

钢铁冶炼的放射性排放及其辐射安全监管

李金凤, 姜子英, 李晓芸, 陈 凌*

中国原子能科学研究院 辐射安全研究所, 北京 102413

摘要: 中国钢铁行业发展迅速, 2014 年的粗钢产量已达到世界总量的 49.5%。钢铁冶炼的原料包括铁矿石、煤、石灰石等, 均含有天然放射性核素(U 系、Th 系、 ^{40}K 等)。在烧结、焦化、高炉炼铁和转炉炼钢的高温冶炼过程中, ^{238}U 的子体 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 达到熔点和沸点后挥发, 扩散吸附到大气颗粒物上随其他气态污染物排放, 增加了公众照射剂量。本文阐述了德国、意大利、英国、荷兰、澳大利亚、埃及等国、欧盟和 IAEA 等国际组织对钢铁冶炼中天然放射性排放的研究进展, 发现烧结和炼铁是天然放射性排放的两个主要工艺, 部分国家和组织制定了针对天然放射性物质照射的审管政策。烟囱烟气中 ^{222}Rn 、 ^{210}Pb 、 ^{210}Po 的测量方法和辐射影响评价需进行深入研究。

关键词: 钢铁冶炼; 天然放射性物质; 辐射影响; 辐射安全; 监管

中图分类号: X591 文献标志码: A 文章编号: 0253-9950(2015)06-0393-10

doi: 10.7538/hhx.2015.37.06.0393

Radiological Emissions and Radiation Safety Supervision of Iron and Steel Production

LI Jin-feng, JIANG Zi-ying, LI Xiao-yun, CHEN Ling*

China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275(82), Beijing 102413, China

Abstract: Iron and steel industry in China developed fast with a crude steel production of 49.5% in the world in 2014. The raw materials used in iron and steel production are iron ore, coal and limestone, which all contain low levels of naturally occurring radioactive materials (NORM) in the U and Th decay chains and ^{40}K . Due to high temperature in the process of sintering, coking, iron and steel making, ^{210}Pb and ^{210}Po in ^{238}U series volatile after reaching their melting points and boiling points, and then condense on the atmospheric particles and release with other air pollutants so as to increase the public exposure. This paper demonstrated the recent research progress of NORM emissions from iron and steel making in Germany, Italy, the United Kingdom, the Netherlands, Australia and Egypt, as well as the reports from European Commission and IAEA. Sintering and iron making are the main processes that release naturally occurring radioactive materials. Some countries and organizations have developed management policies on NORM radiation. Measurements and

收稿日期: 2015-02-09; 修订日期: 2015-06-01

基金项目: 湖南、湖北和江西三省长江沿岸非核工业辐射水平调查(JC201303)

作者简介: 李金凤(1985—), 女, 山东潍坊人, 博士, 副研究员, 从事能源环境、NORM 研究

* 通信联系人: 陈 凌(1967—), 男, 四川筠连人, 博士, 研究员, 从事辐射防护研究, E-mail: chenling6725@sina.com

radiological impact assessment of ^{222}Rn , ^{210}Pb and ^{210}Po in stack effluents should be intensively studied.

Key words: iron and steel production; naturally occurring radioactive materials; radiological impact; radiation safety; supervision

天然存在放射性物质 (naturally occurring radioactive materials, NORM) 是指能自发放射出 α 、 β 或 γ 射线的天然存在的某些物质。地壳中广泛存在着 U 系、Th 系、 ^{40}K 等天然放射性核素。人类的工业活动导致天然放射性核素富集并释放到环境中, 造成辐射水平升高, 已成为导致公众照射和职业照射增加的主要原因, 职业照射集体剂量比核燃料循环和核技术应用高 2~3 个数量级^[1]。

钢铁冶炼是重要的 NORM 工业之一。以荷兰为例^[2], 1 家钢铁厂的 ^{222}Rn 的年排放量就达到了 350 GBq, 大大超过单个燃煤电厂、水泥生产、焦炭生产企业的排放量。 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的排放量更比其他工业的排放度高 1~3 个数量级。钢铁冶炼排放大气颗粒物中放射性核素的迁移, 可导致大气圈、水圈、生物圈、地表土壤中 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的比活度升高。

中国钢铁行业迅猛发展, 2014 年大陆地区粗钢产量 8.227 亿吨, 占世界钢产量的 49.5%^[3]。钢铁冶炼排放大量废气、废水和废渣, 2013 年中国钢铁冶炼企业烟(粉)尘排放量为 61.9 万吨, 占重点调查工业企业排放量的 6.1%, 排放量最大的省份为河北、山西、辽宁和山东, 占全国排放量的 61.1%^[4]。英国斯肯索普钢铁厂 1990 年的烟粉尘排放因子为 0.36 kg/t^[5], 而中国 2013 年单位钢产量的排放因子高达 0.79 kg/t, 是英国的 2 倍。由此可见, 我国钢铁冶炼过程中有可能会排放大量的 ^{210}Pb 、 ^{210}Po 等天然放射性核素。

本文阐述了德国、意大利、英国、荷兰、澳大利亚、埃及等国家、欧盟和 IAEA 等国际组织对钢铁冶炼中天然放射性排放的研究进展。目前已有一些国家和组织制订了针对天然放射性物质照射的审管政策。欧盟于 1996 年出台的《欧洲基本安全标准》(Basic Safety Standards, BSS, Council Directive 96/29/EURATOM) 规定了飞灰中 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的清洁解控水平分别为 17 kBq/kg 和 9.6 kBq/kg。英国斯肯索普钢铁厂烧结工艺排放的粉尘中 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的比活度分别为 11.3 kBq/kg 和 99.8 kBq/kg, 需经批准才能排放^[5]。而我国未见钢铁冶炼过程排放天然放射性

