

文章编号: 1007-4627(2015)04-0460-07

## 稀土尾矿砂放射性活度的测量与计算

苑超<sup>1</sup>, 周程<sup>2</sup>, 朱晓翔<sup>2</sup>, 杨师伊<sup>1</sup>, 戴耀东<sup>1</sup>

(1. 南京航空航天大学材料科学与技术学院, 南京 210016;  
2. 江苏省核与辐射安全监督管理局, 南京 210019)

**摘要:** 准确测量并计算稀土尾矿砂的放射性活度浓度及其变化规律对制定相应的豁免标准和日后的处理处置具有重要的意义。根据选取的特征 $\gamma$ 射线, 分析对比平衡与非平衡状态下铀系、钍系、镭系三个天然衰变系的总活度浓度, 结合衰变链的一般动力学方程, 计算总放射性活度与每个核素的放射性活度, 并研究钍系各核素在平衡被不同程度破坏的情况下随时间的变化规律。结果显示, 按照非平衡情况下计算得出的总 $\alpha$ 和总 $\beta$ 放射性活度浓度比平衡情况下的更接近实际测量结果, 此外, 钍系核素在平衡被破坏后的放射性活度随时间变化情况与母体和 $^{228}\text{Ra}$ 的初始放射性活度浓度有关, 若 $^{228}\text{Ra}$ 小于 $^{232}\text{Th}$ , 则总放射性活度在 60 a 再次平衡后达到最大值, 为 10 倍的母体活度; 若 $^{228}\text{Ra}$ 大于 $^{232}\text{Th}$ , 则总放射性活度在 3.82 a 出现最大值, 为 4.57 倍母体活度与 5.25 倍第一子体 $^{228}\text{Ra}$ 的初始活度浓度之和。因此, 可知稀土尾矿砂放射性活度已经遭到破坏, 其总活度浓度应该采用非平衡情况下的几个特征核素的活度浓度共同计算得到, 并且需计算分析其随时间变化出现的最大值, 以此来确定是否超过相关法规标准。

**关键词:** 稀土; 尾矿砂; 非平衡; 活度浓度

**中图分类号:** X828      **文献标志码:** A      **DOI:** 10.11804/NuclPhysRev.32.04.460

### 1 引言

稀土作为我国重要的矿产资源, 具有广阔的发展前景。混合稀土被应用于石化行业、汽车制造业、玻璃与陶瓷工业等行业, 而分离稀土因其分离困难应用较少, 但也用于制造很多特殊材料, 如荧光材料、工程陶瓷、中子吸收材料等<sup>[1-2]</sup>。稀土矿资源常伴随高于天然本底水平的放射性核素(如钍、铀和镭)<sup>[3-5]</sup>。稀土矿在开采、冶炼、加工和利用的过程中, 伴生的放射性物质也随之迁移、浓集和扩散, 产品和废弃物都会有不同程度的放射性。随着稀土应用范围的扩展, 产生的稀土废渣大量堆放, 对周围环境造成了一定的放射性污染, 给工作人员和公众造成了额外的照射剂量。因此, 需要寻找出合适的处理处置方案, 对稀土废渣进行妥善处置, 消除环境安全隐患<sup>[6-7]</sup>。针对该问题, 联合国原子辐射效应科学委员会(UNSCEAR)和国际原子能机构(IAEA)分别出台了相应的技术报告, 建议铀、钍衰变链中低于 1 Bq/g 的放射性物质是可以排除解控的<sup>[8-9]</sup>。因此准确测量并计算稀土尾矿砂中放射性核素的活度浓度是

所有处理处置工作的前提条件。

稀土尾矿中伴生的放射性物质主要以三个天然放射系为主, 由于在开采冶炼过程中造成的衰变链放射性平衡破坏, 如果以单一子体的放射性活度来推断整条衰变链的放射性活度, 其结果是不准确的, 如果单纯使用放射性测量或通过元素分析的方法来判断放射性活度的大小又十分繁复, 其中牵扯到各种天然本底干扰、仪器的探测误差、庞大的数据处理过程等等。因此必须首先通过理论分析, 得到在放射性平衡和非放射性平衡情况下三个天然放射系各放射性核素的放射性的特征再加以测量计算。本文通过分析对比平衡与非平衡状态下三个衰变系的活度变化, 结合衰变链的一般动力学方程, 计算出总放射性活度与每个核素的放射性活度。

