

POREĐENJE SADRŽAJA RADIONUKLIDA U ELEKTROFILTERSKOM PEPELU, PEPELU I ŠLJACI IZ TE „KOSTOLAC“ I DRUGIH TERMOELEKTRANA

COMPARISON OF THE RADIONUCLIDE CONTENT IN FLY ASH, ASH AND SLAG FROM TE „KOSTOLAC“ AND OTHER COAL-FIRED POWERPLANTS

Jelena D. Krneta Nikolić¹,
Milica Rajačić¹,
Dragana Todorović¹,
Ivana Vukanac¹,
Marija Janković¹,
Gordana Pantelić¹

¹Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Institut za nuklearne nauke „Vinča“, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Srbija

¹Radiation and Environmental Protection Department „Vinča“ Institute of Nuclear Sciences - Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Belgrade, Serbia

Sažetak

U ovom radu su predstavljeni rezultati poređenja sadržaja prirodnih radionuklida u različitim uzorcima elektrofilterskog pepela, pepela sa deponija i šljake. Poređenje je izvršeno između rezultata dobijenih u redovnoj kontroli radioaktivnosti u radnoj i životnoj okolini TE „Kostolac“, TE „Kolubara“ i TE „Nikola Tesla A“, koje sprovodi Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne okoline, Instituta za nuklearne nauke „Vinča“. Na osnovu merenja koncentracije prirodnih radionuklida u uzorcima elektrofilterskog pepela, pepela sa deponija i šljake, kao i na osnovu određenog odnosa između dobijenih vrednosti u uzorcima iz različitih termoelektrana, možemo da zaključimo da je ovaj otpadni materijal iz TE „Kostolac“ izuzetno povoljan kao sirovina koja bi se koristila za proizvodnju građevinskog materijala i da daje približno dvostruko manji uticaj na gama indeks konačnog proizvoda u odnosu na otpadni material iz drugih termoelektrana.

Ključne reči: radioaktivnost; elektrofilterski pepeo; pepeo; sljaka; gama spektrometrija

Summary

This paper presents the results of the comparison between the naturally occurring radionuclide content in different samples of fly ash, ash and slag. The comparison was conducted between the results obtained within the regular control of radioactivity in working and living environment of TE „Kostolac“, TE „Kolubara“ and TE „Nikola Tesla A“, which is performed by the Radiation and Environmental Protection Department of „Vinča“ Institute of Nuclear Sciences. Based on the activity concentration measurement in samples of fly ash, ash from the ash disposal dumps and slag, as well as based on the calculated ratio between the values obtained for different coal fired powerplants, it can be concluded that this waste material from TE „Kostolac“ is promising material as an additive in building material production and that it gives approximately twice as low contribution to the gamma index as those obtained from other two powerplants.

Uvod

Elektrofilterski pepeo, koji se dobija sagorevanjem ugljene prašine u kotlovima za sagorevanje uglja, je fino mleveni, praškasti materijal koji se prenosi dimnim gasom. Pepeo se obično sakuplja pomoću elektrostatičkih taložnika, kontejnera za prikupljanje prašine ili uređaja za mehaničko prikupljanje, poput ciklona. Takođe, glavni produkt sagorevanja uglja je pepeo koji se po pravilu odlaže na deponijama pepela i tamo može stajati godinama utičući na životnu sredinu.

Šljaka, kao još jedan produkt sagorevanja uglja, predstavlja još jedan izvor potencijalnog zagađenja životne okoline.

Moderni trendovi u industriji, održivom razvoju i zaštiti životne sredine stavljaju akcenat na tehnologije koje su sirovinski efikasne, gde se tradicionalni, uvozni sirovinski materijali zamenjuju lokalno dostupnim

sirovinama i industrijskim otpadom, a u koji spadaju i produkti sagorevanja u termoelektranama [1, 2].