核素的相关报道, 且尚未制定针对天然放射性物质的辐射安全监管法律, 因此研究其排放因子并对其进行加强监管具有重要意义。

1 钢铁冶炼工艺流程及放射性来源

钢铁工业的生产流程主要包括焦化、烧结(球团)、炼铁、炼钢、轧钢等生产工序。焦化的产品焦炭在高炉中提供碳将铁矿还原为铁。为了使高炉能够在理想状况下运行, 进入高炉的原料必须符合一定的尺寸, 但是由于一些原料太细小, 因此需要先经过烧结制成烧结矿再使用。炼钢包括转炉和电炉两种工艺, 分别利用铁水的物理热和电能做热源氧化炉料中所含的杂质。

从全生命周期的角度出发, 在分析钢铁冶炼放射性排放的时候, 还应考虑其原料铁矿和煤矿的开采、产生的固体废弃物的循环再利用。钢铁冶炼产生的固体废弃物包括烧结粉尘、高炉尘泥、转炉尘泥、高炉渣、钢渣等, 一部分可以在生产过程中回用, 一部分可以用于化工、建材等领域。

钢铁冶炼放射性核素的主要来源是原料自身含有的天然放射性核素在冶炼过程中的转移和富集(图 1)。在钢铁冶炼过程中使用的一次原料(铁矿石、煤、石灰石等)、中间产品(烧结矿、焦炭、生铁等)、二次利用的废弃物(烧结粉尘、高炉尘泥、转炉尘泥等)都含有 U 系、Th 系核素。 ^{238}U 衰变可产生 ^{222}Rn 、 ^{210}Pb 、 ^{210}Po 等子体, 是钢铁冶炼气态放射性流出物中的主要核素。

^{210}Pb 和 ^{210}Po 的熔点较低, 分别为 327 °C 和 254 °C, 沸点为 1740 °C 和 962 °C。钢铁冶炼的放射性排放的主要机制是烧结(约 1400 °C)、焦化(约 1000 °C)、高炉炼铁(约 1500 °C)和转炉炼钢(1500~1700 °C)的高温过程, 使得 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 挥发成气态, 吸附到颗粒物中(主要是 $\text{PM}_{2.5}$), 随其他污染物排放到大气中。高温冶炼中物质结构分子被破坏, 原料中所含的 ^{222}Rn 也会同时释放出来。其中, 烧结和炼铁是天然放射性排放的两个主要工艺。烧结粉尘、高炉尘泥、转炉尘泥的循环再利用更促进了 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的富集。而原煤、铁矿石、炉渣、尾矿等物料的堆存也会逐渐释放 ^{222}Rn 。

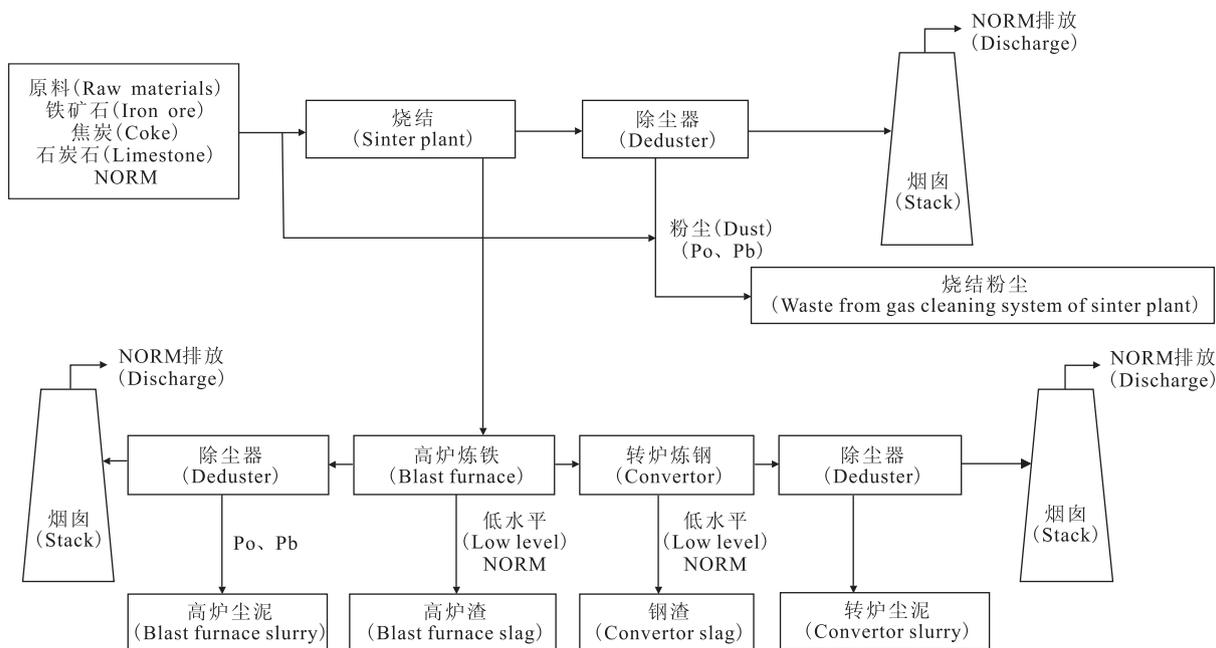


图1 钢铁冶炼放射性来源及排放途径

Fig. 1 Sources and emission paths of radionuclides from iron and steel production

