

文章编号:1673-0062(2015)01-0037-04

硫酸渣辐射屏蔽材料制备与效果评价

王 烨¹, 张晓文^{1,2*}, 王续琨¹, 钟永明¹, 吕俊文^{1,2}, 彭 莹^{1,2}, 李 密^{1,2}

(1. 南华大学 环境保护与安全工程学院, 湖南 衡阳 421001;
2. 南华大学 放射性三废处理与处置重点实验室, 湖南 衡阳 421001)

摘 要:采用直接掺杂法分别制备了硫酸渣—混凝土、硫酸渣—粉煤灰—混凝土和铅—混凝土屏蔽材料, 用 NaI(Tl)探测器、多道脉冲幅度分析仪和 WINXCOM 软件分析它们对 γ 射线的辐射防护能力. 结果表明:硫酸渣制备的屏蔽材料辐射防护性能优于已有的石灰岩制备的屏蔽材料和 FPPB 屏蔽材料, 可用作射线屏蔽材料, 并有望实现固体废弃物的合理利用.

关键词:硫酸渣; 粉煤灰; 屏蔽材料; 屏蔽性能

中图分类号:TL7 **文献标识码:**B

Preparation and Effect Assessment of Gamma Ray Shielding Materials Containing Pyrite Cinder

WANG Ye¹, ZHANG Xiao-wen^{1,2*}, WANG Xu-kun¹, ZHONG Yong-ming¹,
LV Jun-wen^{1,2}, PENG Ying^{1,2}, LI Mi^{1,2}

(1. School of Environmental Protection and Safety Engineering, University of South China, Hengyang, Hunan 421001, China; 2. Key Laboratory of Radioactive Waste Treatment and Disposal, University of South China, Hengyang, Hunan 421001, China)

Abstract: Pyrite cinder-concrete, pyrite cinder-fly ash-concrete and lead-concrete shielding materials have been prepared by means of direct doping. NaI (Tl) detectors, multi-channel pulse amplitude analyzer and WinXCOM software were used to test and analyze their radiation shielding property. The results show that the radiation shielding property of shielding material containing pyrite cinder is better than the existing shielding materials prepared from limestone and FPPB. Consequently, it can be used effectively as shielding materials against gamma radiation, and is expected to achieve the goal of rational utilization of solid waste.

key words: pyrite cinder; fly ash; shielding material; shielding property

收稿日期: 2014-04-24

作者简介: 王 烨(1990-), 女, 湖南衡阳人, 南华大学环境保护与安全工程学院研究生. 主要研究方向: 铀矿冶放射性污染监测与控制技术. * 通讯作者.

随着核能利用的发展,各种放射性射线的广泛使用对人体健康和环境造成了极大威胁,研制辐射防护材料以最大限度地降低射线的各种危害是一项十分重要和迫切的工作.屏蔽射线的材料有很多,如水、土壤、岩石、混凝土、铁、铅、铀、钨、铅玻璃^[1]、铅硼聚乙烯^[2]、铝基复合材料^[3]、环氧树脂基复合材料^[4]、高比重合金材料^[5]、防辐射纤维、橡胶^[6]等.在众多的辐射防护材料中,混凝土材料是目前使用最为广泛的防辐射材料^[7].含有高原子序数的物质对于 γ 射线的屏蔽效果好,所以常用铁和铅等作屏蔽材料^[8],但用金属屏蔽会使成本增加.硫酸生产产生的硫酸渣和电厂粉煤灰都是工业固体废弃物,如果利用它们作为制备覆盖屏蔽材料的原料或添加物,不仅可以节约水泥和细骨料,改善屏蔽性能,而且有望实现废物的综合利用和保护环境的目的^[9].为此,利用含氧化铁的硫酸渣和电厂粉煤灰制备了各种硫酸渣—混凝土、硫酸渣—粉煤灰—混凝土和铅—混凝土屏蔽材料,对其屏蔽性能进行了测试与评价.

1 实验部分

1.1 实验原材料与仪器

原材料:PC32.5 水泥;河砂,细度模数为 2.6,堆积密度为 $1.45 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$;粉煤灰,未阳大唐电厂固体废弃物;硫酸渣, Fe_2O_3 含量 64.7%; PbO ,分析纯,天津市博迪化工有限公司.

实验装置:核技术应用物理实验平台,中核(北京)核仪器厂.

1.2 屏蔽混凝土的制备

制备不同添加比例的硫酸渣—混凝土、硫酸渣—粉煤灰—混凝土和铅—混凝土屏蔽材料,配合比分别见表 1、表 2、表 3.将物料混合均匀后,倒入标准实验模具中,震密实,24 h 后脱模.之后,将样品在相对湿度为 90% 的室内养护 28 d.