### 2 三个衰变系在放射性平衡条件下的放射性活度

当三个衰变系处于放射性平衡条件下时, 根据放射性级联衰变达到长期平衡时的特点, 在同一衰变链中的

收稿日期: 2014-12-02; 修改日期: 2015-01-14

基金项目: 江苏省环保科研项目(201429); 江苏省自然科学基金项目(BK2012799); 高等学校博士学科点专项科研项目(20122321811008); 江苏高校优势学科建设工程项目

作者简介: 苑超(1991-), 女, 内蒙古自治区巴彦淖尔市人, 硕士研究生, 从事核技术及应用研究; E-mail: 635620583@qq.com

通信作者: 戴耀东, E-mail: yd\_dai@nuaa.edu.cn.

任意一种子核跟其母核的放射性活度相等。通过这一特征可以利用衰变链中某一种核素在衰变过程中放出的特征射线, 根据 $\gamma$ 能谱计算得出它的活度浓度, 同时也可计算得到总的放射性活度。表1列出了三个天然衰变系所选核素及其特征 $\gamma$ 射线<sup>[10-11]</sup>。

表1 三个天然衰变系平衡条件下的特征核素信息

衰变系	核素	特征射线能量 <sup>[10-11]</sup> /keV
钍系	<sup>228</sup> Ra	借助 <sup>228</sup> Ac的911.1
铀系	<sup>226</sup> Ra	借助 <sup>214</sup> Bi的609.3
锕系	<sup>227</sup> Ac	借助 <sup>211</sup> Bi的305.7

总放射性活度浓度计算公式如下:

$$A_{\text{总}} = {}^{228}\text{Ra} \times 10 + {}^{226}\text{Ra} \times 14 + {}^{227}\text{Ac} \times 11, \quad (1)$$

$$A_{\text{总}\alpha} = {}^{228}\text{Ra} \times 6 + {}^{226}\text{Ra} \times 8 + {}^{227}\text{Ac} \times 7, \quad (2)$$

$$A_{\text{总}\beta} = {}^{228}\text{Ra} \times 4 + {}^{226}\text{Ra} \times 6 + {}^{227}\text{Ac} \times 4, \quad (3)$$

式中 $A_{\text{总}}$ 为三个衰变系根据 $\gamma$ 能谱得到的总放射性活度; $A_{\text{总}\alpha}$ ,  $A_{\text{总}\beta}$ 分别表示根据 $\gamma$ 能谱得到的总 $\alpha$ 放射性活度和总 $\beta$ 放射性活度; ${}^{228}\text{Ra}$ ,  ${}^{226}\text{Ra}$ ,  ${}^{227}\text{Ac}$ 分别表示这三种核素的放射性活度;10, 14, 11为三个系级联衰变的次数;6, 8, 7分别表示三个系的 $\alpha$ 辐射体数目;4, 6, 4分别表示三个系的 $\beta$ 辐射体数目。

### 3 三个衰变系在非平衡条件下的放射性活度

对于稀土尾矿砂, 在生产工艺流程中由于化学试剂以及各种提炼工艺的作用, 会导致衰变链中的放射性核

素的丢失, 从而使得衰变链的平衡被破坏。当衰变链处于非平衡条件下时, 三个放射系各放射性核素之间的衰变链子体放射性活度就不再相等, 此时, 如果依然通过一种子体核素来计算整个衰变系的放射性活度是不准确的。所以, 需要对非平衡情况下的各核素重新进行分析。基于陆志仁<sup>[12-13]</sup>对非平衡下各核素变化规律的研究, 我们将其分析方法应用于稀土尾矿砂放射性水平测量与计算中, 根据 $\gamma$ 谱测量得到几个特征放射性核素的活度浓度, 快速判断三个放射系中其余核素的活度浓度, 从而得到一种方便监测与管控的方法, 为制定切实可行的豁免标准提供依据。

处于非平衡情况下时, 衰变系各放射性核素之间没有固定的比例关系, 这时很难通过一个特征的 $\gamma$ 射线的计数来计算各放射性核素的含量。但是, 在同一放射系中, 除了几个较长寿命的核素以外, 其他放射性核素的寿命均十分短, 在放射性平衡破坏以后, 经过一段时间封存, 这些短寿命放射性核素将很快与较长寿命的母体建立暂时平衡。因此, 可以将一个放射系分割成几个子系, 放射性平衡破坏后, 经过一段时间, 这几个子系将很快达到暂时平衡。

