



移动扫码阅读

姚海云,王欣刚,孙亚敏,等.浙江省燃煤电厂原煤、煤渣和煤灰中天然放射性水平调查分析[J].能源环境保护,2020,34(5):65-70.

YAO Haiyun, WANG Xingang, SUN Yamin, et al. Investigation of natural radioactivity level in coal, coal cinder and coal ash of coal-fired power plants in Zhejiang[J]. Energy Environmental Protection, 2020, 34(5):65-70.

浙江省燃煤电厂原煤、煤渣和煤灰中天然放射性水平调查分析

姚海云,王欣刚,孙亚敏,方剑青,黄国夫,张荣锁

(浙江省辐射环境监测站 浙江省辐射环境安全监测重点实验室,浙江 杭州 310012)

摘要:针对浙江省总装机容量30万千瓦以上燃煤发电厂,采用低本底HPGe γ 谱仪分析了原煤、煤渣和煤灰中天然放射性核素的含量。结果表明:原煤 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 的比活度均值分别为48.7、39.7、50.5和68.2 Bq/kg,煤渣 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 的比活度均值分别为96.0、87.0、114和182 Bq/kg;煤灰 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 的比活度均值分别为133、111、143和209 Bq/kg;天然放射性核素在煤渣和煤灰中均呈现不同程度的富集现象,煤渣和煤灰的富集因子均值分别为3.4~4.8、4.8~5.9。对煤渣和煤灰用作建材原料的可行性进行了评价,当建材原料100%为煤渣或煤灰时,约有18.4%的样品超过GB 6566—2010限值。为此,建议对用作建材原料的煤渣和煤灰进行放射性检测,严格控制高比活度的煤渣和煤灰在建材原料中的比例。

关键词:燃煤电厂;原煤;煤渣;煤灰;天然放射性核素

中图分类号:X837

文献标识码:A

文章编号:1006-8759(2020)05-0065-06

Investigation of natural radioactivity level in coal, coal cinder and coal ash of coal-fired power plants in Zhejiang

YAO Haiyun, WANG Xingang, SUN Yamin, FANG Jianqing, HUANG Guofu, ZHANG Rongsuo

(Zhejiang Radiation Environment Monitoring Station, Key Laboratory of Radiation Safety Monitoring in Zhejiang Province, Hangzhou 310012, China)

Abstract: For coal-fired power plants with a total installed capacity more than 300 MW in Zhejiang, a low-background HPGe γ spectrometer was used to analyze the content of natural radionuclides in raw coal, coal slag and coal ash. The results shows that the average specific activities of ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K in coal were 48.7 Bq/kg, 39.7 Bq/kg, 50.5 Bq/kg, and 68.2 Bq/kg, respectively. The average specific activities of ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K in coal cinder were 96.0 Bq/kg, 87.0 Bq/kg, 114 Bq/kg, and 182 Bq/kg, respectively. The average specific activities of ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K in coal ash were 133 Bq/kg, 111 Bq/kg, 143 Bq/kg, and 209 Bq/kg, respectively. Natural radionuclides show different degrees of enrichment in coal cinder and coal ash. The average enrichment factors of coal cinder and coal ash are 3.4~4.8 and 4.8~5.9. The feasibility of using cinder and coal ash as raw materials for building materials was evaluated. When 100% of raw materials for building materials were cinder or coal ash, about 18.4% of samples exceeded the limit of GB 6566—2010. Therefore, it is recommended to detect the radioactivity of cinder and coal ash used as raw materials for building materials, and strictly control the proportion of cinder and coal ash with high specific activity in the raw materials of building materia.

