	1,86
30	1178 ±41	432 ±26	176 ±22	168 ±23	0,56	0,96	1,36
31	3660 ±100	39,8 ±9,1	2900 ±150	2690 ±190	0,89	0,93	0,82
32	62200 ±2800	10590 ±750	1640 ±230	6460 ±950	0,45	3,95	6,96
33	3720 ±120	1520 ±80	886 ±48	770 ±57	0,73	0,87	0,93
34	716 ±17	495 ±23	185 ±21	148 ±19	0,90	0,80	0,70
35	583 ±21	384 ±24	227 ±21	199 ±22	0,62	0,88	1,11
36	35770 ±820	7280 ±330	2013 ±94	11720 ±810	0,85	5,82	5,36
37	2044 ±58	377 ±21	562 ±36	764 ±63	0,85	1,36	1,27
38	755 ±28	222 ±15	612 ±39	501 ±41	0,60	0,82	1,07
39	1779 ±63	1112 ±69	912 ±85	784 ±85	0,64	0,86	1,06
40	597 ±20	205 ±14	410 ±37	364 ±37	0,79	0,88	0,87
41	8030 ±270	2893 ±170	720 ±160	1040 ±240	0,65	1,45	1,77
42	1208 ±46	377 ±24	215 ±21	283 ±32	0,54	1,32	1,92
43	956 ±31	227 ±15	375 ±40	363 ±43	0,74	0,97	1,03
44	939 ±25	382 ±21	431 ±42	387 ±43	1,09	0,90	0,65
45	368 ±10	152 ±8	216 ±14	198 ±17	1,10	0,92	0,66
46	58,4 ±1,5	16,7 ±0,8	56,7 ±2,9	48,8 ±4,1	0,80	0,86	0,85
47	1921 ±72	840 ±55	829 ±90	688 ±83	0,58	0,83	1,13
48	6060 ±260	2840 ±200	2220 ±180	1820 ±180	0,49	0,82	1,31
49	3246 ± 100	695 ±40	516 ±62	1000 ±130	0,74	1,93	2,06
50	213 ±6	144 ±7	75,5 ±8,3	84 ±11	1,30	1,12	0,68
51	8390 ±250	4770 ±250	927 ±69	1056 ±95	0,79	1,14	1,13
52	25460 ±590	15000 ±700	1048 ±50	3370 ±240	1,18	3,22	2,14
53	44000 ±1100	27300 ±1300	3540 ±370	8100 ±940	1,09	2,29	1,66
54	6800 ±300	3170 ±220	2720 ±200	2250 ±200	0,50	0,83	1,31
55	494 ±27	202 ±14	489 ±33	386 ±33	0,50	0,79	1,25
56	6510 ±160	2580 ±130	131 ± 30	317 ±75	1,14	2,42	1,67
57	29000 ±660	3490 ±160	1190 ±54	5560 ±380	1,23	4,67	2,99
58	48100 ±110	9080 ±420	498 ±59	3120 ±400	1,26	6,26	3,90
59	9760 ±310	780 ±50	3320 ±190	3750 ±290	0,70	1,13	1,27
60	54200 ±1300	24300 ±1200	1593 ±93	7440 ±580	1,23	4,67	2,99

* Wartość stężenia ²¹⁰Pb skorygowana przez wyznaczony współczynnik C, ** Wartość współczynnika C znormalizowana do jednostkowej gęstości powierzchniowej.

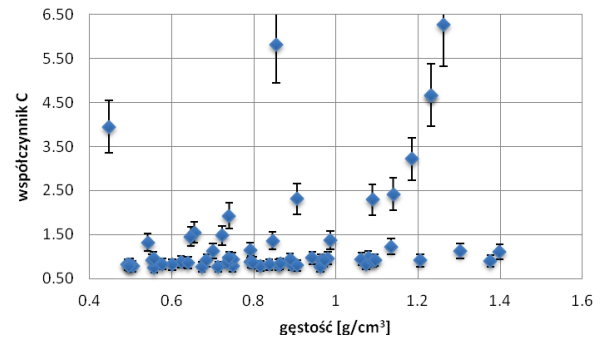
Obliczone na podstawie wyników eksperymentu transmisyjnego wartości współczynnika poprawkowego C** obejmują zakres 0,51–6,96 cm²/g (wartości współczynnika C zostały znormalizowane do jednostkowej gęstości, aby mogły być

porównywane z wszystkimi badanymi próbkami). Wartości współczynnika poprawkowego mniejsze od 1 oznaczają, że zjawisko samopochłaniania w próbce odbywa się z mniejszym natężeniem w porównaniu do używanego wzorca.