根据衰变链的一般动力学方程式<sup>[12-13]</sup>, 衰变链中第*i*种核素经过*t*时间后的放射性活度 $A_i$ 可表示为

$$A_i(t) = \sum_{k=1}^i A_{k,i}, \quad (4)$$

其中 $A_{k,i}$ 为第*k*种核素的初始放射性活度 $A_k(0)$ 对第*i*中核素的放射性 $A_i(t)$ 的贡献。而

$$A_{k,i} = \begin{cases} A_k(0)\lambda_{k+1} \cdots \lambda_i \left[ \frac{e^{-\lambda_k t}}{(\lambda_{k+1}-\lambda_k) \cdots (\lambda_i-\lambda_k)} + \frac{e^{-\lambda_{k+1} t}}{(\lambda_k-\lambda_{k+1}) \cdots (\lambda_i-\lambda_{k+1})} + \cdots + \frac{e^{-\lambda_i t}}{(\lambda_k-\lambda_i) \cdots (\lambda_{i-1}-\lambda_i)} \right] & (k < i) \\ A_i(0)e^{-\lambda_i t} & (k = i) \end{cases}, \quad (5)$$

式中 $\lambda_{k+1}$ 和 $\lambda_i$ 等分别是第*k*+1种核素和第*i*种核素的衰变常数。

#### 3.1 钍系在平衡被破坏情况下的放射性活度

根据钍系各核素的半衰期特点, 我们可以把钍系分为三组, 母体<sup>232</sup>Th为一组, 它的活度记为 $A_1$ ; 因为<sup>228</sup>Ac的半衰期仅为6.13 h, 在平衡被破坏后, 只需一、两天时间就与<sup>228</sup>Ra恢复平衡, 所以<sup>228</sup>Ra, <sup>228</sup>Ac可以看作一个整体, 活度分别记为 $A_2$ ,  $A_3$ , 且 $A_2 = A_3$ ; 同理, 在<sup>228</sup>Th与它后面的各子体中, 半衰期最长的仅3.64 d(<sup>224</sup>Ra), 经过20 d的衰变后, <sup>228</sup>Th及其子体也可很快恢复平衡, 活度记为 $A_4$ ,  $A_5$ ,

.....,  $A_{10}$ , 且 $A_4 = A_5 = \dots = A_{10}$ 。由于<sup>228</sup>Th和<sup>232</sup>Th是同位素关系, 故在长期平衡刚被破坏时, 满足 $A_1(0) = A_4(0)$ , 因此, 对于 $t \geq 20$  d, 显然有

$$A_{\text{总}} = A_1 + 2A_2 + 7A_4,$$

$$A_{\text{总}\alpha} = A_1 + 5A_4,$$

$$A_{\text{总}\beta} = 2A_2 + 2A_4,$$

根据式(4)和(5)可得

$$A_1 = A_1(0), \quad (6)$$

$$A_2 = A_1(0) \left( 1 - e^{-\lambda_1 t} \right) + A_2(0) e^{-\lambda_2 t}, \quad (7)$$

$$A_4 = A_1(0) \left[ 1 - \frac{\lambda_4}{\lambda_4 - \lambda_2} e^{-\lambda_2 t} + \frac{\lambda_4}{\lambda_4 - \lambda_2} e^{-\lambda_4 t} \right] + A_2(0) \frac{\lambda_4}{\lambda_4 - \lambda_2} \left( e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_4 t} \right). \quad (8)$$

假设样品封存时间为 20 d, 则有如下计算关系:

$$A_4 = 0.98A_1(0) + 0.02A_2(0),$$

$$A_2 = 0.007A_1(0) + 0.993A_2(0),$$

$$A_{\text{总}} = 8.02A_4 + 1.98A_2, \quad (9)$$

$$A_{\text{总}\alpha} = 6.02A_4 - 0.02A_2, \quad (10)$$

$$A_{\text{总}\beta} = 2A_2 + 2A_4. \quad (11)$$

由此可见只要知道  $A_2(^{228}\text{Ra})$  和  $A_4(^{228}\text{Th})$ , 就可以得到钍系每个核素的放射性活度以及总放射性活度。在  $\gamma$  能谱的测量中, 选取特征谱线, 借助  $^{212}\text{Pb}$  的 238.2 keV 得到  $A_4$ , 借助  $^{228}\text{Ac}$  的 911.2 keV 得到  $A_2$ 。