Sve vrste pepela i šljake mogu biti značajan izvor sirovine i naći primenu u nekim industrijama, naročito u građevinskoj industriji. Elektrofilterski pepeo je koristan za raznovrsnu primenu, jer je u pitanju pucolan, odnosno silikatni ili alumino-silikatni materijal koji se u izolovanom obliku i u prisustvu vode kombinuje sa kalcijum-hidroksidom (iz kreča, portland cementa ili prašine iz peći za žarenje) i formira smese sa karakteristikama veziva. [3]. Šljaka se, zahvaljujući visokom sadržaju silikata, može upotrebiti u izgradnji puteva, posebno za granične nasipe za puteve i kao dodatak u proizvodnji teških i lakih betona i maltera [4].

Zakon o upravljanju otpadom („Sl.Glasnik RS“, br.36/2009 i 88/2010) Član 38, takođe predviđa mogućnost korišćenja pepela kao sirovine za mnoge proizvode.

Ipak, s obzirom na to da pepeo i šljaka u sebi sadrže koncentrisane prirodne radionuklide, koji se prirodno nalaze u uglju upotrebljenom za sagorevanje, potrebno je razmotriti primenu ovih otpadnih materijala i sa stanovišta zaštite od zračenja. Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet („Službeni glasnik RS“, br 36/2018), definiše gama indekse za građevinski materijal koji mora biti manji od 1. U suprotnom, na osnovu izmerenih vrednosti aktivnosti procenjuje se efektivna doza koja ne sme preći 1 mSv na godišnjem nivou.

Da bi posmatrani materijal bio bezbedan za upotrebu. S obzirom na to da otpadni materijal koji nastaje pri sagorevanju uglja može sadržati značajno povišene koncentracije prirodnih radionuklida, njegovo dodavanje kao sirovine u građevinski materijal može dovesti do toga da budu prevaziđene dozvoljene granice prisustva radionuklida u konačnom proizvodu. S tim u vezi, korisno je ispitati pogodnost korišćenja pepela i šljake iz različitih termoelektrana, kao sirovine u građevinskoj industriji.

U ovom radu su predstavljeni rezultati poređenja sadržaja prirodnih radionuklida u elektrofilterskom pepelu, pepelu sa deponija i šljake. Poređenje je izvršeno između rezultata dobijenih u redovnoj kontroli radioaktivnosti u radnoj i životnoj okolini TE „Kostolac“, TE „Kolubara“ i TE „Nikola Tesla A“, koje sprovodi Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne okoline, Instituta za nuklearne nauke „Vinča“.

Metode rada

Uzorkovanje i priprema uzoraka

U okviru pripreme uzoraka za merenje sadržaja radionuklida, uzorci su sušeni na 105 °C tokom 24h i prosejavani. Osušeni uzorci su zatim preneti u Marineli geometriju, zatopljeni pčelinjim voskom i ostavljeni u laboratoriji na period od 30 dana radi uspostavljanja radioaktivne ravnoteže između ²²⁶Ra, radona i njegovih kratkoživećih potomaka. Uzorkovanje i priprema su sprovedeni u skladu sa međunarodnim preporukama definisanim u [5]

Metoda merenja

Gama spektrometrijska merenja su izvršena na dva High Purity Germanium (HPGe) detektora relativne efikasnosti 20% i 18%, firme Canberra. Rezolucija oba detektora je 1,8 keV na energiji ⁶⁰Co od 1332 keV. Kalibracija efikasnosti detektora je izvršena laboratorijskim referentnim radioaktivnim materijalom, matriksa uglja, u Marineli geometriji, dobijenim pomoću sertifikovanog radioaktivnog rastvora proizvođača Czech Metrology Institute, Praha, 1035-Se-40844-17, tip ERX, ukupne aktivnosti 79,89 kBq na dan 22.12.2017. godine. Radionuklidi sadržani u ovom sertifikovanom radioaktivnom rastvoru su ²⁴¹Am, ¹⁰⁹Cd, ¹³⁹Ce, ⁵⁷Co, ⁶⁰Co, ⁸⁸Y, ⁵¹Cr, ⁸⁵Sr, ¹³⁷Cs i ²¹⁰Pb i njihova aktivnost je sledljiva do BIPM (Bureau International des Poids et Mesures). Pravljenje laboratorijskog referentnog radioaktivnog materijala je izvedeno u skladu sa međunarodnim preporukama [5]