2 国内外钢铁冶炼放射性排放研究

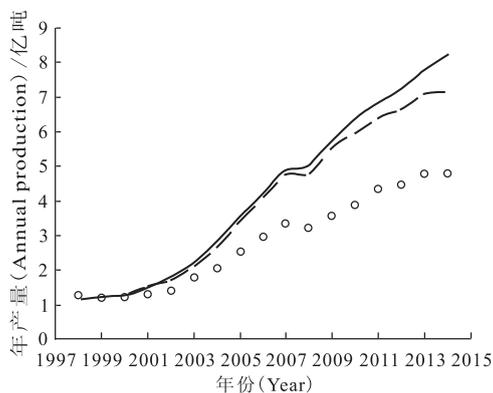
2.1 铁矿石和钢铁产量

美国地质勘探局(USGS)2015年发布的统计数据^[6]显示,2014年全球铁矿石产量达到32.2亿吨。中国和澳大利亚的产量最大,分别为15.0亿吨和6.6亿吨,占全球总产量的47%和20%。

2014年全球粗钢产量为16.615亿吨,亚洲产量最大,约为11.323亿吨,占全球68%,其次为欧洲和北美。最大的3个产钢国为中国、日本和美国,粗钢产量分别为8.227亿吨、1.107亿吨、0.883亿吨^[3]。德国和意大利是欧盟钢铁产量最大的两个国家,2014年粗钢产量分别为0.429亿吨、0.237亿吨^[3]。2000年以后,中国钢铁行业发展迅速,焦炭、生铁和粗钢的年产量都大幅度增加^[7](图2)。

2.2 原料中放射性核素的含量

钢铁冶炼的原料包括铁矿石、煤、石灰石、石灰、焦炭等,均含有天然放射性核素(U系、Th系、⁴⁰K等),主要是煤中的含量较高(表1)。各国原料中的放射性核素的比活度差别很大,例如中国煤中的²³⁸U最大可达到9 020 Bq/kg,而英国最少仅为7 Bq/kg。即使在同一个国家,不同地区、不同种类原料中的放射性核素的比活度也有几十倍的差别,例如德国煤中⁴⁰K的波动范围在10~700 Bq/kg。



○——焦炭(Coke), ···——生铁(Iron), ———粗钢(Steel)

图2 1998—2014年中国焦炭、生铁、粗钢产量

Fig. 2 Annual production of coke, iron and steel in China during 1998-2014

目前我国仅掌握了钢铁行业部分原料和固体废物中部分天然放射性物质的比活度(表1)。2006—2009年的第一次全国污染源普查结果显示,铁矿石中²³⁸U、²³²Th、²²⁶Ra的平均比活度分别为270、68、288 Bq/kg,而煤中²³⁸U、²³²Th、²²⁶Ra的平均比活度分别为383、51、212 Bq/kg^[8]。而且各地的煤中放射性核素的含量差异很大,甚至达到3~4个数量级^[9]。我国的煤炭可分为动力煤和炼焦煤两种,这两个调查中的煤矿数据代表了全国煤炭的总体放射性水平,但这些煤炭只有一部分用于钢铁冶炼,还有一部分用于燃煤发电。

表 1 国内外钢铁冶炼所用原料放射性水平比较

Table 1 Radioactivity of raw materials in global iron and steel production

原料(Raw materials)	国家(Country)	^{238}U	^{232}Th	^{230}Th	^{228}Ra	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po	Bq/kg ^{40}K
铁矿石(Iron ore)	英国(UK) ^[5]	15							
	澳大利亚(Australia) ^[10]	31			42	16	39		
煤(Coal)	意大利(Italy) ^[11]					3.5~16.8	3.46~17.9		
	中国(China) ^[8]	270 ^a	68 ^a		288 ^a				
	英国(UK) ^[5]	20	20						
	英国(UK) ^[12]	7~19	7~19	8.5~25.5	7.8~21.8				55~314
	美国(USA) ^[12]	6.3~73	3.7~21.1		8.9~59.2	12.2~77.7	3.3~51.8		
	澳大利亚(Australia) ^[12]	8.5~47	11~69	21~68	19~24	20~33	16~28		23~140
	德国(Germany) ^[12]		10~63		10~145				10~700
	意大利(Italy) ^{[12]b}	23±3	18±4						218±15
	埃及(Egypt) ^[12]	59	8		8	26			
	中国(China) ^{[8]c}	383 ^a	51 ^a		212 ^a				
石灰石(Limestone)	中国(China) ^[9]	2.4~9.020	1.8~4.600		1.9~11.200				5~1.200
	澳大利亚(Australia) ^[10]	79.8±45 ^d	40.4±34 ^d		73.9±53 ^d				152.4±21 ^d
石灰(Lime)	意大利(Italy) ^[11]	<20			14	7	92		
	意大利(Italy) ^[11]					12.1±0.6	11.7±0.6		
	意大利(Italy) ^[11]					12.8±0.6	12.2±0.7		
焦炭(Coke)	澳大利亚(Australia) ^[10]	26			26	26	61		
	意大利(Italy) ^[11]					16.4±0.7	13.4±1.3		