### 3.2 铀系在平衡被破坏情况下的放射性活度

当时间位于 100 d~100 a 范围内时, 观察半衰期, 我们可以把铀系分为五组, 母体  $^{238}\text{U}$  为一组, 活度记为  $A_1$ , 子体  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{234}\text{Pa}$  为一组, 它们的活度分别记为  $A_2, A_3$ , 且有  $A_2 = A_3$ , 第三段只含有  $^{234}\text{U}$ , 活度记为  $A_4$ , 且因为  $^{234}\text{U}$  与  $^{238}\text{U}$  是同位素, 故在初始时刻  $A_4(0) = A_1(0)$ ,  $^{230}\text{Th}$  为第四段, 活度记为  $A_5$ , 剩下的为第五组, 活度分别记为  $A_6, \dots, A_{14}$ , 而且它们都相等。得到总活度计算公式:

$$A_{\text{总}} = 2A_1 + 2A_2 + A_5 + 9A_6,$$

$$A_{\text{总}\alpha} = 2A_1 + A_5 + 5A_6,$$

$$A_{\text{总}\beta} = 2A_2 + 4A_6.$$

根据衰变动力学方程可得

$$A_1 = A_1(0), \quad (12)$$

$$A_2 = A_1(0) \left( 1 - e^{-\lambda_2 t} \right), \quad (13)$$

$$A_5 = A_5(0), \quad (14)$$

$$A_6 = A_6(0) e^{-\lambda_6 t}. \quad (15)$$

铀系共 14 个放射性核素, 由于铀系的总活度浓度主要取决于  $^{226}\text{Ra}$  的活度浓度, 在测量时间内衰变到  $^{230}\text{Th}$  的数目很少, 故  $A_5$  可以忽略。在样品封存 20 d 时, 有如下计算公式:

$$A_2 = 0.437A_1(0),$$

$$A_{\text{总}} = 6.576A_2 + 9A_6, \quad (16)$$

$$A_{\text{总}\alpha} = 4.576A_2 + 5A_6, \quad (17)$$

$$A_{\text{总}\beta} = 2A_2 + 4A_6. \quad (18)$$

由此可见只要知道  $A_2(^{234}\text{Th})$  和  $A_6(^{226}\text{Ra})$ , 就可以得到铀系每个核素的放射性活度浓度与总放射性活度。在  $\gamma$  能谱的测量中, 选取特征谱线, 借助  $^{214}\text{Pb}$  的 351.9 keV 得到  $A_6$ , 由  $^{234}\text{Th}$  的 63.29 keV 得到  $A_2$ 。

### 3.3 镭系在平衡被破坏情况下的放射性活度

对于镭系分三组, 母体  $^{235}\text{U}$ ,  $^{231}\text{Th}$  为一组, 活度分别记为  $A_1, A_2$ , 且有  $A_1 = A_2$ 。  $^{231}\text{Pa}$  为第二组, 活度为  $A_3$ , 剩下的为一组, 活度分别为  $A_4, \dots, A_{11}$  且相等。得到总活度计算公式:

$$A_{\text{总}} = 2A_1 + A_3 + 7A_4,$$

$$A_{\text{总}\alpha} = A_1 + A_3 + 5A_4,$$

$$A_{\text{总}\beta} = A_1 + 3A_4.$$

根据衰变动力学方程可得

$$A_1 = A_1(0), \quad (19)$$

$$A_3 = A_3(0), \quad (20)$$

$$A_4 = A_3(0) + [A_4(0) - A_3(0)] e^{-\lambda_4 t}. \quad (21)$$

由于镭系的  $A_1^{(5)}(0)$  是  $^{235}\text{U}$  的初始放射性活度浓度,  $^{235}\text{U}$  与  $^{238}\text{U}$  为同位素, 故  $A_1^{(5)}(0) = 0.046A_1^{(8)}(0)$ 。当衰变时间不长(如 1~2 a) 时, 放射性活度大小主要取决于  $^{227}\text{Ac}$  的初始放射性活度, 我们可以忽略  $^{231}\text{Pa}$  的影响。

