

有色金属矿产品的天然放射性管理限值与监管探讨

严文勋¹ 李建军¹ 封亚辉¹ 郑建明¹ 程 薇¹ 朱金连²

中图分类号: R144.1 文献标识码: C 文章编号: 1004-714X(2011)02-0162-03

【摘要】 目的 对有色金属矿产品的天然放射性限值进行商榷与探讨。方法 针对我国现行的《有色金属矿产品的天然放射性限值》(GB 20664-2006)标准中关于有色金属矿产品放射性剂量限值和核素比活度限值存在的问题,提出相应解决方法。结果 建议按照“外来剂量+现场本底值”的剂量限值监管模式作相应改进。结论 为制订或修订我国有色金属矿产品放射性限值标准的新思路。

【关键词】 有色金属矿产品;放射性;剂量限值;比活度限值

1 我国有色金属矿产品放射性管理限值与监管的现状

我国已于 2003 年开始实施《中华人民共和国放射性污染防治法》。该法要求对伴生放射性矿开发利用过程中发生的放射性污染采取防治活动。而我国对矿产品中放射性核素的限制起步晚,2006 年颁布实施的 GB 20664—2006 中规定对有色金属矿产品放射性的检测标准为:在距有色金属矿产品货堆(直径 $\geq 2\text{m}$,厚度 $\geq 1\text{m}$)表面 0.1m 处测量的条件下,矿产品 γ 辐射剂量率(包括环境 γ 本底剂量率)的现场检测筛选水平为 400nGy/h,同时满足有色金属矿产品的天然放射性核素 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 衰变系中的任一核素比活度 $\leq 1\text{Bq/g}$, $^{40}\text{K} \leq 10\text{Bq/g}$ 。可见,GB 20664—2006 对有色金属矿产品中所含的天然放射性核素的比活度作了明确的规定,同时规定了以 400nGy/h(包括环境本底 γ 剂量率)作为现场检测筛选水平。该标准的实施对我国进口有色金属矿产品的放射性检测及监测具有指导意义。

2 存在的问题

GB 20664-2006 在制订过程中参照了国际原子能机构(IAEA)《排除、豁免和清洁解控概念的应用》安全导则^[1],采纳了 IAEA 推荐的天然放射性核素的比活度限值(^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 衰变系中的任一核素放射性比活度 $\leq 1\text{Bq/g}$, $^{40}\text{K} \leq 10\text{Bq/g}$)。并在此基础上,根据放射性核素的比活度限值推算出了标准中所规定的现场检测筛选水平为 400 nGy/h,其具体的推算过程如下^[2,3]:

由于实际的有色金属矿产品中 ^{232}Th 的含量一般均低于 ^{238}U 的含量,同时考虑到 ^{232}Th 系列的 γ 辐射剂量率转换系数比 ^{238}U 系列要大(实际测得的天然放射性核素 ^{238}U 的剂量率转换系数为 339.6 nGy/h/Bq/g, ^{232}Th 为 413.4 nGy/h/Bq/g, ^{40}K 为 35.6 nGy/h/Bq/g),确定把 ^{238}U 系列外照射剂量作为主要控制对象是偏安全的。因此,以天然放射性核素 ^{238}U 的比活度达到上限值时来推算矿产品的 γ 辐射剂量率限值。此外,综合考虑了环境中 γ 本底剂量率(取平均值 60nGy/h)和矿产品中实际的 ^{40}K 核素的剂量贡献(根据实际的测量结果,按 0.3Bq/g 考虑,约产生 35.6 $\times 0.3 = 10\text{nGy/h}$ 剂量贡献),推算出 γ 剂量限值为:339.6 $\times 1$ (^{238}U 的比活度达到上限值 1 Bq/g 时的剂量贡献)+60(天然本底的剂量贡献)+35.6 $\times 0.3$ (^{40}K 的贡献)=410 nGy/h,偏安全地选择了 400 nGy/h(包括环境本底的贡献)作为现场的 γ 剂量率的筛选水平。