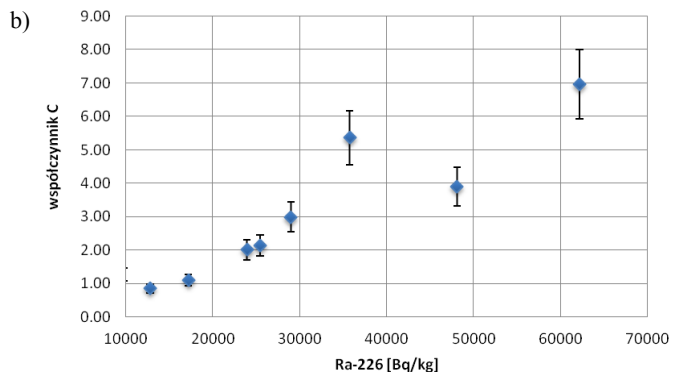
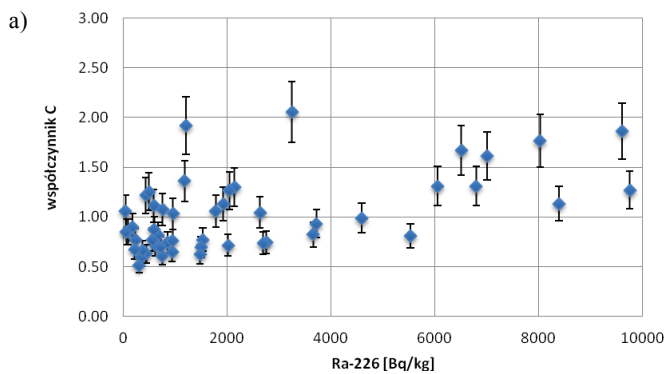
W większości przypadków (ok. 85%) współczynnik poprawkowy wahał się w granicach 0,5–1,5 cm²/g, w pozostałych przypadkach jego wartość znacznie przewyższała 1,0. Ze względu na wynik oceny zagrożenia radiacyjnego wyznaczona poprawka ma szczególne znaczenie dla próbek zawierających duże stężenia ołowiu. Jej uwzględnienie może prowadzić w rezultacie do zmiany kategorii zagrożenia radiacyjnego danego wyrobiska (stanowiska pracy).

Rysunek 4 obrazuje zależność, łączącą wartość współczynnika poprawkowego i gęstość próbki. Trudno odszukać jednoznaczny relację między tymi wielkościami, co oznacza, że wielkość współczynnika *C* nie zależy wprost od gęstości, a przynajmniej nie tylko od niej. Poszukiwano również zależności między wielkością współczynnika poprawkowego a stężeniem nuklidów promieniotwórczych w próbce. Na rysunku 5a–b przedstawiono relację między stężeniem

²²⁶Ra a wartością współczynnika *C*. Dla poprawienia czytelności rysunku zakres danych podzielono na dwie grupy: 0–10 000 oraz powyżej 10 000 Bq/kg ²²⁶Ra.



Rys. 4. Zależność wielkości współczynnika *C* (nieznormalizowanego) od gęstości próbki



Rys. 5. Zależność wielkości współczynnika *C* od stężenia ²²⁶Ra: a – w zakresie do 10 kBq/kg, b – w zakresie od 10 do 70 kBq/kg

Z przedstawionych wykresów (rys. 5a–b) wynika, że wraz ze wzrostem stężenia ²²⁶Ra rośnie również wartość współczynnika poprawkowego *C*. Fakt ten można tłumaczyć mechanizmem powstawania osadów wód dołowych. Otóż większość osadów powstaje jako skutek współstrącenia radu i baru w postaci siarczynu barowo-radowego. Powinna zatem istnieć korelacja między stężeniem ²²⁶Ra a zawartością baru (Ba). W tym samym procesie również mogą być strącane inne metale, co w rezultacie przekłada się na intensyfikację zjawiska samopochłaniania w materiale próbki.