由此可见只要知道  $A_1(^{235}\text{U})$  和  $A_4(^{227}\text{Ac})$ , 就可以得到镭系每个核素的放射性活度浓度与总放射性活度。在  $\gamma$  能谱的测量中, 选取特征谱线, 由  $^{227}\text{Ac}$  的 256.3 keV 得到  $A_4$ , 由  $^{234}\text{Th}$  的 63.29 keV 得到  $A_1$ 。

三个衰变系的总放射性活度浓度即将三系的放射性活度累加, 特征核素信息列于表 2, 计算公式如下:

表 2 非平衡下三个衰变系特征核素信息

衰变系	核素	$\gamma$ 射线能量/keV
钍系	$^{212}\text{Pb}$	238.2
	$^{228}\text{Ac}$	911.2
铀系	$^{214}\text{Pb}$	351.9
	$^{234}\text{Th}$	63.29
镭系	$^{227}\text{Ac}$	256.3

$$A_{\text{总}} = 8.02A_{212\text{Pb}} + 1.98A_{228\text{Ac}} + 6.786A_{234\text{Th}} + 9A_{214\text{Pb}} + 7A_{227\text{Th}}, \quad (22)$$

$$A_{\text{总}\alpha} = 6.02A_{212\text{Pb}} - 0.02A_{228\text{Ac}} + 4.68A_{234\text{Th}} + 5A_{214\text{Pb}} + 5A_{227\text{Th}}, \quad (23)$$

$$A_{\text{总}\beta} = 2A_{212\text{Pb}} + 2A_{228\text{Ac}} + 2.1A_{234\text{Th}} + 4A_{214\text{Pb}} + 3A_{227\text{Th}}. \quad (24)$$

### 3.4 钍系在平衡被不同程度破坏情况下放射性活度随时间的变化规律

根据式(6), (7), (8)可见,  $A_2, A_4$  与  $A_1(0), A_2(0)$  以

及时间  $t$  有关, 其中  $A_2(0)/A_1(0)$  的值代表了平衡被破坏的程度, 当其值为 1 时代表平衡状态。图 1 ~ 3 分别给出了  $A_2(0)/A_1(0)$  为 0 ~ 10 的情况下,  $A_2, A_4$  及  $A_{\text{总}}$  随时间的变化规律。

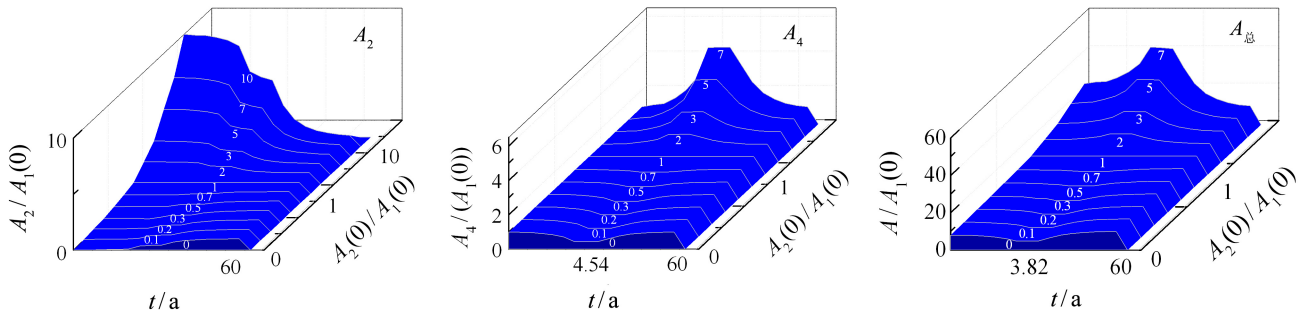


图 1 (在线彩图) 在  $A_2(0)/A_1(0)$  为 0 ~ 10 的情况下  $A_2, A_4$  及  $A_{\text{总}}$  随时间的变化

