

伴生放射性稀土矿中天然放射性核素 U-238 的测量研究

刘 念 钟士力 刘 舒 时燕华 (江西省核工业地质局测试研究中心, 江西 南昌 330002)

摘 要:应用高纯锗 (HPGe) γ 谱仪对伴生放射性稀土矿中天然放射性核素 ^{238}U 准确快速测量进行研究探讨。实验得到伴生放射性稀土矿样品具有成分复杂, 放射性测量难度高, 干扰因素多的特性; 伴生放射性稀土矿样品 ^{238}U 的能谱测量时低能端样品自吸收很严重, ^{238}U 测量 1001Kev 能量线测量结果更准确, 特别是高含量的样品, 有条件的实验室建议可以用 ICP-MS 进行验证测量, 对测量结果进行相应的修正。

关键词: 稀土矿; 天然放射性核素; U-238; 测量研究

近年来, 随着工业技术的发展与进步, 我国矿产资源开发利用规模越来越大, 伴生放射性矿 (以下简称“伴生矿”) 的开发利用也随之增长, 伴生矿是指含有较高水平天然放射性核素浓度的非铀矿。具有代表性的伴生矿有: 钒矿、镍钼矿、磷矿、煤矿、铝土矿、铅锌矿、稀土矿等; 我国稀土矿产资源十分丰富, 居世界上第一位, 稀土产品在世界市场占有率已达 70%^[1]。伴生放射性稀土矿的开发利用除提取所需的矿用成分外, 同时还将伴生的 U-238、Th-232、Ra-226 等较高水平的天然放射性核素人为暴露到地面环境中, 危害人体健康, 造成对环境的放射性污染^[2-5]。因此伴生矿的放射性辐射水平的快速可靠测量极为重要, 本文针对伴生放射性稀土矿中天然放射性核素 U-238 的测量进行了研究探讨。

1 测量方法的选择

本实验对伴生放射性稀土矿的放射性核素 ^{238}U 的测量采用了高纯锗 (HPGe) γ 谱仪, 放射性核素衰变产生的 γ 射线与 HPGe 晶体作用产生的电子-空穴对, 在高电压下被收集, 经前置放大器和主放大器放大, 并脉冲成形 (信噪比最佳), 形成幅度与吸收能量成正比的脉冲; 再经脉冲幅度分析器 MCA 及模数转换器 ADC, 最后送入计算机由相关软件处理, 形成 γ 能谱。应用计算机解谱程序给出相应核素的放射性活度。HPGe γ 谱仪的优点是能量分辨率高, 特别适宜复杂能谱的分析。 ^{238}U 的测定选择与其呈放射性平衡的子体 ^{234}Th 、 $^{234\text{m}}\text{Pm}$ 发射的特征 γ 射线 63.3Kev, 1001Kev 两条能量线的放射性活度。

实验样品选用了稀土矿开发利用过程中的原矿、原料、废渣、废料、尾砂等, 这些样品的特点是放射性水平高, 成分复杂, 基本包含了伴生矿开发利用各个环节的放射性产物。

2 测量数据的分析

伴生放射性稀土矿的开采利用过程中的原料、产生的废料、废渣 (酸溶废渣、中和废渣) 等固体废物都具有一定的放射性。利用 HPGe γ 谱仪对伴生矿样品进行了测量, 测量结果, 见表 1。

表 1 样品 HPGe γ 谱仪测量结果

样品编号	样品性质	重量 (g)	^{238}U 的 63.3Kev 能量线 (Bq/kg)	^{238}U 的 1001Kev 能量线 (Bq/kg)	备注
样品 1	原料	248	934.6	2504	
样品 2	原矿	340	221.0	345.4	
样品 3	废渣	330	1694	4874	

样品 4	废料	237	1080	2170	
样品 5	废渣	331	15850	52890	
样品 6	尾砂	340	3039	4950	

由表 1 可知, ^{238}U 的 HPGe γ 谱法测量出来的不同特征能量线的结果差异很大; 实际测量过程中发现个别样品密度偏大或者偏小, 与标准测量盒装满样品重量及土壤效率刻度源相差较大。