从上述推算过程也可以看出,正是选择了 ^{238}U 系的比活度 1 Bq/g 作为推算剂量限值的依据。这样的推算过程表面上看

是合理的,然而实际情况并非如此。根据各核素的剂量率转化系数: ^{238}U 为 339.6nGy/h/Bq/g, ^{232}Th 为 413.4nGy/h/Bq/g, ^{40}K 为 35.6nGy/h/Bq/g,如果这些核素的比活度都达到上限标准:1.0Bq/g、1.0Bq/g、10.0Bq/g,那么所造成的剂量率将为 339.6+413.4+35.6=1109 nGy/h,换算为年剂量率将达到 9.7 mSv/a,远超出了 IAEA 给出的安全的剂量率限值 1 mSv/a。当然,实际的各种产品和物料中所含的核素比活度都是各异的,同时达到 IAEA 所规定的上限值的可能性很小,但作为剂量率管理限值的推导,必须考虑到存在这样的可能性。同时,根据叶际达等^[4]对湖南省石煤伴生矿放射性的研究,其原矿石中各种天然放射性核素的平均比活度分别为: ^{238}U : 402Bq/kg、 ^{226}Ra : 497 Bq/kg、 ^{232}Th : 18.3 Bq/kg、 ^{40}K : 269 Bq/kg,其比活度均低于 IAEA 的推荐值(即《有色金属矿产品的天然放射性限值》中的规定值),但当地利用石煤渣制成碳化砖建房,所建的砖房中的居民每年受到的附加剂量平均值达到 3.2mSv,远超过 1mSv 的年有效剂量限值。因此,仅依靠 IAEA 推荐的核素比活度限值来推导剂量限值是不合适的,应当通过剂量限值来反推核素的比活度限值。

我国不同地区的天然放射性本底值有着较大的差别,据 UNSCEAR 2000 年报告^[5],我国室外 γ 空气吸收剂量率约为 2~340 nGy/h,均值为 62 nGy/h;文献[6]中则指出我国广东阳江地区的放射性天然本底 370 nGy/h,超出平均水平 5 倍之多。这些决定了我国各口岸的放射性本底值也会不尽相同。

因此,笔者认为,GB 20664—2006 中采用统一的平均本底值的计算方式是不合理的,应当考虑到当地实际的天然本底水平。

3 解决方案

笔者认为应当是根据年剂量率限值 1mSv 来反推核素的比活度限值。在兼顾 IAEA 所推荐的剂量限值(1mSv/a)和不同口岸实际的天然本底值的前提下,可根据如下方法推算出核素的比活度限值和现场剂量筛选水平值:

公认的基于土壤放射性核素比活度的剂量估算公式为^[7]:

$$E_{\text{out}} = (\sum C_i \times K_i) \times 0.2 \times 8760 \quad (1)$$

$$E_{\text{in}} = (\sum C_i \times K_i) \times 0.8 \times 8760 \times F \quad (2)$$

$$E_{\text{terr}} = E_{\text{out}} + E_{\text{in}} \quad (3)$$

式中 E_{terr} 、 E_{out} 和 E_{in} 分别是总年有效剂量当量、室外年有效剂量当量和室内年有效剂量当量,μSv/a;0.2和0.8分别表示室外、室内滞留因子^[8]; C_i 分别是土壤中放射性核素 ^{40}K 、 ^{238}U 系和 ^{232}Th 系核素的比活度(Bq/kg); K_i 分别是上述核素比活度到室外有效剂量率的转换因子($\text{nSv} \cdot \text{h}^{-1} / \text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$),根据 UNSCEAR2000 报告, ^{40}K 、 ^{238}U 系和 ^{232}Th 系核素的转换因子分别为 0.030、0.31、0.42; F 是室内外空气吸收剂量率之比,据 UNSCEAR2000 报告,我国的室内外空气吸收剂量率之比为

基金项目:国家质检总局科技计划项目(编号 2009IK121)

作者单位:1 江苏出入境检验检疫局,江苏 南京 210001;2 镇江出入境检验检疫局,江苏 镇江 212003

作者简介:严文勋(1980~),男,湖北荆州人,工程师,博士,从事化矿金相关检测研究工作。

1.6^[5]。

由上述公式(1)、(2)、(3)可得:

$$E_{\text{terr}} = E_{\text{out}} + E_{\text{in}} = (\sum C_i \times K_i) \times 0.2 \times 8760 + (\sum C_i \times K_i) \times 0.8 \times 8760 \times F \quad (4)$$

$$\sum C_i \times K_i = \frac{E_{\text{terr}}}{0.2 \times 8760 + 0.8 \times 8750 \times F} \quad (5)$$