由上图可见, 若  $A_2(0)/A_1(0) < 1$ ,  $A_2(^{228}\text{Ra})$  随时间呈上升趋势, 最终趋向等于  $A_1(0)$ ,  $A_4(^{228}\text{Th})$  随时间呈先下降后上升的趋势, 最终趋向等于  $A_1(0)$ , 出现极小值的时间在 4.54 a,  $A_{\text{总}}$  随时间呈先下降后上升的趋势, 最终趋向等于  $10A_1(0)$ , 出现极小值的时间在 3.82 a; 若  $A_2(0)/A_1(0) > 1$ ,  $A_2(^{228}\text{Ra})$  随时间呈下降趋势, 最终趋向等于  $A_1(0)$ ,  $A_4(^{228}\text{Th})$  随时间呈先上升后下降的趋势, 最终趋向等于  $A_1(0)$ , 出现极大值的时间在 4.54 a,  $A_{\text{总}}$  随时间呈先上升后下降的趋势, 最终趋向等于  $10A_1(0)$ , 出现极大值的时间在 3.82 a。由此可见, 若在样品封存 20 d 后进行测量得到  $A_2(^{228}\text{Ra})$  和  $A_4(^{228}\text{Th})$ , 根据公式:

$$A_1(0) = 1.02A_4 - 0.02A_2, \quad (25)$$

$$A_2(0) = 1.007A_2 - 0.007A_4, \quad (26)$$

即可计算得出  $A_1(0)$  和  $A_2(0)$  的值, 若  $A_2(0)$  小于  $A_1(0)$ , 则  $A_2(^{228}\text{Ra})$  和  $A_4(^{228}\text{Th})$  在日后出现的最大值等于  $A_1(0)$ ,  $A_{\text{总}}$  在以后出现的最大值等于  $10A_1(0)$ ; 若  $A_2(0)$  大于  $A_1(0)$ , 则  $A_2(^{228}\text{Ra})$  此时的值即为最大值,  $A_4(^{228}\text{Th})$  将会在 4.54 a 出现最大值, 等于  $0.422 A_1(0) + 0.587 A_2(0)$ ,  $A_{\text{总}}$  将会在 3.82 a 出现最大值, 等于  $4.75 A_1(0) + 5.25 A_2(0)$ 。

## 4 与实际测量结果对照

采集江苏省国盛稀土有限公司产生的酸溶渣样品和金坛市海林稀土有限责任公司的中和渣样品, 封存 20 d 后利用 HPGe 谱仪测量  $\gamma$  能谱<sup>[14-15]</sup>并解谱计算得到平衡情况和非平衡情况下特征核素的活度浓度, 如表 3 所列。

表 3 平衡状态和非平衡状态下特征核素的活度浓度

平衡状态	衰变系	特征核素	国盛酸溶渣活度浓度/(Bq/g)	海林中和渣活度浓度/(Bq/g)
平衡	钍系	$^{228}\text{Ra}$	1.5	0.008
	铀系	$^{226}\text{Ra}$	0.58	0.003
	锕系	$^{227}\text{Ac}$	0.61	0.16
非平衡	钍系	$^{212}\text{Pb}$	4.89	0.22
		$^{228}\text{Ac}$	1.5	0.008
	铀系	$^{214}\text{Pb}$	0.59	0.003
		$^{234}\text{Th}$	0.69	0.18
	锕系	$^{227}\text{Ac}$	0.61	0.16

(1) 根据表 3 中的数据, 由公式(1), (2), (3)得到平衡情况下的计算结果, 由公式(22), (23), (24)得到非平衡情况下的计算结果, 如表 4 所列。

表 4 两种渣样的总放计算结果

平衡状态	渣样名称	$A_{总}/(\text{Bq/g})$	$A_{总\alpha}/(\text{Bq/g})$	$A_{总\beta}/(\text{Bq/g})$
平衡	国盛酸溶渣	29.83	17.91	7.46
	海林中和渣	1.88	1.19	0.69
非平衡	国盛酸溶渣	57.16	38.64	18.42
	海林中和渣	4.15	2.98	1.33

(2) 以平衡和非平衡下  $\gamma$  谱计算结果与实际测量的总  $\alpha$  和总  $\beta$  值对比, 并计算其比值, 其结果越接近 1, 则说明与实际情况更符合。表 5 列出了计算结果与实际测量结果对比情况, 虽然非平衡情况比平衡情况更加符合实际情形。

表 5 计算结果与实际测量结果对照

单位: Bq/g

渣样种类	$\alpha$ 和 $\beta$ 总放射性活度	实际测量	平衡( $\gamma$ 谱)	平衡/测量	非平衡( $\gamma$ 谱)	非平衡/测量
酸溶渣	$A_{总\alpha}$	45	17.91	0.398	38.64	0.859
	$A_{总\beta}$	16	7.46	0.466	18.42	1.151
中和渣	$A_{总\alpha}$	2.7	1.19	0.441	2.98	1.104
	$A_{总\beta}$	1.9	0.69	0.363	1.33	0.7