表 1 硫酸渣—混凝土配合比				
Table 1 Mixture proportion of pyrite cinder-concrete				
编号	水泥	砂	水	硫酸渣
C-0	1	5.27	1.16	0.00
C-1	1	5.27	1.16	0.05
C-2	1	5.27	1.16	0.10
C-3	1	5.27	1.16	0.15
C-4	1	5.27	1.16	0.20
C-5	1	5.27	1.16	0.25

表 2 硫酸渣—粉煤灰—混凝土混合比					
Table 2 Mixture proportion of pyrite cinder-fly ash-concrete					
编号	水泥	粉煤灰	砂	水	硫酸渣
CF-0	0.8	0.2	5.27	1.16	0.00
CF-1	0.8	0.2	5.27	1.16	0.05
CF-2	0.8	0.2	5.27	1.16	0.10
CF-3	0.8	0.2	5.27	1.16	0.15
CF-4	0.8	0.2	5.27	1.16	0.20
CF-5	0.8	0.2	5.27	1.16	0.25

表 3 铅—混凝土配合比				
Table 3 Mixture proportion of lead-concrete				
编号	水泥	砂	水	PbO
CP-0	1	5.27	1.16	0.00
CP-1	1	5.27	1.16	0.05
CP-2	1	5.27	1.16	0.10
CP-3	1	5.27	1.16	0.15
CP-4	1	5.27	1.16	0.20
CP-5	1	5.27	1.16	0.25

1.3 辐射屏蔽性能测试

实验采用的测试平台包含 NaI(Tl) 探测器和多道脉冲幅度分析仪及微居级¹³⁷Cs 放射源,实验装置如图 1 所示.

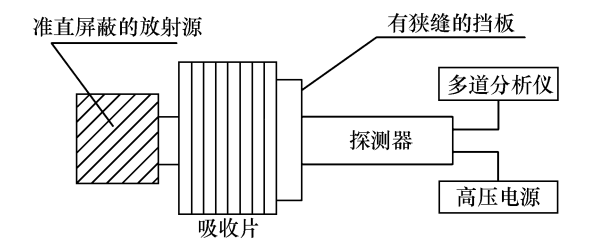


图 1 实验装置示意图
Fig.1 Schematic draw of the experimental setup

在放射源与探测器中间有一中间带孔的铅砖准直器,前半部分铅砖对源进行校准,后半部分铅砖吸收 γ 射线与吸收材料发生康普顿效应产生偏转的那一部分射线,从而确保穿过吸收材料的射线是一窄束射线.

测试分析方法: γ 光子与探测器中物质相互作用后产生电子,探测器通过测量电子能量产生相应的脉冲信号计数,比较放射源穿过吸收材料前后的相同时间内到达闪烁探头的光子数来分析吸收材料对 γ 射线的屏蔽效果.样品置于标准 γ

点源和探测器之间,在有、无样品的情况下分别测量 20.000 s,所有样品均测量五次.各参数利用式(1)~式(3)计算.

$$I = I_0 e^{-\mu d}$$
$$\mu = \frac{1}{d} \ln \left(\frac{I_0}{I} \right)$$

(1)

(2)

式中: I 为射线经过某一介质厚度的仪器净读数; I_0 为起始射线未经过介质的仪器净读数; d 为介质厚度,单位为 cm; μ 为 γ 射线经过介质的线性吸收系数,单位为 cm^{-1} .

半吸收厚度:使射线强度减少一半时的物质厚度,即

$$d_{\frac{1}{2}} = \frac{\ln 2}{\mu}$$

(3)

XCOM 数据库可提供相干散射、非相干散射、光电吸收和电子对效应的散射截面的数据^[10].将材料的化学构成作为输入数据,通过 WINXCOM 程序可得到光子能为 1 KeV ~ 10 GeV 时材料的质量衰减系数(μ/ρ),即质量衰减系数的理论计算值.

2 结果与讨论

在源与探测器之间分别放置屏蔽材料,用探测器分别记录 γ 射线透过屏蔽材料以后的强度,然后根据式(2)、式(3)计算屏蔽材料的吸收系数、半吸收厚度,其结果见图 2、图 3.