为了验证 HPGe γ 谱的测量准确性, 利用 ICP-MS (电感耦合等离子体质谱) 进行样品测量, 测量结果见表 2。

表 2 样品 ICP-MS 测量结果

样品编号	样品性质	重量 (g)	^{238}U (Bq/kg)	备注
样品 1	原料	0.1	2515	
样品 2	原矿	0.1	295.8	
样品 3	废渣	0.1	3073	
样品 4	废料	0.1	2801	
样品 5	废渣	0.1	56137	
样品 6	尾砂	0.1	4844	

由表 1 和表 2 分析, HPGe γ 谱的测量结果与 ICP-MS 测量结果对比可知, 1001Kev 能量线的结果与 ICP-MS 测量结果符合较好。分析原因待测稀土矿样品密度与标准物质密度差异大, 成分复杂, 低能端自吸收严重, 比活度越高的样品越明显, 低比活度的样品如原矿影响不大。

为了分析稀土矿的样品成分, 利用 X 荧光光谱仪 (XRF) 对样品 5 废渣进行半定量压片测量, 测量结果见表 3。

表 3 样品 X 荧光光谱仪 (XRF) 测量结果

元素	占比 (%)	元素	占比 (%)	元素	占比 (%)
F	8.168	Fe_2O_3	22.364	Bi_2O_3	0.393
Na_2O	0.377	ZnO	0.093	ThO_2	0.891
MgO	0.444	SrO	0.027	U	0.639
Al_2O_3	9.22	Y_2O_3	0.581	Rb_2O	0.039
SiO_2	2.989	ZrO_2	2.501	Gd_2O_3	0.158
P_2O_5	0.182	Nb_2O_5	0.283	PbO	0.301
SO_3	24.585	SnO_2	13.677	CuO	0.035
K_2O	1.052	La_2O_3	0.136	Pr_2O_3	0.21
CaO	2.665	CeO_2	0.524	Sm_2O_3	0.069
Sc_2O_3	0.223	Nd_2O_3	0.361	MnO	4.34
TiO_2	1.292	Yb_2O_3	0.203	Ta_2O_5	0.365
Cr_2O_3	0.388	HfO_2	0.227		

由表 3 测量结果可知, 样品 5 废渣成分复杂, 其中 F、 SO_3 含量高, 分析原因是该废渣前处理用了氢氟酸、硫酸; 稀土元素镧 (La)、铈 (Ce)、镨 (Pr)、钕 (Nd)、钐 (Sm)、钆 (Gd)、铽 (Yb) 的氧化物以及元素钇 (Y) 和钪 (Sc) 的氧化物含量高, 金属元素 Mg、Fe、Al、Ca、Zn、Mn 等

元素的氧化物含量高,样品中稀土元素、钇(Y)和钪(Sc)的氧化物以及金属元素含量高,造成样品的密度偏大与标准物质、效率刻度源的密度有一定差异;同时金属离子、稀土元素的含量高,在能谱测量过程中可能造成干扰。

伴生放射性稀土矿实验样品 ^{238}U 含量经过能谱测量,ICP-MS验证,X荧光元素分析有了相应的探讨发现。实验样品能谱测量和ICP-MS验证发现成分复杂的伴生矿能谱测量63.3Kev能量线测量结果会偏低,低能端样品自吸收很严重,放射性水平高的样品更加明显,可能出现数量级的差异;能谱1001Kev能量线测量结果与ICP-MS测量结果符合较好,但是由于 ^{238}U 的1001Kev能量线发射几率相对较小,在测量时间上需要增加,同时面对高放射性活度的样品,死时间大的样品测量方式上也要进行优化;X荧光元素分析样品可以发现伴生矿(稀土类)样品存在成分复杂的现象,特别是稀土元素、金属元素含量很高,造成样品密度差异性很大,同时对能谱测量也会造成干扰,影响准确性。

3 总结与建议

通过对伴生放射性稀土矿生产工艺不同环节的放射性样品进行了测量分析得到了以下结论:①伴生放射性稀土矿样品 ^{238}U 的能谱测量63.3Kev能量线测量结果会偏低,低能端样品自吸收很严重;②伴生放射性稀土矿样品 ^{238}U 测量1001Kev能量线测量结果更准确,特别是高含量的样

品,有条件的实验室建议可以用ICP-MS进行验证测量,对1001Kev能量线测量结果进行相应的修正;③伴生放射性稀土矿样品的特性以及开发利用的各个环节造成伴生矿样品成分复杂,放射性测量难度高,干扰因素多的特性。