注: 实际测量结果中总  $\alpha$  测量主要采用相对法, 总  $\beta$  测量主要采用厚源法, 用低本底  $\alpha/\beta$  测量仪进行测量。

(3) 根据公式(25), (26), 可计算得出两个渣样中钍系的  $A_1(0)$ 和 $A_2(0)$ , 根据  $A_2(0)/A_1(0)$  可确定随着时间推移  $A_2$ ,  $A_4$  和  $A_{总}$  出现的最大值及其出现时间。结果列于表 6。

表 6 两个渣样的钍系活度最大值计算结果

渣样种类	$A_1(0)$	$A_2(0)$	$A_2(0)/A_1(0)$	最大值/(Bq/g)	出现时间/a
酸溶渣	4.958	1.476	0.3	$A_2$	4.958
				$A_4$	4.958
				$A_{总}$	49.58
中和渣	0.224	0.007	0.03	$A_2$	0.224
				$A_4$	0.224
				$A_{总}$	2.24

## 5 结论

(1) 由表 3 中同一衰变系特征核素的活度浓度值明显不同可见, 稀土尾矿砂中的放射性平衡已经遭到破坏。

(2) 本文对比分析了平衡和非平衡情况下稀土尾矿砂放射性活度浓度的计算关系, 并与实际测量结果进行对照, 结果表明, 采用非平衡条件下多个特征核素共同计算放射性活度的方法得到的结果与稀土实际的放射性活度更接近。

(3) 制定切实可行的稀土尾矿砂活度浓度限值, 需要知道放射性活度浓度出现最大值的时间与具体数值。钍系核素在平衡被破坏后的放射性活度随时间变化情况与母体和  $^{228}\text{Ra}$  的初始放射性活度浓度有关, 若  $^{228}\text{Ra}$

小于  $^{232}\text{Th}$ , 则总放射性活度在 60 a 再次平衡后达到最大值为 10 倍的母体活度; 若  $^{228}\text{Ra}$  大于  $^{232}\text{Th}$ , 则总放射性活度在 3.82 a 出现最大值为 4.57 倍母体活度与 5.25 倍第一子体  $^{228}\text{Ra}$  的初始活度浓度之和。

(4) 对于平衡遭到破坏的稀土尾矿砂, 仅测量单一子体的活度浓度并不能保证其它核素的活度浓度不超标, 测量特征核素的活度浓度, 从而计算出衰变链中各个核素的活度浓度及总放射性活度浓度, 为制定相关可操作性强的豁免标准提供了参考, 对稀土冶炼厂家申请豁免尾矿砂具有重要意义。