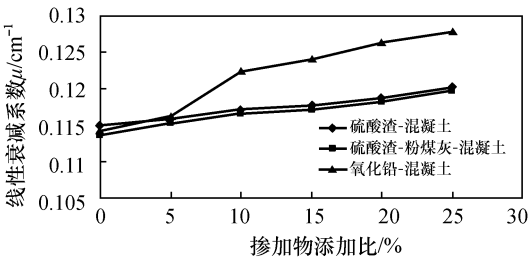


图 2 不同添加比和线性衰减系数的关系
Fig. 2 Linear attenuation coefficient vs adding ratio in concrete

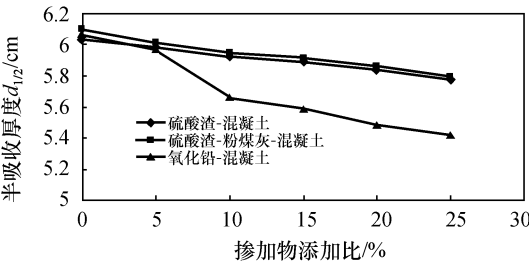


图 3 不同添加比和半吸收厚度的关系
Fig. 3 HVL vs adding ratio in concrete

从图 2 可以看出,随着混凝土中硫酸渣、氧化铅添加比例的增加,硫酸渣—混凝土、硫酸渣—粉煤灰—混凝土和氧化铅—混凝土的 γ 射线衰减系数逐渐增大,其屏蔽效果愈好,这是由于混凝土的比重在逐渐增大.由于铅的比重最大,因此氧化铅—混凝土的线性衰减系数也最大,其屏蔽效果最好.硫酸渣—粉煤灰—混凝土的屏蔽效果略低于硫酸渣—混凝土,是因为粉煤灰代替了部分水泥的原因.

在相同的能量下, γ 射线透射率是确定屏蔽材料厚度的参考依据之一^[11].图 3 对硫酸渣—混凝土、硫酸渣—粉煤灰—混凝土和氧化铅—混凝土的半值层厚度进行了比较.随着金属氧化物添加比的增加,屏蔽材料的半值层厚度逐渐减小,屏蔽效果也越好.氧化铅—混凝土半值层距离最小,硫酸渣—粉煤灰—混凝土半值层距离最大.硫酸渣—混凝土和硫酸渣—粉煤灰—混凝土的伽马射线屏蔽效果没有明显的变化,是因为硫酸渣的添加范围仅为 0% ~ 25%.

由于密度是衡量材料屏蔽效果的重要指标之一,因此以线性衰减系数作材料密度函数,见图 4.由图可见线性衰减系数值随着材料密度增加而增加,证实了 γ 射线屏蔽效果与材料密度的相关性.

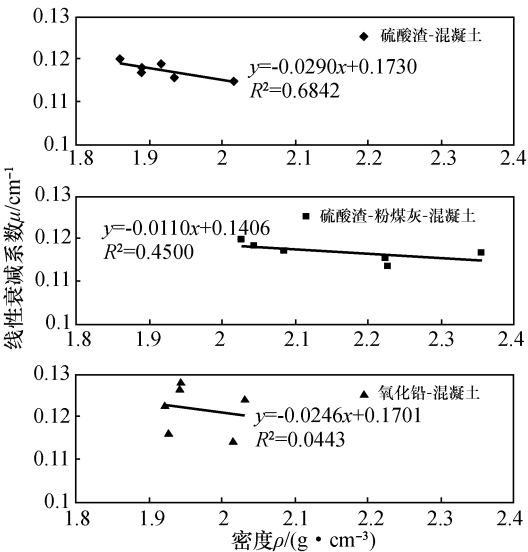


图 4 密度与线性衰减系数关系
Fig. 4 Linear attenuation coefficient vs concrete density

为了揭示元素构成对材料屏蔽效果的影响,以及验证实验值与理论值的相关性,将屏蔽材料

的化学构成作为输入数据,通过 WinXCOM 程序输出得到光子能 662 KeV 时三种不同混凝土屏蔽材料的质量衰减系数 (μ/ρ),见图 5. 将每个样品总质量衰减系数的理论值和实验值进行比较,发现硫酸渣—混凝土、硫酸渣—粉煤灰—混凝土和氧化铅—混凝土的相关系数分别为 0.886 5、0.912 1、0.927 4,理论值和实验值具有很好的一致性. 由含氧化铁的硫酸渣制备的硫酸渣—混凝土、硫酸渣—粉煤灰—混凝土和铅—混凝土屏蔽材料,它们的总质量衰减系数分别为 $0.064\ 5\ \text{cm}^2/\text{g}$ 、 $0.059\ 1\ \text{cm}^2/\text{g}$ 、 $0.065\ 8\ \text{cm}^2/\text{g}$,屏蔽效果均较好,比由石灰岩^[12]制备的屏蔽材料及一种由农业纤维和工业塑料废物制备的 FPPB^[13]材料的总质量衰减系数大,二者分别为 $0.059\ \text{cm}^2/\text{g}$ 、 $0.054\ 6\ \text{cm}^2/\text{g}$. 由此可见,硫酸渣制备的硫酸渣—混凝土、硫酸渣—粉煤灰—混凝土和铅—混凝土屏蔽材料是较好的伽马射线屏蔽材料.