Key Words: Coal-fired power plant; Coal; Coal cinder; Coal ash; Natural radionuclide

收稿日期:2020-06-18

基金项目:浙江省生态环境厅科研资助项目(No.20190701015)

第一作者简介:姚海云(1976-),男,江西新干人,高级工程师,主要从事辐射环境监测等方向的研究。E-mail: 112933873@qq.com

0 引言

煤是重要的工业燃料,我国煤炭消耗量中一半用于发电^[1-2]。浙江省是我国经济最发达省份之一,工业企业较多,用煤量较大,据统计,2018年全省煤炭消费总量为1.38亿吨。煤中含有微量铀、钍、镭等天然放射性元素,燃烧后,放射性物质直接或间接排向周围环境污染环境^[3-6]。燃煤电厂放射性污染主要来源于原煤燃烧后排放的气体、煤渣及煤灰中的天然放射性物质^[7-8],这些放射性物质在一定区域内可造成蓄积和扩散,为保护电厂职工和广大公众的身体健康,我们对浙江省内总装机容量30万千瓦以上燃煤发电厂的原煤、煤渣和煤灰中天然放射性核素²³⁸U、²³²Th、²²⁶Ra、⁴⁰K进行了抽样调查分析,以此了解它们的天然放射性水平情况。

煤渣和煤灰是原煤燃烧产物,属工业废渣,现在大部分国家将煤渣和煤灰作为一种资源加以再循环利用,主要用于建材原料、水泥拌料、制砖、修路等方面^[9]。煤渣和煤灰会富集一定量的天然放射性核素,其再循环利用可能会导致放射性核素危害人类健康和造成环境污染^[10-11]。为此,评价煤渣和煤灰用作建材原料的可行性是有必要的。

1 采样与测量方法

1.1 样品采集与制备

在燃煤电厂原煤和煤渣堆场、粉煤灰收集塔现场采集样品,不同来源的原煤分开采样,在每个电厂各采集一个煤渣和煤灰样品。每个样品采集量为1~2 kg,采集完毕后,105℃烘干,打磨粉碎,100目过筛,装入与标准样品几何形态一致的样

品盒(φ75 mm×50 mm的聚乙烯塑料盒)中,天平称重(精确至0.1 g),密封并贴好标签,放置4周后测量。

1.2 测量仪器和方法

测量仪器采用美国ORTEC公司生产的GMX50P4型γ谱仪,本底计数率为2.73 s⁻¹,相对探测效率为53.6%(⁶⁰Co,距探头25 cm处),能量分辨率为2.04 KeV(对⁶⁰Co的1.332 MeVγ射线),仪器经上海市计量测试技术研究院检定合格并在有效期内。采用效率曲线法刻度各待测核素的仪器探测效率,标准物质为有证模拟土壤放射性标准物质。每个样品测量时间为12 h,样品测量方法为《高纯锗γ能谱分析通用方法》(GB/T 11713—2015)^[12]。

2 结果与讨论

2.1 原煤中天然放射性核素比活度

对19家燃煤发电厂所采集的原煤样品中天然放射性核素比活度的测量结果列于表1。由表1可见,原煤中天然放射性核素²³⁸U的测值范围为6.6~174 Bq/kg,均值为48.7 Bq/kg;²²⁶Ra的测值范围为8.1~157 Bq/kg,均值为39.7 Bq/kg;²³²Th的测值范围为8.7~224 Bq/kg,均值为50.5 Bq/kg;⁴⁰K的测值范围为16.6~480 Bq/kg,均值为68.2 Bq/kg,不同电厂原煤中的天然放射性核素比活度有20~30倍的差异。与全国辐射环境质量监测中土壤的天然放射性核素监测结果比较,除⁴⁰K(测值均值约为土壤的10%)外,原煤的其他三个核素的测值均值与土壤的基本一致,但其中有三个样品测值比均值高2~7倍,根据调查信息,这三个原煤样品的产地均为山西省。