注(Notes): a, 平均值(Average); b, 褐煤平均值(Average for lignite); c, 矿产品和原料的含量, 仅为样品测量数据, 不作为中国的代表数据(Average for minerals and raw materials in iron and steel making, representation of the limited samples but not the whole China); d, 全国按样品数加权平均值(Weighted mean by the number of samples in China)

2.3 气态流出物中天然放射性核素的含量

钢铁冶炼气态流出物中的主要放射性核素是²¹⁰Pb和²¹⁰Po(表 2),因为它们的熔点较低,由于²¹⁰Po的熔点比²¹⁰Pb更低,因此气态流出物中²¹⁰Po的比活度要高于²¹⁰Pb。从不同工艺的排放情况

对比来看,转炉炼钢大于高炉炼铁,高炉炼铁大于烧结,这跟它们的温度也是有密切关系的,温度越高,排放量越大。电炉炼钢有所不同,因为它所用的原料是废钢,²¹⁰Pb和²¹⁰Po的含量小,因此气态流出物中的比活度也小。

表 2 钢铁冶炼排放粉尘中天然放射性水平
Table 2 Natural radionuclides in dusts from iron and steel production

粉尘(Dusts)	国家(Country)	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po
烧结烟囱排放粉尘(Dust from sinter plant stacks)	英国(UK) ^[5]	1.13×10^4	9.98×10^4
	英国(UK) ^{[5]a}	1.0(0.111)	2.8(0.222)
	澳大利亚(Australia) ^[10]	100	1 670
	埃及(Egypt) ^[13]	19 ± 3	65 ± 2
高炉烟囱排放粉尘(Dust from blast furnace stacks)	英国(UK) ^[5]	8×10^3	2.8×10^3
	埃及(Egypt) ^[13]	$2\,340 \pm 36$	470 ± 15
	意大利(Italy) ^{[11]b}	43.4 ± 1.8	61.5 ± 5.0
	意大利(Italy) ^{[11]c}	$(32.4 \pm 3.7) \times 10^3$	$(78.0 \pm 7.3) \times 10^3$
转炉烟囱排放粉尘(Dust from converter stacks)	意大利(Italy) ^{[11]b}	292 ± 13	444 ± 24
电炉烟囱排放粉尘(Dust from electric arc furnace stacks)	埃及(Egypt) ^[13]	37~83	214~436
高炉和转炉泥浆储存池排放粉尘 (Dust from slurry lagoons of blast furnaces and converters)	英国(UK) ^[5]	360	88

注(Notes):a,数据为每千克烟气中放射性核素的含量,括号内为英国 1993 年颁布的《放射性物质法案》对每千克烟气中²¹⁰Pb、²¹⁰Po 含量的限值(Activity concentrations for gaseous release and the limits of ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po regulated by Radioactive Substances Act 1993 in UK);b,意大利 ILVA 钢铁厂 2003 年采样(Samples collected from the Iron- and Steel-Making Plant ILVA, Italy in 2003);c,意大利 ILVA 钢铁厂 2009 年采样(Samples collected from the Iron- and Steel-Making Plant ILVA, Italy in 2009)

从意大利 ILVA 钢铁厂的研究结果^[11]来看,气态流出物中的²¹⁰Po的比活度要高于²¹⁰Pb。烟囱排放的气态流出物中²¹⁰Pb和²¹⁰Po的比活度最高,其次是第二级和第一级过滤系统。而第一级过滤系统的颗粒物粒径是最大的,由此可见,²¹⁰Pb和²¹⁰Po主要吸附在小颗粒物上。这一点从意大利钢铁厂周围大气颗粒物中的²¹⁰Po和²¹⁰Pb的比活度^[11]也可以看出,PM_{2.5}和PM₁₀中的²¹⁰Po和²¹⁰Pb的比活度接近,说明大部分²¹⁰Po和²¹⁰Pb都吸附在PM_{2.5}中。这是因为钢铁冶炼过程中排放的颗粒物多为氧化铁粉尘,其粒径在1 μm以下的为主。由于粒径小,比表面积大,吸附力强,因此粒径更小的颗粒物易成为吸附有害气体、重金属的载体。钢铁冶炼排放的气态²¹⁰Po、²¹⁰Pb和其它气态污染物经过冷凝、核化等过程可以转变为

颗粒物,再与其它颗粒物凝并和聚结,或凝结到更大的颗粒物上。

2.4 天然放射性核素的年排放量

根据文献[2,5,11]整理英国、荷兰和意大利钢铁厂气态、液态流出物、炉渣的产生量列于表 3。一个钢铁冶炼厂的年放射性排放水平取决于年处理铁矿量、原料中放射性核素的比活度和除尘设施、污水处理设施的工作效率、固体废物的综合利用率。对钢铁冶炼产生大气颗粒物中²¹⁰Po、²¹⁰Pb的排放量估算主要有基于原料特性和基于排放物特性的两种方法。

基于原料特性的估算法是指根据钢年产量和原料中铁的含量估算铁矿石、石灰石、石灰、煤(或焦炭)等原料的总量,再根据原料中²¹⁰Pb和²¹⁰Po的比活度和原料总量估算放射性排放总量,意大

表 3 国际钢铁厂气态、液态流出物、炉渣的产生量对比
Table 3 Discharges of radionuclides in the aerial and water effluents and the slags from global iron and steel production