从计算核素比活度限值的角度考虑,对于单个核素,可以认为:

$$C_i = \frac{E_{\text{terr}}}{K_i (0.2 \times 8760 + 0.8 \times 8750 \times F)} \quad (6)$$

式(6)中不包括天然本底的贡献。据式(6)得到²³⁸U系、²³²Th系和⁴⁰K的比活度估算值见表1。

根据IAEA报告(RS-G-1.7)^[11]多种放射性混合材料的限值计算公式,可得到有色金属矿产品中天然放射性核素的比

表1 ²³⁸U系、²³²Th系和⁴⁰K核素的比活度估算值(未计算天然本底)

核素	核素比活度(Bq/kg) (E_{terr} 为1mSv)
²³⁸ U系	249
²³² Th系	184
⁴⁰ K	2 571

活度限值计算公式为:

$$\frac{C_U}{249} + \frac{C_{Th}}{184} + \frac{C_K}{2571} \leq 1.0 \quad (7)$$

式中 C_U 、 C_{Th} 、 C_K 分别为有色金属矿产品中所含核素²³⁸U系、²³²Th系和⁴⁰K的比活度(²²⁶Ra是²³⁸U的衰变子体,²²⁶Ra的比活度包含于²³⁸U系中)。估算的放射性核素比活度限值与世界其他国家和机构所制订的限值标准对比见表2。

表2 本文估算的核素比活度限值与国际上相关国家或组织的限值比较^[9-16]

核素(Bq/kg)	IAEA	《GB20664-2006》	巴西	欧盟	加拿大	德国	美国	本文估算值
²³⁸ U系	1 000	1 000	10 000	500	300	200	185	249
²³² Th系	1 000	1 000	10 000	500	300	200	185	184
⁴⁰ K	10 000	10 000	10 000	5 000	17 000	-	-	2 571

由表2可知,本文对有色金属矿产品中天然放射性核素的比活度限值的估算值与欧盟、加拿大、德国、美国的限值较为接近。

在实际照射过程中,还应该考虑天然本底的贡献,因此,核素比活度限值公式应在(7)式的基础上修正为:

$$\frac{C_U - \text{当地土壤中}^{238}\text{U的比活度}}{249} + \frac{C_{Th} - \text{当地土壤中}^{232}\text{Th的比活度}}{184} + \frac{C_K - \text{当地土壤中}^{40}\text{K的比活度}}{2571} \leq 1.0 \quad (8)$$

式中 C_U 、 C_{Th} 、 C_K 分别为实际测量的有色金属矿产品中所含²³⁸U系、²³²Th系和⁴⁰K的比活度。显然这样的方式比笼统的规定²³⁸U、²²⁶Ra、²³²Th衰变系中的任一核素放射性比活度 $\leq 1\text{Bq/g}$ 要更具有科学性。

根据表1的结果,可参考孙健等^[2-3]结合实际的推导方法得到剂量限值为: 339.6×0.249 (²³⁸U的比活度达到上限值时的剂量贡献) + 35.6×0.3 (⁴⁰K的贡献) + 现场本底值 = “95 (nGy/h) + 现场本底值”。

上述的天然放射性核素的比活度限值的估算值与加拿大、德国、美国等发达国家规定的限值较为接近。结合我国的国情,本文对有色金属矿产品的放射性的现场筛选标准考虑如下(见图1):有色金属矿产品的放射性现场筛选水平在剂量限值1以下(即图1中安全剂量区间),可以无条件豁免流通;放射性现场筛选水平大于剂量限值1而小于等于剂量限值2(即图1中相对安全的剂量区间),可以有条件地限制性流通;当放射性现场筛选水平大于剂量限值2(即图1中危险的剂量区间)则一律不允许流通。通过这样的方式来对进口有色金属矿产品的放射性水平进行筛选,有区别对待,比单一的一刀切标准更具有灵活性和合理性。

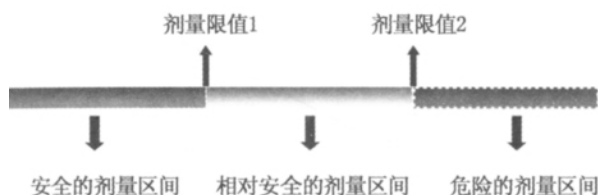


图1 本文拟定的有色金属矿产品的剂量限值体系

通过前文,图1中的限值1已确定为“95nGy/h + 现场本底值”。限值2则可通过如下的推算来确定:

ICRP对个人年有效剂量的关切程度的适当分级列于表3。

表3 个人年有效剂量率的关切程度分级^[16]

关切程度的分级	说明	剂量水平(mSv/a)
1级	严重	> 100
2级	高	10 ~ 100
3级	一般	1 ~ 10(典型天然水平)
4级	低	0.1 ~ 1
5级	微小	0.01 ~ 0.1
6级	忽略	< 0.01

根据IAEA以及UNSCEAR的研究结果^[18-5],人体所接受的照射剂量在1 mSv/a以下时,不会对人体健康产生任何影响;同时,根据表3以及我国《电离辐射防护与辐射源安全基本标准》(GB18871-2002)的规定“实践使公众中有关人群组的成员所受到的平均剂量估计值不应超过下述限值:a)年有效剂量,1 mSv;b)特殊情况下,如果5个连续年的年平均剂量不超过1 mSv,则某一单一年份的有效剂量可提高至5 mSv”,限值2可根据年剂量率为5 mSv来确定。当 E_{terr} 为5 mSv时,通过式(6)计算得到核素的比活度限值列于表4。

表4 限值2的²³⁸U系、²³²Th系和⁴⁰K核素的比活度估算值(未计算天然本底)

核素	比活度(Bq/kg) (E_{terr} 为5mSv)
²³⁸ U系	1 245
²³² Th系	920
⁴⁰ K	12 855

可得到此种条件下有色金属矿产品中天然放射性核素的比活度限值公式为:

$$\frac{C_U}{1245} + \frac{C_{Th}}{920} + \frac{C_K}{12855} \leq 1.0 \quad (9)$$

式中 C_U 、 C_{Th} 、 C_K 分别为有色金属矿产品中除去天然本底后所含核素²³⁸U系、²³²Th系和⁴⁰K的比活度。

同理,据式(9)的核素比活度限值,综合考虑天然本底的贡献,可得到如下结果:

$$\frac{C_U - \text{当地土壤中}^{238}\text{U的比活度}}{1245} + \frac{C_{Th} - \text{当地土壤中}^{232}\text{Th的比活度}}{920} + \frac{C_K - \text{当地土壤中}^{40}\text{K的比活度}}{12855} \leq 1.0 \quad (10)$$

式中 C_U 、 C_{Th} 、 C_K 分别为实际测量的有色金属矿产品中所

含²³⁸U 系、²³²Th 系和⁴⁰K 的比活度。

据此,可推算限值 2 为: 339.6×1.245 (²³⁸U 的比活度达到上限值时的剂量贡献) + 35.6×0.3 (⁴⁰K 的贡献) + 当地天然本底 = “433(nGy/h) + 现场本底值”。

4 结语

综上所述 本文所推荐的有色金属矿产品的核素比活度限值为:

进口有色金属矿产品中所含²³⁸U 系、²³²Th 系和⁴⁰K 的比活度应满足如下(10)式:

$$\frac{C_U - \text{当地土壤中}^{238}\text{U 的比活度}}{1245} + \frac{C_{Th} - \text{当地土壤中}^{232}\text{Th 的比活度}}{920} + \frac{C_K - \text{当地土壤中}^{40}\text{K 的比活度}}{12855} \leq 1.0$$

剂量限值标准为: ①当现场对矿产品的放射性剂量检测结果小于等于“95nGy/h + 现场本底值”时,进口的有色金属矿产品之放射性完全合格,可以无条件流通。②当现场对矿产品的放射性剂量检测结果虽大于“95nGy/h + 现场本底值”但小于等于“433nGy/h + 现场本底值”时,进口的有色金属矿产品可以根据实际情况,有条件地限制其流通。③当现场对矿产品的放射性剂量检测结果大于“433nGy/h + 现场本底值”时,进口的有色金属矿产品之放射性不合格,不能流通,同时需对矿产品进行核素的比活度分析,查找放射性超标的原因,或是否夹带有人工放射性源。