表1 原煤样品中天然放射性核素测量结果

样品编号	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K
1-1	19.1	13.4	16.7	24.2
2-1	33.8	20.9	22.4	27.1
3-1	151	143	204	75.9
4-1	16.2	19.4	22.6	16.6
5-1	33.6	25.9	34.0	64.5
6-1	22.8	11.7	13.4	19.3
7-1	174	157	224	136
8-1-1	17.9	12.8	10.3	37.0
8-1-2	117	95.9	140	123
8-1-3	45.4	25.3	38.8	39.1
8-1-4	12.0	13.0	10.2	32.9
9-1	31.5	17.9	24.1	28.1

续表

样品编号	^{238}U	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
10-1	44.3	33.1	41.6	34.1
11-1	20.7	11.7	9.2	33.7
12-1	22.8	13.1	11.8	31.3
13-1	28.7	18.6	20.0	80.6
14-1	71.4	54.5	75.8	21.8
15-1	103	108	108	480
16-1	6.6	8.1	8.7	47.0
17-1	25.1	21.2	19.5	65.8
18-1	18.7	20.2	21.3	46.6
19-1	55.0	27.5	34.4	34.7
测值范围	6.6~174	8.1~157	8.7~224	16.6~480
平均值	48.7	39.7	50.5	68.2
全国土壤 测值平均值 ^[13]	43	39	56	572

2.2 煤渣中天然放射性核素比活度

对 19 家燃煤发电厂所采集的煤渣样品中天然放射性核素比活度的测量结果列于表 2。由表 2 可见,煤渣中天然放射性核素 ^{238}U 的测值范围为 19.4~236 Bq/kg,均值为 96.0 Bq/kg; ^{226}Ra 的测值范围为 17.8~187 Bq/kg,均值为 87.0 Bq/kg;

^{232}Th 的测值范围为 17.7~260 Bq/kg,均值为 114 Bq/kg; ^{40}K 的测值范围为 32.5~382 Bq/kg,均值为 182 Bq/kg。与全国辐射环境监测中土壤的天然放射性核素监测结果比较,除 ^{40}K (测值均值约为土壤的 30%)外,煤渣的其他三个核素的测值均值约为土壤的 2 倍。

表 2 煤渣样品中天然放射性核素测量结果

样品编号	^{238}U	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
1-2	24.8	18.7	17.7	98.4
2-2	66.1	46.3	63.6	313
3-2	128	116	158	75.2
4-2	139	115	158	249
5-2	65.8	58.5	73.8	325
6-2	118	109	159	165
7-2	108	95.8	109	202
8-2	115	111	123	214
9-2	81	92.6	119	222
10-2	236	187	260	48.3
11-2	44.8	50	64.3	336
12-2	19.4	17.8	24.5	32.5
13-2	38.8	49.2	53	382
14-2	136	118	175	93.6
15-2	115	115	157	165
16-2	105	98.8	118	67
17-2	105	88.6	105	204
18-2	71.7	71.5	92.4	169
19-2	106	93.7	128	91.2
测值范围	19.4~236	17.8~187	17.7~260	32.5~382
平均值	96.0	87.0	114	182
全国土壤测 值平均值	43	39	56	572

2.3 煤灰中天然放射性核素比活度

对 19 家燃煤发电厂所采集的煤灰样品中天然放射性核素比活度的测量结果列于表 3。由表 3 可见, 煤灰中天然放射性核素²³⁸U 的测值范围为 24.8~285 Bq/kg, 均值为 133 Bq/kg; ²²⁶Ra 的测值范围为 14.7~225 Bq/kg, 均值为 111 Bq/kg; ²³²Th 的测值范围为 15.6~310 Bq/kg, 均值为

143 Bq/kg; ⁴⁰K 的测值范围为 22.1~450 Bq/kg, 均值为 209 Bq/kg。与全国辐射环境质量监测中土壤的天然放射性核素监测结果比较, 除⁴⁰K (测值均值约为土壤的 40%) 外, 煤灰的其他三个核素的测值均值约为土壤的 3 倍, 这可能是由于煤灰的粒径比煤渣的更小, 其比表面积更大, 吸附放射性核素的能力更强缘故导致的。