Detektor je povezan sa pratećom elektronikom, a za akviziciju podataka i analizu spektra koristi se standardni softver, Genie 2000 Canberra. Vreme merenja uzoraka i osnovnog nivoa zračenja (fona) je bilo 60000 s. Energetska kalibracija detektora je izvršena korišćenjem standardnih tačkastih izvora ⁶⁰Co i ¹³³Ba.

Koncentracija aktivnosti ⁴⁰K je određena na osnovu gama linije od 1460 keV. Koncentracija aktivnosti ²²⁶Ra je određena na osnovu energija njegovih potomaka ²¹⁴Bi (609 keV, 1120 keV i 1764 keV) i ²¹⁴Pb (295 keV i 352 keV), uz ispunjen uslov da je u uzorku postignuta radioaktivna ravnoteža između radijuma, radona i njegovih potomaka. Koncentracija aktivnosti ²³⁵U je određena na osnovu detekcije fotona energije 186 keV nakon oduzimanja doprinosa koji potiče od ²²⁶Ra, dok je koncentracija aktivnosti ²³⁸U određena preko potomaka ²³⁴Th (63 keV) i ^{234m}Pa (1001 keV). Koncentracija aktivnosti ²³²Th je izmerena preko njegovog potomka ²²⁸Ac (338 keV i 911 keV). Koncentracija aktivnosti *A* svakog radionuklida je određena na osnovu jednačine (1):

$$A = \frac{N/t}{P_{\gamma} \varepsilon m} \quad (1)$$

gde je *N* broj detektovanih fotona u foto piksu, *t* je vreme merenja, *P_γ* je verovatnoća emisije fotona, *ε* je efikasnost detekcije i *m* je masa uzorka.

Budžet merne nesigurnosti svih izmerenih vrednosti obuhvatao je doprinos statistike brojanja detektovanih fotona u foto piksu, doprinos kalibracije efikasnosti, mernu nesigurnost faktora za korekciju na koincidentno sumiranje i mernu nesigurnost merenja mase uzorka. Merna nesigurnost kalibracije efikasnosti je definisana kao kombinovana relativna merna nesigurnost aktivnosti standardnog rastvora, merenja zapremine standardnog rastvora i mase laboratorijskog referentnog radioaktivnog materijala i faktora za korekciju na koincidentno sumiranje. Svi doprinosi mernoj nesigurnosti rezultata su uvršćeni u jednačinu (2) čime je dobijena kombinovana relativna merna nesigurnost sa faktorom pokrivanja 2:

$$u = 2 \sqrt{\sum_i u_i^2} \quad (2)$$

gde je *u* merna nesigurnost dobijene vrednosti a *u_i* su pojedinačni doprinosi.

Rezultati i diskusija

Poređenje sadržaja radionuklida u elektrofilterskom pepelu, pepelu sa aktivne i pasivne kasete deponije pepela i šljake iz TE „Kostolac“, TE „Kolubara“ i TE „Nikola Tesla A“, predstavljeno je u Tabeli 1, Tabeli 2 i Tabeli 3, respektivno. Rezultati ovog poređenja su predstavljeni kao količnik koncentracije aktivnosti radionuklida detektovanih u elektrofilterskom pepelu, pepelu sa deponije i šljaci iz TE „Kolubara“ i TE „Kostolac“ i „Nikola Tesla A“ i TE „Kostolac“. Rezultati za elektrofilterski pepeo su dobijeni u okviru redovnog monitoringa tokom 2017. i 2018. godine dok su rezultati za pepeo sa deponije i šljaku dobijeni u okviru monitoringa 2018. godine.