国家 (Country)	粗钢年产量 (Annual production of crude steel)/ Mt	气态流出物 (Aerial effluents)/ (GBq · a ⁻¹)			液态流出物 (Water effluents)/ (GBq · a ⁻¹)		炉渣 (Slag)/ (GBq · a ⁻¹)		进入电厂的气体 (Gas into the power plant)/(GBq · a ⁻¹)	
		²²² Rn	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po
		英国(UK) ^{[5]a}	3.9		6.22	39.6				
英国(UK) ^{[5]b}			4.7	30						
英国(UK) ^{[5]c}			5	32						
英国(UK) ^{[5]d}			5.3	33						
荷兰(Netherlands) ^{[2]e}	5.6	350	55	91	0.51	8				
荷兰(Netherlands) ^{[2]f}			100	100	0.21	0.87	1.4	2.5	0.72	0.72
意大利(Italy) ^[11]	12		271	264						

注(Notes): a—d, 分别代表 1990 年英国 CORUS 钢铁集团的斯肯索普、雷德卡、兰韦恩、塔尔博特港钢铁厂, 其中兰韦恩钢铁厂 2001 年停止炼铁(Data of steel production plants in Scunthorpe, Redcar, Llanwern and Port Talbot, owned and operated by CORUS in UK. Llanwern ceased iron production in 2001); e, 1990 年数据(Data in 1990); f, 1988 年数据(Data in 1988)

利钢铁厂的排放量计算即采用该法^[11], 该方法是基于原料中的铁会全部转化为钢、原料中²¹⁰Pb和²¹⁰Po会全部释放到环境中这两个前提假设, 但是由于高炉炉渣中也会含有²¹⁰Pb和²¹⁰Po, 而且废渣和废水处理后的尘泥等固体废物有可能原位处置和储存, 并不排放到周围环境中, 因此会高估排放总量。

基于排放物特性的方法是指根据烧结、焦化、炼铁、炼钢等工艺流程中的烟囱废气排放量、²¹⁰Pb和²¹⁰Po的比活度估算放射性排放总量, 如英国斯肯索普钢铁厂^[5]即采用此方法, 但其只考虑了烧结厂和炼铁高炉中气载流出物的排放, 该方法由于忽略了厂区逸散等无组织排放、焦化厂和炼钢高炉的排放, 因此存在一定的低估。

2.5 固体废弃物中放射性核素含量

钢铁冶炼产生的固体废弃物中, 烧结尘泥和高炉尘泥中富集的核素主要是²¹⁰Pb和²¹⁰Po, 烧结尘泥中²¹⁰Po的富集程度显著高于²¹⁰Pb, 因为²¹⁰Po的熔点比²¹⁰Pb更低, 所以更易挥发; 而高炉炉渣中富集的核素主要是²³⁸U和²³²Th, 比原料中的含量高一个数量级, ²¹⁰Pb和²¹⁰Po的比活度大幅衰减(表 4)。

第一次全国污染源普查得到的中国钢铁冶炼固废(尾矿、废渣)中²³⁸U、²³²Th、²²⁶Ra的平均比活度分别为 246、135、247 Bq/kg, 都低于 IAEA^[18]的清洁解控水平(1 000 Bq/kg)。

2.6 钢铁冶炼对公众的辐射影响及辐射安全监管现状

IAEA 对天然铀和钍衰变链中每种放射性核素规定的清洁解控水平为 1 Bq/g, ⁴⁰K 的清洁解控水平为 10 Bq/g^[18]。欧盟于 1996 年 5 月 13 日出台了关于 NORM 规定的欧洲基本安全标准, 将 NORM 废物分为废石、飞灰、砂砾、炉渣、油气工业的泥浆等五种, 分别给出了清洁解控水平, 其中和钢铁冶炼有关的是废石、飞灰和炉渣, 飞灰中²¹⁰Pb和²¹⁰Po的清洁解控水平分别为 17、9.6 kBq/kg^[16]。欧盟还给出了使用含有天然放射性核素物质的清洁解控水平, 即²³⁸U和²³²Th达到长期平衡时的比活度为 500 Bq/kg^[16]。欧盟将 NORM 工业活动划分为 5 类^[19]。荷兰钢铁冶炼属于 B 类, 即剂量水平为一般情况下 0.1~1 mSv/a, 特殊条件下 1~6 mSv/a, 主要是在烧结厂的剂量较高。

荷兰 2001 年颁布的《荷兰辐射防护法》(Dutch Radiation Protection Decree)规定了一系列天然放射性核素的清洁解控水平, 与 2003 年欧盟的指导文件 RP122/II 有较大的差异, 荷兰法律中规定的²¹⁰Pb和²¹⁰Po的比活度为 100 kBq/kg, 是欧盟 RP122/II 的 20 倍^[20]。其中还规定了每个装置的气态和液态天然放射性流出物的清洁解控水平(表 5), 建立了较为完善的清洁解控、报告、批准体系。气态流出物中天然放射性核素

表4 国内外钢铁冶炼产生的固体废弃物的放射性水平比较
Table 4 Radioactivity of solid wastes from global iron and steel production

