

桂北某铀矿周围主要农产品放射性水平检测分析

赵新春 冯兰英 马一龙 谢萍 周艳 覃志英

530028 南宁, 广西壮族自治区疾病预防控制中心放射卫生防护所

DOI:10.3760/cma.j.issn.0254-5098.2016.12.010

【摘要】 目的 调查桂北某铀矿周围主要农产品中放射性核素含量水平。方法 采用高纯锗 (HPGe) γ 能谱仪对所采集的农产品和土壤样进行检测分析。结果 检测出某区域萝卜(含叶)、萝卜叶和萝卜中的 ^{226}Ra 比活度分别为 45.0、66.7 和 32.3 Bq/kg。该区域萝卜地土壤中 ^{226}Ra 与 ^{238}U 的含量均值分别为 19 672 和 85 917 Bq/kg。 ^{226}Ra 在土壤-萝卜和萝卜叶的迁移系数分别为 1.61×10^{-3} 和 3.40×10^{-3} 。该区域外其余农产品的放射性水平与陆产食品全国放射性水平调查一致, 萝卜地周围其他土壤的放射性水平与全国环境天然放射性水平调查土壤结果基本一致。结论 该区域土壤疑被附近铀矿污染, 需要进一步核实并对此区域采取相关处理措施。

【关键词】 γ 能谱仪; 放射性水平; 比活度; 放射性核素; 转移系数

基金项目: 广西医药卫生科研课题项目(Z2014158)

Test and analysis of radioactivity levels in main agricultural production around a uranium mine in Northern Guangxi Zhao Xinchun, Feng Lanying, Ma Yilong, Xie Ping, Zhou Yan, Qin Zhiying
Institute of Radiation Health and Protection, Guangxi Zhuang Autonomous Region Center for Disease Control and Prevention, Nanning 530028, China

【Abstract】 Objective To investigate radioactivity levels in the main agriculture products around a uranium mine in Northern Guangxi. **Methods** The agriculture products and soil samples were collected and analyzed by using HPGe gamma ray spectrometer. **Results** The specific activity of ^{226}Ra in radish (including leaf), radish leaves and radish, collected in one place, were 45.0, 66.7 and 32.3 Bq/kg, respectively. Those of ^{226}Ra and ^{238}U in the radish soil collected in the same place were 19 672 and 85 917 Bq/kg, respectively. The transfer coefficients of soil-to-radish and soil-to-leaves were 1.61×10^{-3} and 3.40×10^{-3} , consistent with those reported in relevant literature. Radioactivity levels in agricultural products in another survey was in consistence with those in the national survey for food products. Radioactivity levels in soil elsewhere near the radish site was consistent with the results of the national soil radioactive background survey. **Conclusions** The soil in this place has been contaminated by the nearby uranium mine. It is important to investigate this place further and take the necessary measures.

【Key words】 γ -ray spectrometer; Radioactivity level; Specific activity; Radionuclide; Transfer coefficient

Fund program: Guangxi Medical and Health Research Project(Z2014158)

食品放射性水平是食品安全的重要衡量指标之一,我国一直高度重视食品的放射性安全。卫生部于 1976—1979 年组织相关单位对沿海海产食品进行了放射性调查^[1],1982—1985 年又对陆产食品进行了放射性调查^[2]。近几年,为掌握食品中放射性的水平、分布和变化趋势,提高核事故应急监测的能力与水平,科学评价核事故卫生学和公众健康后果,为食品安全风险评估提供科学依据,有关机构开展了核电站周围食品放射性监测^[3-6]和铀矿山

周围食品放射性监测。本研究对桂北某铀矿周围土壤所种农产品中 ^{226}Ra 的放射性水平进行了调查与分析。

材料与amp;方法

1. 仪器设备:采用美国 ORTEC 公司的 GEM50P4 型高纯锗 (HPGe) γ 谱仪测量系统(配 DSPEC-jr 型数字化谱仪),相对探测效率 $\geq 50\%$, 能响范围 40 keV ~ 10 MeV, 峰康比 $\geq 66:1$, 对 ^{60}Co