表 3 煤灰样品中天然放射性核素测量结果

样品编号	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K
1-3	138	110	154	164
2-3	110	82	114	332
3-3	224	187	248	229
4-3	170	145	203	234
5-3	24.8	14.7	15.6	22.1
6-3	199	152	223	178
7-3	57.7	42.2	57.3	53.4
8-3	112	97.2	113	183
9-3	86.8	87.5	114	159
10-3	179	166	235	164
11-3	67.1	76.8	91.8	450
12-3	107	91.7	93.7	260
13-3	191	133	126	388
14-3	285	225	310	153
15-3	120	125	148	244
16-3	97.3	89.1	111	103
17-3	155	123	145	247
18-3	134	99.1	121	122
19-3	61.8	66.4	87.9	288
测值范围	24.8~285	14.7~225	15.6~310	22.1~450
平均值	133	111	143	209
全国土壤测 值平均值	43	39	56	572

2.4 煤渣和煤灰对放射性核素的富集

原煤燃烧后一部分放射性核素会富集在煤渣和煤灰中。我们用富集因子来评价煤燃烧产物对放射性核素的富集能力。富集因子 $k = C_{\text{煤渣(灰)}} / C_{\text{原煤}}$, 其中 $C_{\text{煤渣(灰)}}$ 为煤渣(灰)中放射性核素比活度, $C_{\text{原煤}}$ 为原煤中放射性核素比活度, 19 家燃煤发电厂的煤渣和煤灰对放射性核素的富集因子

列于表 4。由表 4 可见, $k_{\text{煤渣}}$ 均值为 3.4~4.8, $k_{\text{煤灰}}$ 均值为 4.8~5.9, $k_{\text{煤灰}}$ 略高于 $k_{\text{煤渣}}$ 。这是由于电厂用的是煤粉, 其燃烧温度高, 燃烧充分, 留在煤灰中的放射性核素比煤渣中的更多些, 所以, 原煤的组成及其燃烧方式, 在一定程度上决定了放射性核素的富集状态^[14]。

表 4 煤渣和煤灰中各天然放射性核素的富集因子

样品编号	煤渣富集因子 $k_{\text{煤渣}}$				煤灰富集因子 $k_{\text{煤灰}}$			
	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K
1	1.3	1.4	1.1	4.1	7.2	8.2	9.2	6.8
2	2.0	2.2	2.8	11.5	3.3	3.9	5.1	12.3
3	0.8	0.8	0.8	1.0	1.5	1.3	1.2	3.0
4	8.6	5.9	7.0	15.0	10.5	7.5	9.0	14.1
5	2.0	2.3	2.2	5.0	0.7	0.6	0.5	0.3
6	5.2	9.3	11.9	8.5	8.7	13.0	16.6	9.2

续表

样品编号	煤渣富集因子 $k_{\text{煤渣}}$				煤灰富集因子 $k_{\text{煤灰}}$			
	^{238}U	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{238}U	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
7	0.6	0.6	0.5	1.5	0.3	0.3	0.3	0.4
8 ¹⁾	2.4	3.0	2.5	3.7	2.3	2.6	2.3	3.2
9	2.6	5.2	4.9	7.9	2.8	4.9	4.7	5.7
10	5.3	5.6	6.3	1.4	4.0	5.0	5.6	4.8
11	2.2	4.3	7.0	10.0	3.2	6.6	10.0	13.4
12	0.9	1.4	2.1	1.0	4.7	7.0	7.9	8.3
13	1.4	2.6	2.7	4.7	6.7	7.2	6.3	4.8
14	1.9	2.2	2.3	4.3	4.0	4.1	4.1	7.0
15	1.1	1.1	1.5	0.3	1.2	1.2	1.4	0.5
16	15.9	12.2	13.6	1.4	14.7	11.0	12.8	2.2
17	4.2	4.2	5.4	3.1	6.2	5.8	7.4	3.8
18	3.8	3.5	4.3	3.6	7.2	4.9	5.7	2.6
19	1.9	3.4	3.7	2.6	1.1	2.4	2.6	8.3
k 值范围	0.6~15.9	0.6~12.2	0.5~13.6	0.3~15.0	0.3~14.7	0.3~13.0	0.3~16.6	0.3~14.1
平均值	3.4	3.7	4.3	4.8	4.8	5.1	5.9	5.8