固体废弃物(Solid wastes)	国家(Country)	²³⁸ U	²³² Th	²²⁶ Ra	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	Bq/kg
烧结粉尘(Waste from gas cleaning system of sinter plant)	英国(UK) ^[5]				0.91×10^3	3.94×10^3	
	埃及(Egypt) ^[13]				30 ± 3	87 ± 3	
烧结管道粉尘(Ductwork dust)	澳大利亚(Australia) ^[10]	<30		24	1.89×10^4	1.56×10^4	
高炉富锌滤饼(Zinc-rich filtercake)	荷兰(Netherlands) ^{[2]a}				$(1.5 \sim 2.5) \times 10^4$		
高炉生泥(Blast furnace slurry)	英国(UK) ^{[5]b}				$0.90 \times 10^3 (0.36 \times 10^3)$	$0.22 \times 10^3 (0.09 \times 10^3)$	
高炉过滤系统(Filter systems of blast furnace)	意大利(Italy) ^[11]				$5.44 \times 10^3 \sim 18.8 \times 10^3$	$5.91 \times 10^3 \sim 22.5 \times 10^3$	
高炉炉渣(Blast furnace slag)	英国(UK) ^[5]	180	280	190	140	260	
	英国(UK) ^[14]	150	150	150	150		
	欧盟(EU) ^[5]	270	70				
	荷兰(Netherlands) ^{[15]a}	$150 \sim 160$	$150 \sim 160$		10	1	
	荷兰(Netherlands) ^{[2]a}	180	180	180	11		
	德国(Germany) ^[16]		$30 \sim 98$	$64 \sim 380$			
	埃及(Egypt) ^[13]				<DL	45 ± 1.4	
	中国(China) ^{[8]c}	246 ^c	135 ^c	247 ^c			
	中国(China) ^{[17]d}		$504.0 \sim 696.5$	90.9			
电炉渣(Electric arc furnace slag)	埃及(Egypt) ^[13]				<DL	61 ± 2	
堆渣池(Slag lagoon)	英国(UK) ^[5]				0.90 k	0.29 k	

注(Notes): a, 荷兰艾默依登市的钢铁厂数据(Samples collected from the primary iron production plant at IJmuiden, the Netherlands); b, 数据为脱水后的活度浓度, 括号内为除尘器处理后含水尘泥的活度浓度(Concentrations following reduction in water content and initial concentrations in wet waste from gas cleaning systems); c, 固废(尾矿、废渣)的含量, 仅为样品测量数据, 不作为中国的代表数据(Average for solid wastes such as tailings and slags in iron and steel making, representation of the limited samples but not the whole China); d, 中国包钢数据(Samples collected from Baotou Steel, China); e, 平均值(Average); f, DL 为检测限(DL is the detection limit)

^{210}Pb 和 ^{210}Po 的清洁解控水平均为 10 GBq/a ,而荷兰艾默依登钢铁厂 1990 年气载放射性年排放量为 $55\text{ GBq/a }^{210}\text{Pb}$ 、 $91\text{ GBq/a }^{210}\text{Po}$,因此该钢铁厂气载放射性物质需要批准才能排放,并需要进行定期监测。从监测结果来看,1993—2007 年荷兰艾默依登钢铁厂烧结和球团工艺每年排放到大气中的 ^{210}Po 活度约为 100 GBq , ^{210}Pb 活度小于 $50\text{ GBq}^{[21]}$ 。

表 5 《荷兰辐射防护法》规定工业活动
每个装置天然放射性流出物的清洁解控水平^[20]
Table 5 Clearance levels of aerial and liquid discharges
of natural radionuclides as a consequence
of work activities per installation
in the Netherlands ^[20] GBq/a

放射性核素 (Radionuclides)	气态流出物 (Aerial discharge)	液态流出物 (Liquid discharge)
^{238}U	10	1 000
^{232}Th	1	100
^{228}Ra	1	100
^{226}Ra	10	10
^{210}Pb	10	10
^{210}Po	10	10

IAEA 建议将 $10\text{ }\mu\text{Sv/a}$ 的剂量限制作为清洁解控水平。1990 年英国康力斯集团(CORUS)的四家钢铁厂烟囱排放引起的全年个人有效剂量为 $3.5\sim 30.6\text{ }\mu\text{Sv/a}$,正在运行的雷德卡钢铁厂、斯肯索普钢铁厂、塔尔博特港钢铁厂烟囱排放引起的个人剂量分别为 3.5 、 5.8 、 $9.4\text{ }\mu\text{Sv/a}$,均低于 $10\text{ }\mu\text{Sv/a}$,主要年龄组是婴儿,主要暴露途径是食物^[5]。意大利 ILVA 钢铁厂烟囱排放引起的平均个人剂量为 $27.2\text{ }\mu\text{Sv/a}$,主要年龄组是成人,主要暴露途径是吸入^[11]。荷兰艾默依登钢铁厂的放射性排放会造成周围地区最大 $40\text{ }\mu\text{Sv/a}$ 的有效剂量,该工厂必须设法将其降至 $4\text{ }\mu\text{Sv/a}^{[2]}$ 。

英国于 1993 年颁布的《放射性物质法案》对 ^{210}Pb 、 ^{210}Po 的比活度给出了具体的规定,分别为 0.74 、 0.37 kBq/kg ,烧结除尘系统收集的粉尘中 ^{210}Pb 、 ^{210}Po 比活度较大,分别为 0.91 、 3.94 kBq/kg ,因此这些固体废弃物需要通过批准才能排放。并且,相关监管部门还给出了各个钢铁厂最大允许排放的 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的量,针对斯肯索普钢铁厂制定的 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的气载放射性排放限值分别为 29 、 53 GBq/a ,而该钢铁厂 1990 年气