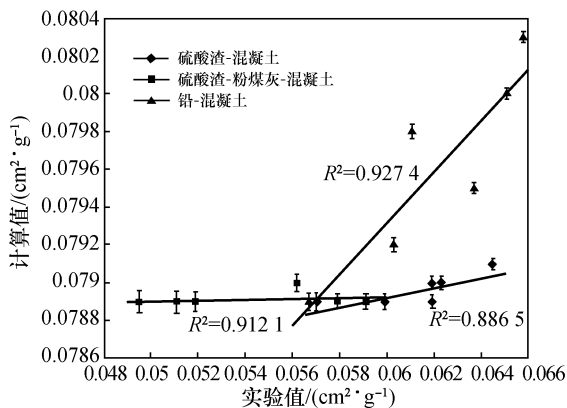


图 5 总衰减系数理论值和实验值比较

Fig. 5 Comparison of theoretical and experimental values of total mass attenuation coefficients

3 结 论

硫酸渣混凝土屏蔽材料的质量衰减系数实验值和理论值具有很好的一致性. γ 射线辐射防护能力分析表明,硫酸渣和氧化铅比例的增加使得混凝土的比重增大,导致混凝土材料的线性衰减系数递增. 铅—混凝土的屏蔽效果效果最好,其次是硫酸渣—混凝土,较差的是硫酸渣—粉煤灰—混凝土. 三种屏蔽材料的辐射防护性能均优于石灰岩制备的屏蔽材料和 FPPB 屏蔽材料,说明含氧化铁的硫酸渣制备的硫酸渣—混凝土、硫酸渣

—粉煤灰—混凝土和铅—混凝土屏蔽材料是较好的伽马射线屏蔽材料. 因此可将它们有效利用在辐射防护射线屏蔽方面,不仅可以节约水泥和细骨料,改善屏蔽性能,还能达到废弃物的综合利用和环境保护的目的. 由于在混凝土中掺加粉煤灰替代部分水泥,可能会影响混凝土的力学性能,相关的结论将另叙述.

参考文献:

- [1] 马涛,刘宇艳,刘少柱,等. 防辐射材料的研究进展[J]. 高分子通报,2012(9):81-86.
- [2] 李圆圆,朱常桂,代胜平,等. 硼聚乙烯与铅硼聚乙烯屏蔽性能测试与模拟分析[J]. 辐射防护,2013,33(1):26-29.
- [3] 耿林. 辐射防护铝基复合材料的制备工艺及性能的研究[D]. 哈尔滨:哈尔滨工业大学,2005.
- [4] 张亚丽. 环氧树脂基辐射防护材料的制备及性能研究[D]. 南京:南京航空航天大学,2010.
- [5] 何建洪,孙勇,段永华,等. 射线与中子辐射屏蔽材料的研究进展[J]. 材料导报,2011,25(S2):347-351.
- [6] 张瑜,戴耀东,常树全,等. 聚丙烯酸铅辐射防护材料的制备及性能研究[J]. 物理学报,2009,58(9):713-717.
- [7] 潘智生,赵晖,寇世聪. 防辐射混凝土研究现状、存在问题及发展趋势[J]. 武汉理工大学学报,2011,33(1):45-51.
- [8] Erdem M, Baykara O, Dogru M, et al. A novel shielding material prepared from solid waste containing lead for Gamma ray[J]. Radiation Physics and Chemistry, 2010, 79(9):917-922.
- [9] 李艺. 矿物掺合料再生混凝土抗压强度及非破损检测试验[D]. 延边:延边大学,2012.
- [10] Akkurt I, Akyildirim H, Mavi B, et al. Radiation shielding of concrete containing zeolite[J]. Radiation Measurements, 2010, 45(7):827-830.
- [11] Akkurt I, Akyildirim H, Mavi B, et al. Gamma-ray shielding properties of concrete including barite at different energies[J]. Progress in Nuclear Energy, 2010, 52(7):620-623.
- [12] Awadallah M I, Imran M M A. Experimental investigation of γ -ray attenuation in Jordanian building materials using HPGe-spectrometer[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2007, 94(3):129-136.
- [13] Abdo A E, Ali M A M, Ismail M R. Natural fibre high-density polyethylene and lead oxide composites for radiation shielding[J]. Radiation Physics and Chemistry, 2003, 66(3):185-195.