注 1: 该原煤样品的放射性核素比活度以四个样品的平均值计。

2.5 煤渣和煤灰用作建材原料的评价

国家标准《建筑材料放射性核素限量》(GB 6566—2010)^[15]规定: 建筑主体材料中天然放射性核素 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 和 ^{40}K 的放射性比活度应同时满足内照射指数 $I_{\text{Ra}} \leq 1.0$ 和外照射指数 $I_{\gamma} \leq 1.0$ 。

I_{Ra} 、 I_{γ} 的定义如下:

$$I_{\text{Ra}} = C_{\text{Ra}} / 200$$

$$I_{\gamma} = C_{\text{Ra}} / 370 + C_{\text{Th}} / 260 + C_{\text{K}} / 4200$$

式中, C_{Ra} 、 C_{Th} 和 C_{K} 分别为建筑材料中天然放射性核素 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 和 ^{40}K 的比活度, Bq/kg。

若将煤渣和煤灰以 100% 的比例用作建材原

料, 19 家燃煤发电厂所采集的 19 个煤渣和 19 个煤灰样品放射性内、外照射指数的计算结果见表 5。由表 5 可知, 19 个煤渣样品中有 2 个样品的 I_{γ} 超标, 超标率为 10.5%; 19 个煤渣样品中有 1 个样品的 I_{Ra} 超标, 超标率为 6.3%, 有 5 个样品的 I_{γ} 超标, 超标率为 26.3%。可见, 当煤渣和煤灰用作建筑主体材料时, 存在建材中放射性比活度超过标准限量的可能。因此, 用煤渣和煤灰用作建材原料时, 应作放射性检测, 并控制其在建材原料中的比例。

表 5 煤渣和煤灰的放射性内、外照射指数

样品编号	煤渣		煤灰	
	I_{Ra}	I_{γ}	I_{Ra}	I_{γ}
1	0.09	0.14	0.55	0.93
2	0.23	0.44	0.41	0.74
3	0.58	0.94	0.94	1.51
4	0.58	0.98	0.73	1.23
5	0.29	0.52	0.07	0.10
6	0.55	0.95	0.76	1.31
7	0.48	0.73	0.21	0.35
8	0.56	0.82	0.49	0.74
9	0.46	0.76	0.44	0.71
10	0.94	1.52	0.83	1.39
11	0.25	0.46	0.38	0.67
12	0.09	0.15	0.46	0.67

续表

样品编号	煤渣		煤灰	
	I_{Ra}	I_r	I_{Ra}	I_r
13	0.25	0.43	0.67	0.94
14	0.59	1.01	1.13	1.84
15	0.58	0.95	0.63	0.97
16	0.49	0.74	0.45	0.69
17	0.44	0.69	0.62	0.95
18	0.36	0.59	0.50	0.76
19	0.47	0.77	0.33	0.59

3 结论

(1)浙江省 19 家主要燃煤电厂的原煤中 ^{238}U 的比活度均值为 48.7 Bq/kg, ^{226}Ra 为 39.7 Bq/kg, ^{232}Th 为 50.5 Bq/kg, ^{40}K 为 68.2 Bq/kg, 不同电厂原煤中的天然放射性核素比活度有 20~30 倍的差异, 部分样品测值比均值高 2~7 倍; 煤渣中 ^{238}U 的比活度均值为 96.0 Bq/kg, ^{226}Ra 的为 87.0 Bq/kg, ^{232}Th 的为 114 Bq/kg, ^{40}K 的为 182 Bq/kg; 煤灰中 ^{238}U 的比活度均值为 133 Bq/kg, ^{226}Ra 的为 111 Bq/kg, ^{232}Th 的为 143 Bq/kg, ^{40}K 的为 209 Bq/kg。天然放射性核素比活度表现为由原煤到煤渣再到煤灰呈依次升高的趋势, 但与全国辐射环境质量监测中土壤的天然放射性核素监测结果比较, 除 ^{40}K 的测值均值约为土壤的 0.1~0.4 倍外, 原煤的其他三个核素的测值均值与土壤的基本一致, 煤渣的其他三个核素的测值均值约为土壤的 2 倍, 煤灰的其他三个核素的测值均值分别约为土壤的 3 倍。