## 参考文献:

[1] KRISHNAMURTHY N, SURI A K. Rare Earths and their

- Role in Modern Life[M]. Mumbai, Indian Association for Radiation Protection, 2001: 1.
- [2] GUPTA C K, KRISHNAMURTHY N, Extractive Metallurgy of Rare Earths[M]. Boca Raton, CRC Press, 2005: 8.
- [3] LIU Huiping, HU Yongmei, ZHONG Minglong. Non-ferrous Metal Science and Engineering, 2013, **4**(4): 103. (in Chinese)  
(刘徽平, 胡咏梅, 钟明龙. 有色金属科学与工程, 2013, **4**(4): 103)
- [4] WANG Guozhen. Rare Earth Information, 2007, **281**(8): 19. (in Chinese)  
(王国珍. 稀土信息, 2007, **281**(8): 19)
- [5] LUO Jianjun, LIU Guifang, SUN Qinghong. Radiation Protection, 2011, **6**(31): 342. (in Chinese)  
(罗建军, 刘桂芳, 孙庆红. 辐射防护, 2011, **6**(31): 342)
- [6] SUN Qinghong. Radiation Protection Bulletin, 2005, **25**(4): 17. (in Chinese)  
(孙庆红. 辐射防护通讯, 2005, **25**(4): 17)
- [7] ZHAO Fuxiang, ZHANG Boming, WU Xiaoping. Radiation Protection Bulletin, 2006, **26**(3): 29. (in Chinese)  
(赵福祥, 张伯明, 吴小平. 辐射防护通讯, 2006, **26**(3): 29)
- [8] International Atomic Energy Agency. Radiation Protection and NORM Residue Management in the Production of Rare Earth from Thorium Containing Minerals. Safety Reports Series No.68, Vienna, IAEA, 2011.
- [9] International Atomic Energy Agency. Application of the Concepts of Exclusion, Exemption and Clearance. Safety Standards Series No.RS-G-1.7.Vienna, IAEA, 2004.
- [10] ZHAO Shuquan, LI Fusheng, TAN Guangming, *et al.* China J Radiol Health, 2007, **16**(2): 147. (in Chinese)  
(赵淑权, 李福生, 谈明光, 等. 中国辐射卫生, 2007, **16**(2): 147)
- [11] ZHAO Shuquan, LI Fusheng, CHEN Yingmin, *et al.* China J Radiol Health, 2000, **9**(2): 80. (in Chinese)  
(赵淑权, 李福生, 陈英民, 等. 中国辐射卫生, 2000, **9**(2): 80.)
- [12] LU Zhiren. Radiation Protection, 1981(05): 66. (in Chinese)  
(陆志仁. 辐射防护, 1981(05): 66.)
- [13] LU Zhiren. Radiation Protection, 1984(05): 366. (in Chinese)  
(陆志仁. 辐射防护, 1984, (05): 366)
- [14] ZHOU Cheng, WANG Fengying, ZHU Xiaoxiang. Nuclear Techniques, 2011, **34**(8): 604. (in Chinese)  
(周程, 王凤英, 朱晓翔. 核技术, 2011, **34** (8):604.)
- [15] ZHOU Cheng, ZHU Xiaoxiang, YANG Bin, *et al.* Nuclear Techniques, 2013, **36**(8): 1. (in Chinese)  
(周程, 朱晓翔, 杨斌, 等. 核技术, 2013, **36**(8): 1.)

## Measurement and Calculation of Rare Earth Mine Tailings Radioactivity

YUAN Chao<sup>1</sup>, ZHOU Cheng<sup>2</sup>, ZHU Xiaoxiang<sup>2</sup>, YANG Shiyan<sup>1</sup>, DAI Yaodong<sup>1</sup>

(1. Institute of Materials Science and Technology, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 210016, China;

2. Nuclear and Radiation safety supervision and administration Bureau of Jiangsu Province, Nanjing 210019, China)

**Abstract:** It is of great significance to measure and calculate rare earth tailing radioactivity for the development of appropriate standards and exemption disposal. The total activity concentration of the three natural decay series (uranium series, thorium series, actinium series) was analyzed under the equilibrium and disequilibrium state according to the selected characteristic  $\gamma$ -rays. At the same time, we calculated the total activity concentration and the radioactivity for each radionuclide based on the general kinetic equations of decay chain and studied the trend of each radionuclide of thorium-series under different degrees of disequilibrium with time. The results demonstrated that the total radioactivity of  $\alpha$  and  $\beta$  calculated in disequilibrium state was more closed to the actual measurement results compared to that in equilibrium state. In addition, the activity changes with time of thorium series in disequilibrium state are related to the initial activity concentration of the mother nuclide and  $^{228}\text{Ra}$ . If the activity concentration of  $^{228}\text{Ra}$  is less than that of  $^{232}\text{Th}$ , the total activity peak will be 10 times to maternal activity and appear after 60 a when the thorium series become balance again. If the activity concentration of  $^{228}\text{Ra}$  is greater than that of  $^{232}\text{Th}$ , the maximum total activity will appear in 3.82 a, and will be the sum of 4.57 times of the initial activity concentration of the mother nuclide and 5.25 times of the initial activity concentration of the first daughter  $^{228}\text{Ra}$ . Therefore, the rare earth tailings have been in disequilibrium state, and its total activity concentration should be determined based on the activity concentration of several feature radionuclides. In addition, the maximum value of the activity concentration is profitable to judge whether the activity concentration is fit with relevant regulations and standards.

**Key words:** rare earth; mine tailing; disequilibrium; activity concentration

---

**Received date:** 2 Dec. 2014; **Revised date:** 14 Jan. 2015

**Foundation item:** Environmental Protection Scientific Research Fund of Jiangsu Province(201429); Nature Science Fund of Jiangsu Province(BK2012799); Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (2012321811008); Priority Academic Program Development of Jiangsu Higher Education Institutions

**Corresponding author:** DAI Yaodong, E-mail: yd\_dai@nuaa.edu.cn.