Tabela 1. Poređenje sadržaja radionuklida u elektrofilterskom pepelu iz TE „Kostolac“, TE „Kolubara“ i TE „Nikola Tesla A“. Rezultati su prikazani kao količnik aktivnosti detektovanih radionuklida u elektrofilterskom pepelu iz TE „Kolubara“ i TE „Kostolac“ i TE „Nikola Tesla A“ i TE „Kostolac“. Merenja su sprovedena u okviru monitoringa 2017. i 2018. godine.

	Kolubara/Kostolac Odnos izmerenih aktivnosti		Nikola Tesla A/Kostolac Odnos izmerenih aktivnosti	
	2017.	2018.	2017.	2018.
²²⁶ Ra	2,94	2,23	1,69	2,21
²³² Th	1,88	1,87	1,08	1,85
⁴⁰ K	1,77	1,52	1,04	1,83
²³⁸ U	3,05	2,14	1,47	1,96
²³⁵ U	2,81	2,65	1,44	2,42
Srednja vrednost odnosa ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K	2,20	1,88	1,27	1,96

Kako se može videti iz Tabele 1, elektrofilterski pepeo iz TE „Kostolac“ ima višestruko manji sadržaj svih prirodnih radionuklida u odnosu na elektrofilterski pepeo iz druge dve termoelektrane. Odnos se kreće u rasponu od 1,04 za aktivnost ⁴⁰K u uzorku iz TE „Nikola Tesla A“ do čak 3,05 za aktivnost ²³⁸U u uzorku iz TE „Kolubara“. Srednja vrednost odnosa za ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K iznosi približno 2 za elektrofilterski pepeo iz TE „Kolubara“ u obe godine i iz TE „Nikola Tesla A“ iz 2018. godine. To praktično znači da bi doprinos gama indeksu koji potiče od dodavanja elektrofilterskog pepela u krajnji proizvod bio približno dvostruko manji u slučaju elektrofilterskog pepela iz TE „Kostolac“.

U Tabeli 2 dato je poređenje aktivnosti radionuklida detektovanih u pepelu sa aktivnih i pasivnih kaset deponija. Jasno je uočljiv trend da pepeo sa deponija u TE „Kostolac“ sadrži značajno manje koncentracije aktivnosti prirodnih radionuklida. Izuzetak je pepeo sa pasivne kasete deponije TE „Kolubara“, gde je odnos manji od 1, ali, s obzirom da se kreće od 0,56 do 0,89, može se smatrati da je koncentracija detektovanih radionuklida u ovim uzorcima približno jednaka. Iz ovog odnosa možemo zaključiti da bi dodavanje pepela sa deponija iz TE „Kostolac“ doprinelo gama indeksu gotovog proizvoda takođe približno dva puta manje, uz pomenuti izuzetak.

Tabela 2. Poređenje sadržaja radionuklida u pepelu sa aktivne i pasivne kasete deponije pepela iz TE „Kostolac“, TE „Kolubara“ i TE „Nikola Tesla A“. Rezultati su prikazani kao odnos aktivnosti detektovanih radionuklida u pepelu iz TE „Kolubara“ i TE „Kostolac“ i TE „Nikola Tesla A“ i TE „Kostolac“. Merenja su sprovedena u okviru monitoringa 2018. godine.