(2)煤渣和煤灰对放射性核素具有一定富集作用, 煤渣的富集因子均值为 3.4~4.8, 煤灰的富集因子均值为 4.8~5.9, 煤灰略高于煤渣。

(3)建材原料 100% 为煤渣或煤灰时, 10.5% 的煤渣样品内(外)照射指数超过国家标准(GB 6566—2010)的限值, 26.3% 的煤灰样品内(外)照射指数超过该标准的限值。所以, 将煤渣或煤灰用作建材原料时, 建议作放射性检测, 控制高比活度的煤渣或煤灰在建材原料中的比例, 确保建材中的放射性水平低于国家标准限值。

参考文献

[1] 姜子英, 张燕齐, 陈晓秋, 等. 中国燃煤发电排放的放射

性环境影响评价研究 [J]. 辐射防护, 2018, 38 (3): 177-185.

[2] 吴锦海, 李金全, 周天豹. 我国原煤及煤渣、粉煤灰的放射性水平调查 [J]. 上海环境科学, 1989, 8 (1): 28.

[3] 张立, 王强. 徐州煤和煤灰的放射性调查研究 [J]. 能源技术与管理, 2012, 5: 116-117.

[4] 陈冰如, 杨绍晋, 钱琴芳, 等. 中国煤矿矿中砷、硒、铬、铀、钍元素的含量分布 [J]. 环境科学, 1989, 10 (6): 23-26.

[5] 姜希文, 刘秋生, 李瑞香, 等. 我国煤中天然放射性核素水平 [J]. 辐射防护, 1989, 9 (3): 181-188.

[6] 杨瑞璞. 山东煤矿矿样中微量元素的分布 [J]. 现代仪器, 2007 (6): 21-24.

[7] 林丹, 陈文瑛, 赵时敏, 等. 燃煤电厂放射性水平与评价 [J]. 中国辐射卫生, 2001, 10 (4): 218.

[8] 尹艳, 李红, 文湘闽, 等. 燃煤电厂排放灰复田对公众所致的辐射剂量评价 [J]. 职业卫生与病伤, 2002, 17 (4): 283.

[9] 温莉琴. 福建省主要燃煤企业煤灰(渣)中的天然放射性核素水平 [J]. 辐射防护通讯, 2011, 31 (3): 41-43.

[10] 屠卡滨, 何明, 张鸟飞, 等. 舟山口岸进口燃煤中放射性核素含量调查分析 [J]. 煤质技术, 2017 (6): 18-23.

[11] Lu X W, Li L Y, Wang F L, et al. Radiological hazards of coal and ash samples collected from Xi'an coal-fired plants of China [J]. Environmental Earth Science, 2012, 66: 1925-1932.

[12] GB/T 11713—2015. 高纯锗 γ 能谱分析通用方法 [S].

[13] 中华人民共和国环境保护部. 2011~2015 年中国辐射环境质量报告 [R]. 北京: 中华人民共和国环境保护部, 2016: 146.

[14] 王凤兰, 唐跃刚, 刘立坤, 等. 宣威燃煤及其燃烧产物中天然放射性核素的测定 [J]. 中华放射医学与防护杂志, 2012, 32 (5): 517-519.

[15] GB 6566—2010. 建筑材料放射性核素限量 [S].