载放射性年排放量分别为 $6.22\text{ GBq/a }^{210}\text{Pb}$ 、 $39.6\text{ GBq/a }^{210}\text{Po}$,达到排放要求^[5]。填埋场粉尘中 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的比活度低于英国 1962 年颁布的放射性物质(磷酸盐、稀土元素等)的解控法令中的规定,因此其排放不需要批准。表面使用含炉渣材料的停车场和游乐场的剂量都低于 $10\text{ }\mu\text{Sv/a}$,即处于痕量水平。使用含炉渣的建材造成的辐射影响与假设条件有关,最多可使得居民的剂量增加 $81\text{ }\mu\text{Sv/a}$ 。高炉工人的剂量较高,达到 $84\text{ }\mu\text{Sv/a}$,主要暴露途径为不经意摄入,占 74% ,烟囱排放造成的集体剂量为 $6.5\text{ 人}\cdot\text{Sv}^{[5]}$ 。

德国主要考虑处理高炉尘泥的工人所受的职业照射,通过情景分析发现最主要的暴露途径是粉尘的吸入^[22]。如果比活度在 50 Bq/g 以下,则工人所受的参考剂量值不超过 1 mSv/a ,而公众的暴露水平很小,与工人相比可以忽略,因此只要比活度低于 50 Bq/g ,这些废弃物就可以得到政府辐射防护管理的豁免。

3 结论与展望

钢铁冶炼是重要的 NORM/TENORM 工业活动之一。目前,德国、意大利、英国、荷兰、澳大利亚等国家已在钢铁冶炼的天然放射性排放和辐射照射管理方面取得了很多的进展,我国尚处于起步阶段,有很多相关问题值得进一步研究。

(1) 钢铁冶炼的放射性来源是其原料(铁矿石、煤、石灰石等)中含有的 U 系、Th 系核素。天然放射性核素排放的两个主要阶段是烧结和炼铁。气态流出物中 ^{210}Po 的富集程度显著高于 ^{210}Pb 。高炉炉渣中富集的核素主要是 ^{238}U 和 ^{232}Th , ^{210}Pb 和 ^{210}Po 比活度大幅衰减。从国外研究结果看,大多只关注烧结、炼铁等工艺,未将铁矿开采、煤矿开采、焦化等工艺纳入其中。从全生命周期的角度考虑,应对钢铁冶炼过程涉及的铁矿开采、焦化、烧结、炼铁、炼钢、废弃物再利用等环节进行全面分析和评价。

(2) 欧盟基于荷兰艾默依登钢铁厂的数据给出了单位铁产量的放射性排放因子,废气为 $10.5\text{ GBq/Mt }^{210}\text{Pb}$ 和 $17.5\text{ GBq/Mt }^{210}\text{Po}$,废水为 $0.31\text{ GBq/Mt }^{210}\text{Pb}$ 、 $1.6\text{ GBq/Mt }^{210}\text{Po}$ 。英国斯肯索普钢铁厂单位铁产量 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的放射性排放因子分别为 1.68 、 1.07 GBq/Mt ,意大利 ILVA 钢铁厂单位钢产量 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的放射性排放因子为 22.6 、 22.0 GBq/Mt 。我国尚无相关数据,需要开展钢

铁冶炼放射性排放研究。

(3) 目前已有部分国家和国际组织制订了针对天然放射性物质排放的审管标准,建立豁免、报告、批准的分级审管体系,给出各放射性核素的清洁解控水平、单个装置的排放总量限值,对低于清洁解控水平的废物进行豁免,对高于清洁解控水平的废物进行监管。IAEA 建议将 $10 \mu\text{Sv/a}$ 的剂量限值作为清洁解控水平。欧盟规定飞灰中 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的清洁解控水平为 17 kBq/kg 和 9.6 kBq/kg 。荷兰规定每个工业装置气态流出物中 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的清洁解控水平均为 10 GBq/a 。欧盟规定 ^{238}U 、 ^{232}Th 、 ^{226}Ra 清洁解控水平为 500 Bq/kg , IAEA 为 1000 Bq/kg 。从标准和各国的排放水平来看,烧结排放的 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 高于清洁解控水平,需要批准才能排放。

(4) 我国钢铁产量巨大,钢铁冶炼的 $\text{PM}_{2.5}$ 排放因子较高,钢铁冶炼所用原料(煤、铁矿石等)中的放射性核素的比活度处于较高的水平,说明 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 的排放应引起特别关注。从我国研究现状来看,目前仅针对废钢、高炉渣、尾矿等固体物质进行了一定的研究,而对钢铁冶炼过程中的气态和液态流出物排放尚未开展研究,特别是气态流出物中天然放射性核素 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 排放对周围公众有较大的影响。我国对 NORM 废物的辐射监管处于初期尚需规范化,而钢铁冶炼的放射性污染防治至今尚未纳入辐射监管,对其开展深入调查分析对于制定我国的 NORM 监管策略具有重要意义。

(5) ^{210}Pb 和 ^{210}Po 更易吸附在超细颗粒物上,目前主流的烟囱气溶胶采样装置采用的玻璃纤维滤膜无法将其完全捕获,而且采样量通常较小,无法满足测量 ^{210}Pb 的要求,因此需要开发大流量滤膜吸收液联合采样装置,用含 HCl 的吸收液采集超细颗粒物或气态 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 。此外,我国目前尚未制定气溶胶中 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的测量标准,特别是采样量较小时, ^{210}Pb 通常低于 γ 谱检测限,因此需要研究气溶胶 ^{210}Pb 的放射化学分析法,通过其子体 ^{210}Po 或 ^{210}Bi 进行测量。