	Kolubara/Kostolac Odnos izmerenih aktivnosti		Nikola Tesla A/Kostolac Odnos izmerenih aktivnosti	
	Aktivna kaset deponije	Pasivna kaset deponije	Aktivna kaset deponije	Pasivna kaset deponije
²²⁶ Ra	2,20	0,86	2,50	2,73
²³² Th	1,68	0,56	2,00	1,58
⁴⁰ K	1,74	0,77	1,65	0,97
²³⁸ U	1,66	0,89	1,77	2,33
²³⁵ U	2,03	0,76	2,33	2,71
Srednja vrednost odnosa ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K	1,87	0,73	2,05	1,76

U Tabeli 3 prikazan je odnos koncentracije detektovanih radionuklida u uzorcima šljake iz pomenute tri termoelektrane. U ovom slučaju, uočava se da je u šljaci iz TE „Kolubara“ detektovana

približno dvostruko manja koncentracija aktivnosti radionuklida, dok je u uzorcima šljake iz TE „Nikola Tesla A“ detektovana približno dvostruko veća koncentracija radionuklida.

Tabela 3. Poređenje sadržaja radionuklida u sljaci ispod kracera iz TE „Kostolac“, TE „Kolubara“ i TE „Nikola Tesla A“. Rezultati su prikazani kao odnos aktivnosti detektovanih radionuklida u sljaci iz TE „Kolubara“ i TE „Kostolac“ i TE „Nikola Tesla A“ i TE „Kostolac“. Merenja su sprovedena u okviru monitoringa 2018. godine.

	Kolubara/Kostolac Odnos izmerenih aktivnosti	Nikola Tesla A/Kostolac Odnos izmerenih aktivnosti
	²²⁶ Ra	0,68
²³² Th	0,50	2,00
⁴⁰ K	0,63	1,61
²³⁸ U	0,62	2,76
²³⁵ U	0,59	2,23
Srednja vrednost odnosa ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K	0,60	2,10

Uticaj na gama indeks krajnjeg proizvoda koji bi koristio ovu šljaku kao sirovinu je očigledan.

Zaključak

Na osnovu merenja koncentracije prirodnih radionuklida u uzorcima elektrofilterskog pepela, pepela sa deponija i šljake, kao i na osnovu određenog odnosa između dobijenih vrednosti u uzorcima iz različitih termoelektrana, možemo da zaključimo da je elektrofilterski pepeo iz TE "Kostolac" izuzetno povoljan kao sirovina koja bi se koristila za proizvodnju građevinskog materijala i da daje približno dvostruko manji uticaj na gama indeks konačnog proizvoda. Sličan zaključak se može izvesti i za pepeo sa deponija i šljaku iz TE "Kostolac" u odnosu na TE "Nikola Tesla A". Izuzetak je pepeo sa pasivne kasete i šljaka iz TE "Kolubara".

Zahvalnica

Istraživanje je finansirano od strane Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije.

References

- [1] N. Nordin, M.M.A.B. Abdullah, M.F.M. Tahir, A.V. Sandu, K. Hussin, Utilization of Fly Ash Waste As Construction Material. *Int. J Conserv. Sci.* 7, 161-166 (2016)
- [2] M. Pasetto, N. Baldo, Recycling of waste aggregate in cement bound mixtures for road pavement bases and sub-bases, *Constr. Build. Mater.* 108, 112 (2016)
- [3] IZVEŠTAJ: „Uputstvo za korisnike nusproizvoda i upotrebu sekundarnih sirovina u izgradnji puteva“ , Projekat za Republiku Srbiju G2G09/SB/5/4 u okviru kratkog G2G programa, Agenschap NL Terr Advies EVD Unit Internationale Publieke Samenwerking Postbus 20105 15 oktober 2010 2500 EC Den Haag rapportnummer 20104201-definitive
- [4] S. A. Lihach, R. N. Kulesh, V. I. Nikolaeva, K. Y. Orlova, and A. S. Ilyasova, Power plant ash and slag waste management technological direction when Kansk-Achinsk brown coal is burned, *MATEC Web of Conferences* 92, 01051 (2017) *Thermophysical Basis of Energy Technologies - 2016*
- [5] IAEA, 1989. Measurement of Radionuclides in Food and Environment. A Guidebook. Technical Reports Series No. 295, Vienna