5. WNIOSKI

²¹⁰Pb oraz jego pochodne są emiternami trzech rodzajów promieniowania jonizującego: α , β oraz γ . Wzajemny stosunek okresów połowicznego rozpadu ²¹⁰Pb, ²¹⁰Bi i ²¹⁰Po, tworzących podszereg promieniotwórczego szeregu ²³⁸U, powoduje, że nuklidy te stosunkowo szybko osiągają stan wiekowej równowagi promieniotwórczej. Właściwości fizyczne i geochemiczne ołowiu sprawiają, że w warunkach, w których istnieje możliwość wymiany materii z otoczeniem, jego stężenia w różnych mediach nie muszą zależeć od stężenia izotopów macierzystych. ²¹⁰Pb stanowi więc niezależny element wśród czynników narażenia radiacyjnego. Uzasadniona staje się konieczność dokładnego monitorowania jego stężenia, szczególnie w aspekcie osadów powstających z wód dołowych.

Zbadano 60 próbek osadów wód dołowych pod kątem zjawiska samopochłaniania dla energii 46,5 keV (²¹⁰Pb). Na

podstawie przeprowadzonych pomiarów sformułowano następujące wnioski:

- zjawisko samopochłaniania w badanych próbkach osadów jest istotne i w sposób znaczący wpływa na wynik oznaczenia ołowiu ²¹⁰Pb w tych próbkach,
- obliczone współczynniki poprawkowe *C* wahają się w granicach 0,51–6,96 cm²/g,
- na podstawie zależności między wartością współczynnika *C* a stężeniem ²²⁶Ra w próbce, można stwierdzić, że istotny wpływ na wielkość samopochłaniania w próbce ma obecność baru i prawdopodobnie innych metali.

Duża rozpiętość wartości współczynnika poprawkowego *C* wskazuje na konieczność uwzględnienia jego stosowania w rutynowych pomiarach¹. Tym bardziej, że najistotniejsze (z punktu widzenia ochrony radiologicznej) osady, cechujące się dużymi stężeniami nuklidów promieniotwórczych, charakteryzują się jednocześnie znacznie większą od jedności wartością współczynnika poprawkowego *C*. Dla tych właśnie osadów istnieje największe ryzyko popełnienia błędu w oznaczaniu stężenia ²¹⁰Pb. Po wprowadzeniu zmian do systemu kontroli zagrożenia radiacyjnego górników, polegających na uwzględnieniu stężenia ²¹⁰Pb w osadach kopalnianych, brak analizy zjawiska samopochłaniania w próbce może prowadzić do istotnych błędów w jego ocenie.

¹ W roku 2012 pomiar stężenia ²¹⁰Pb metodą spektrometrii promieniowania gamma z uwzględnieniem poprawki wyznaczonej metodą transmisyjną został włączony w zakres akredytacji Śląskiego Centrum Radiometrii Środowiskowej (Zespołu Laboratoriów Badawczych i Wzorcujących GIG).

Literatura

1. Clayton R.F., Bradley E.J. (1995): A cost effective method for the determination of ^{210}Po and ^{210}Pb in environmental materials. *The Science of the Total Environment* No 173/174, s. 23–28.
2. Cutshall N.H., Larsen I.L., Olsen C.R. (1983): *Nuclear Instruments and Methods*, No. 206, s. 309.
3. Jodłowski P. (2006): Self-absorption correction in gamma-ray spectrometry of environmental samples – an overview of methods and correction values obtained for the selected geometries. *Nukleonika* No 51, s. 21–25.
4. Khater A.E.M., Ebaid Y.Y. (2008): A simplified gamma-ray self-attenuation correction in bulk samples. *Applied Radiation and Isotopes* No 66, s. 407–413.
5. Michalik B. (2011): Promieniotwórcze skażenie środowiska powodowane działalnością podziemnych zakładów górniczych. *Prace Naukowe Głównego Instytutu Górnictwa* nr 883.
6. Radiation Protection 95. Reference levels for workplaces processing materials with enhanced levels of naturally occurring radionuclides, European Commission 1999.
7. Radiologiczny Atlas Polski. Warszawa, Państwowa Agencja Atomistyki 1997.
8. Rozporządzenie (2002): Rozporządzenie Ministra Gospodarki z dnia 28 czerwca 2002 r. w sprawie bezpieczeństwa i higieny pracy, prowadzenia ruchu oraz specjalistycznego zabezpieczenia przeciwpożarowego w podziemnych zakładach górniczych. *Dz. U.* 02 139 1169.
9. Vajda N., LaRosa J., Zeisler R., Danesi P., Kis-Benedek G. (1997): A novel technique for the simultaneous determination of ^{210}Pb and ^{210}Po using a crown ether. *Journal of Environmental Radioactivity* Vol. 37, No 3, s. 255–372.