(6) 放射性气体 ^{222}Rn 是 ^{226}Ra 的子体,在高温冶炼的过程中,随着原料物质结构的破坏,几乎全部通过烟囱排放到大气中,对公众造成的剂量也不可忽视。但是目前国际普遍忽视了对 ^{222}Rn 的测量和剂量评价。荷兰钢铁厂根据原料 ^{226}Ra 的含量推算 ^{222}Rn 的排放量达到 350 GBq/a ,远高

于 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 的排放量。因此需要深入研究烟气中 ^{222}Rn 的直接测量方法,并评价其排放对公众造成的辐射影响。

参考文献:

- [1] 潘自强,刘森林. 中国辐射水平[M]. 北京:原子能出版社,2010:8-9.
- [2] Leenhouts H P, Stoop P, van Tuinen S T. Non-nuclear industries in the Netherlands and radiological risks, Report No 610053003[R]. Bilthoven: National Institute of Public Health and the Environment, 1996.
- [3] Worldsteel Association. World crude steel output increases by 1.2% in 2014[OL]. Brussels: Worldsteel Association, 2015, [2015-04-26]. <http://www.worldsteel.org/media-centre/press-releases/2015/World-crude-steel-output-increases-by-1.2-in-2014.html>.
- [4] 环境保护部. 2013年中国环境统计年报[R]. 北京:环境保护部,2014.
- [5] Crockett G M, Smith K R, Oatway W B, et al. Radiological impact on the UK population of industries which use or produce materials containing enhanced levels of naturally occurring radionuclides; Part II the steel production industry, NRPB-W48 [R]. Chilton: National Radiological Protection Board, 2003.
- [6] Tuck C A. Mineral commodity summaries, iron ores[R]. Reston: U. S. Geological Survey, 2015.
- [7] 中华人民共和国国家统计局. 1998—2014年工业产品产量[OL]. 北京:中华人民共和国国家统计局, 2015[2015年11月28日].
- [8] 刘华,罗建军,马成辉. 第一次全国污染源普查伴生放射性污染源普查及结果初步分析[J]. 辐射防护, 2011,31(6):334-341.
- [9] 刘福东,潘自强,刘森林,等. 全国煤矿中煤、矸石天然放射性核素含量调查分析[J]. 辐射防护, 2007,27(3):171-180.
- [10] Cooper M B. Naturally occurring radioactive materials (NORM) in Australian industries; review of current inventories and future generation, ERS-006[R]. Beaumaris, Enviro Rad Services, 2003.
- [11] Jia Guogang. The radiological impact of ^{210}Pb and ^{210}Po released from the Iron- and Steel-Making Plant ILVA in Taranto (Italy) on the environment and the public[J]. Journal of Chemistry, 2013, Article ID 964310, 1-19.
- [12] IAEA. Extent of environmental contamination by

- naturally occurring radioactive material (NORM) and technological options for mitigation, IAEA technical reports series No. 419[R]. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2003.
- [13] Khater A E M, Bakr W F. Technologically enhanced ^{210}Pb and ^{210}Po in iron and steel industry[J]. *J Envir Radioa*, 2011, 102(5): 527-530.
- [14] Martin A, Mead S, Wade B O. Materials containing natural radionuclides in enhanced concentrations, EUR17625 EN[R]. Luxembourg: European Commission, 1997.
- [15] Chen M, Degrange J-P, Gerchikov M Y, et al. Effluent and dose control from European Union NORM industries, assessment of current situation and proposal for a harmonised community approach, volume 1: main report, radiation protection 135 [R]. Luxembourg: European Commission, 2003.
- [16] EC. Practical use of the concepts of clearance and exemption: Part II application of the concepts of exemption and clearance to natural radiation sources, radiation protection 122 [R]. Luxembourg: European Commission, 2002.
- [17] 蔡珂, 蔡英茂, 刘志鹏. 对包钢新高炉渣综合利用途径的探讨[J]. *包钢科技*, 2008, 34(5): 77-80.
- [18] IAEA. Radiation protection and safety of radiation sources: international basic safety standards: general safety requirements, interim edition, No GSR Part 3 (Interim)[R]. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2011.
- [19] Penfold J S S, Degrange J-P, Mobbs S F, et al. Establishment of reference levels for regulatory control of workplaces where materials are processed which contain enhanced levels of naturally-occurring radionuclides, radiation protection 107[R]. Luxembourg: European Commission, 1999.
- [20] Van der Steen J, Van Weers A W. Radiation protection in NORM industries [C] // Proceedings of 11th International Congress of the International Radiation Protection Association IRPA11, Madrid, Spain, 22-28 May 2004. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2004.
- [21] Tanzi C P. Industries processing naturally occurring radioactive materials; twenty years of emission data in the Netherlands[C] // IRPA 12: 12th Congress of the International Radiation Protection Association (IRPA); Strengthening Radiation Protection Worldwide, Buenos Aires, Argentina, 19-24 October 2008. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2008.
- [22] Döring J, Gerler J, Beyermann M, et al. Identification of enhanced concentrations of ^{210}Pb and ^{210}Po in iron ore industry[C] // IAEA Naturally Occurring Radioactive Materials (NORM IV), Proceedings of an International Conference Held in Szczyrk, Poland, 17-21 May 2004. TECDOC-1472, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2005: 213-216.