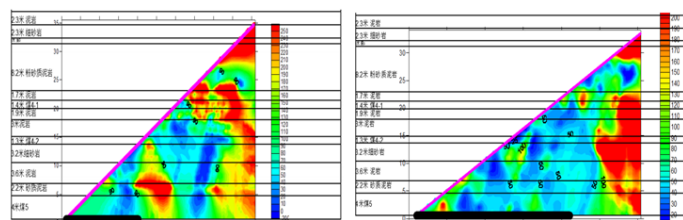
面对伴生放射性稀土矿的开发利用带来的越来越多伴生矿放射性废物,造成环境的放射性污染越来越严重。因此,加快研究伴生放射性稀土矿中天然放射性核素准确快速测量技术越来越紧迫,同时也是加快推进伴生矿放射性废物综合利用与处理处置的有力技术保障。

参考文献:

- [1] 帅震清,董晓辉.伴生放射性稀土矿开发利用中的天然放射性核素排放限值研究[J].有色冶金节能,2012,28(01):37-40+4
- [2] 徐玲.伴生矿放射性测量与环境影响评价[D].成都:成都理工大学,2011.
- [3] 帅震清,温维辉,赵亚民,赵永明,张利成.伴生放射性矿物资源开发利用中放射性污染现状与对策研究[J].辐射防护通讯,2001(02):3-7.
- [4] 苏永杰,封有才.我国伴生放射性矿环境管理中存在问题的讨论[J].辐射防护通讯,2007(01):23-27
- [5] 刁端阳,黄昕,周程,沈乐园,黄福琴,徐萍.江苏省伴生放射性矿开发企业放射性污染监测及防治对策[J].中国辐射卫生,2012,21(02):206-207.

(上接第239页)示较低电阻率值区,红色表示较高电阻率值区。可以看出采动前初始状态下T1和T2钻孔观测到的电阻率剖面图较为稳定,最大值均不超过200 $\Omega\cdot\text{m}$,除极少范围内出现较大的电阻率,大部分位置的电阻率保持在40 $\Omega\cdot\text{m}$ 左右,与正常的砂岩及泥岩层电阻率相差不大。

采动后的电阻率剖面图如图2所示。



(a) T1 钻孔电阻率剖面图

(b) T2 钻孔电阻率剖面图

图2 采动后钻孔电阻率剖面图

如图2所示分别为工作面回采后T1、T2观测孔测得的电阻率,可以看出此时的电阻率对比初始状态有了一定幅度的提升,且升高的幅度较大,同时顶板的大面积范围内的电阻率均增大。对T1钻孔和T2钻孔的电阻率分布特征的分析,得到两钻孔处间的覆岩垮落带高度约为16m左右。通过电阻率数据可以得出导水裂隙带发育的高度远超预期,所以对工作面进行防水处理是十分有必要的。

防治水的措施:

- ①回采过程中严格按照要求进行防治水施工。
- ②顶板灰岩裂隙水防治:工作面必须配备排水能力不

小于最大涌水量两倍的排水设施及管路,并有备用水泵,压风、供水管预留接口做为备用排水管,并定期维护,确保其完好。

③采空区积水防治:回采前按照专门探放水设计对22601工作面采空积水区进行了探放,采空积水已放完,对工作面的回采无影响,但对动态补给水施工队组定期安排人员排放。

④奥灰水防治:掘进中揭露的构造现不导水,但回采中受采动影响构造滞后导水不能排除,回采前必须对工作面进行坑透、瞬变电磁探测,异常区需进行钻探验证,确保安全后方可回采。回采过程中构造附近应加强观测,如工作面发生底鼓、顶板来压、裂隙增大、裂隙出现渗水、水质清澈、稳定、无臭味以及在遇构造是出现渗水、涌水等突水征兆,应立即撤退,并采取相应措施。

3 结论

本文通过对镇城底矿的水文地质进行研究,以22601工作面为研究背景,通过原有资料配合电阻率法对覆岩的三带进行研究,发现22601工作面的导水带发育较好,为避免水害的发生,给出了相应的防水措施,有效的保证了矿山的正常开采。

参考文献:

- [1] 丁爱红,韩辉.矿井开采后水文地质特征及水害防治技术研究[J].能源与环保,2020,42(10):38-42.