通常,进口的有色金属矿产品到达口岸都附带有放射性的自测报告,但这些自测的结果一般来源于非专业机构,其结果可靠性很低。历年来,我国各口岸查出放射性严重超标的进口有色金属矿产品,其所附带自测的放射性检测结果均显示为合格,这足以说明这些非专业机构的检测结果可靠性不高。因此,对于我国进口的有色金属矿产品,进口单位必须在签订合同前要求出口单位出具核素的比活度数据以及 γ 辐射剂量率。在签订的合同中要以矿产品中核素的比活度以及 γ 辐射剂量率的真实性为一个条款,约定提供的数据不真实所产生经济损失由出口方承担。进口单位应将该数据报当地出入境检验检疫局。一旦进口的有色金属矿产品的放射性达到上述标准②所规定的区间,要求进口使用单位必须进行环境影响评价,采取辐射防护措施方可进行流通使用。当进口的有色金属矿产品运抵我国口岸时,出入境检验检疫局将对矿产品的 γ 辐射剂量率进行监测分析,视实际情况决定是否对矿产品中的天然放射性核素的比活度进行分析。

通过上述的比活度限值和剂量限值标准的实施以及合同的约定,有望从源头上杜绝放射性严重超标的矿产品进入我国境内流通。

参考文献:

- [1] IAEA. Application of the Concepts of Exclusion, Exemption and Clearance [P]. NO. RS - G - 1.7 2006.
- [2] 孙健,宋吉国,王岩,等. 有色金属矿产品天然放射性核素

限量及现场检测 γ 辐射剂量率筛选水平的研究[J]. 检验检疫科学 2008, 18(1): 17-20.

- [3] 孙健,夏益华. 关于有色金属矿产品天然放射性核素限量以及现场检测 γ 辐射剂量率筛选水平的研究[A]. 北京: 第二次全国天然辐射照射与控制研讨会论文汇编[C]. 64-69.
- [4] 叶际达,孔玲莉,李莹,等. 五省放射性伴生石煤矿开发和利用对环境影响研究[J]. 辐射防护 2004, 24(1): 1-23.
- [5] UNSCEAR. Sources and Effects of Ionizing Radiation [R]. UNSCEAR 2000 Report, 2000.
- [6] 张守本. 天然本底辐射的潜在危险[J]. 世界核地质科学, 2004, 21(3): 178-186.
- [7] 任天山. 环境与辐射[M]. 北京: 清华大学出版社 2005.
- [8] UNSCEAR. 电离辐射源与效应[R]. 太原: 山西科学技术出版社 2002.
- [9] European Commission. Radiation Protection 146 - A Review of Consumer Products Containing Radioactive Substances in the European Union [M]. Luxembourg: 2007.
- [10] European Commission. Radiation Protection 135 - Effluent and dose control from European Union NORM industries Assessment of current situation and proposal for a harmonized Community approach [M]. Volume 1: 2003.
- [11] Directorate - General Environment of European Commission. Practical Use of the Concepts of Clearance and Exemption Part II: Application of the Concepts of Exemption and Clearance to Natural Radiation Sources [M]. Radiation Protection 122, 2001.
- [12] IAEA. Regulatory and Management Approaches for the Control of Environmental Residues Containing Naturally Occurring Radioactive Material (NORM) [P]. IAEA - TECDOC - 1484, 2006.
- [13] 孙庆红. 伴生放射性废物管理探讨[J]. 辐射防护通讯, 2005, 25(4): 17-24.
- [14] Wood JL, Benke RR, Rotrer SM, et al. A comparison of minimum detectable and proposed maximum allowable soil concentration cleanup levels for selected radionuclides [J]. Health Physics, 1999, 76(4): 413.
- [15] Meck RA, Cameron F, Cool D, et al. US Nuclear Regulation with Enhanced Public Participation [P]. IAEA - TECDOC - 807: 229.
- [16] 苏永杰,封有才. 我国伴生放射性矿环境管理中存在的问题的讨论[J]. 辐射防护通讯 2007, 27(1): 23-27.
- [17] Roger H Clarke. 关于面向新建议书的进展情况报告 - 来自国际放射防护委员会的通讯[J]. 辐射防护 2001, 21(4): 193.
- [18] IAEA. 国际电离辐射防护和辐射源安全的基本安全标准[S]. 北京: 原子能出版社, 1997.

(收稿日期: 2010-11-29)