1 332.5 keV 能量分辨力为 1.89 keV, 铅室本底 2 计数/s。

2. 样品处理与测量: 采用生物样品中放射性核素的 γ 能谱分析方法^[7]、高纯锗 γ 能谱分析通用方法^[8] 和土壤中放射性核素的 γ 能谱分析方法^[9] 等国家标准中提供的方法进行测量与分析。

将干净的与标准源盒规格相同的样品空盒放到 γ 能谱仪探测器上, 测量时间 86 400 s, 得到本底。将在桂北某铀矿周围农户种植地里采集的农产品(包括大米、红薯、黄豆、冬瓜、玉米、南瓜、萝卜)严格按照文献^[7]附录 A 的方法进行处理: 先将农产品净水清洗, 晾干后称鲜重, 然后在干燥箱中烘干, 再将烘干样炭化, 炭化时注意控制温度, 防止明火燃烧, 待无烟后转移到瓷蒸发皿放入马弗炉中, 保持在 360 ~ 400℃ 灰化成疏松的灰白色灰为止。将样品灰放在干燥器内冷却至室温后称总灰重, 算出灰化率, 装入与标准源盒规格相同的样品盒内称重、密封。

按照文献^[9]中方法将采集的土壤样品中的杂草、碎石等异物剔除, 经 105℃ 烘干后, 压碎, 60 目过筛, 再在 105℃ 烘干至恒重, 然后在干燥器内冷却至室温, 将恒重的样品装入 $\phi 75 \text{ mm} \times H 70 \text{ mm}$ 的样品盒中, 记录样品净重并密封样品 3 ~ 4 周。

将制备好的农产品样品或土壤样品放到 γ 能谱仪的探测器上, 测量时相对探测器的几何条件和谱仪状态与效率刻度时保持一致, 测量时间为 86 400 s。

3. 比活度计算: 农产品和土壤样品中放射性核素比活度采用全能峰效率曲线法计算, 见公式(1)。

$$C_i = \frac{N_i}{\varepsilon_i P_i W T e^{-\lambda t}} \quad (1)$$

式中, C_i 为样品中 i 核素的比活度, Bq/kg; N_i 为样品中 i 核素 γ 射线能量的特征峰扣除本底后的净计数; ε_i 为样品中 i 核素 γ 射线的探测效率; P_i 为样品中 i 核素 γ 射线的发射概率; W 为样品重量, kg; T 为本底或样品的测量活时间, s; λ 为核素的衰变常数, s^{-1} ; t 为从采样到测量时刻的时间间隔, s。

4. 迁移系数: 土壤-农产品系统的²²⁶Ra 迁移系数为农产品中²²⁶Ra 的比活度与土壤中²²⁶Ra 的比活度的比值。

5. 质量保证: 本研究所使用的仪器均定期在国家计量部门或其授权的计量站检定, 实行标识管理。标准源能够追溯到国家法定计量部门。从事监测的人员已参加专业培训(包括样品采集、预处

理以及样品制备和测量分析)并经单位考核合格。本研究完成单位多次参加中国疾病预防控制中心辐射防护与核安全医学所组织的实验室间测量比对工作, 比对结果均合格。

结 果

1. 农产品样品中²²⁶Ra 的比活度: 测量结果发现, 某块区域(面积约 30 m², 以下称为高值区)采集的 1 份萝卜样品中检测出萝卜(含叶)²²⁶Ra 的比活度为 45.0 Bq/kg。2 个月后再次在该高值区采集了 2 份样品进行复测, 检测出萝卜(含叶)²²⁶Ra 的比活度均值为 46.2 Bq/kg, 萝卜叶中²²⁶Ra 的比活度均值为 66.7 Bq/kg, 萝卜中²²⁶Ra 的比活度均值为 32.3 Bq/kg。萝卜样中其余核素以及该区域外其他农产品中各核素的检测结果见表 1。

表 1 某铀矿周围主要农产品中放射性比活度检测结果(Bq/kg)

Table 1 Radioactivity levels in main agricultural production around a uranium mine(Bq/kg)

样品名称	²³⁸ U	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs	²³² Th	⁴⁰ K
大米	<1.78	<0.14	0.48	0.18	31.0
红薯	<0.45	1.30	0.03	1.04	106.9
黄豆	<2.32	6.77	1.59	4.95	533.4
冬瓜	<0.08	0.30	0.01	0.13	26.8
玉米	<1.78	<0.14	0.11	0.20	102.6
南瓜	<0.16	0.32	0.08	0.12	93.0
萝卜(含叶)	3.78	45.00	0.25	0.59	119.8
萝卜	3.50	32.30	0.08	0.52	88.8
萝卜叶	13.10	66.70	0.14	0.75	92.7

注: < 表示小于测量仪器的探测下限

2. 该区域土壤样品分析结果: 高值区按照十字交叉法采集了 2 份土壤样品, 测量结果发现土壤样品中²²⁶Ra 比活度分别为 18 984 和 20 361 Bq/kg; ²³⁸U 比活度分别为 84 613 和 87 221 Bq/kg。该区域土壤中其余各核素以及周围附近土壤中放射性核素水平检测结果见表 2。

表 2 土壤中放射性核素比活度检测结果(Bq/kg)

Table 2 Measurement results of radionuclides in soil(Bq/kg)

样品名称	²³⁸ U	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs	²³² Th	⁴⁰ K
高值区附近周围土壤	784	144	1.72	155.3	902.0
高值区土壤 1	84 613	18 984	8.29	123.8	932.7
高值区土壤 2	87 221	20 361	8.56	118.1	993.1

3. 迁移系数: 土壤-萝卜和土壤-萝卜叶的迁移

系数分别为 1.61×10^{-3} 和 3.40×10^{-3} 。

讨 论

本研究发现,高值区的这一块土壤中的²²⁶Ra 和²³⁸U 的比活度值远远高于全国环境天然放射性水平调查土壤中²²⁶Ra 和²³⁸U 的最高值 426 和 520 Bq/kg^[10],分别是它的 46 和 165 倍。先后两次采样得到萝卜(含叶)的²²⁶Ra 比活度值相当,萝卜叶中²²⁶Ra 的比活度高于萝卜中的²²⁶Ra 的比活度,约 2 倍。高值区周围附近土壤的放射性水平与全国环境天然放射性水平调查结果^[10]基本一致。

朱昌寿等^[11]调查表明,全国萝卜中²²⁶Ra 的放射性水平为 $(0.6 \sim 36.8) \times 10^{-2}$ Bq/kg,本研究的萝卜样品中²²⁶Ra 的比活度是该调查结果的 100 倍以上,也远高于张瑞香^[12]报道的广东阳江高本底地区萝卜²²⁶Ra 的比活度(0.302 Bq/kg)以及陈秀云等^[13]报道的福建省萝卜²²⁶Ra 的比活度(0.434 Bq/kg)。本研究所调查的萝卜中的²²⁶Ra 比活度值不仅远高于上述相关文献报道的萝卜中²²⁶Ra 比活度值,而且超过国家标准 GB 14882-94 食品中放射性物质限制浓度标准中²²⁶Ra 放射性限制浓度(11 Bq/kg)。高值区采集的其余农产品的放射性水平与陆产食品全国放射性调查^[2]水平一致。

本研究得到的²²⁶Ra 在土壤-萝卜的迁移系数为 1.61×10^{-3} ,这与刘锡岱等^[14]报道的²²⁶Ra 在土壤-根类菜(萝卜)的转移系数 $(1.82 \sim 3.75) \times 10^{-3}$ 以及秦苏云等^[15]报道的²²⁶Ra 在土壤-根类菜农产品的转移系数 $(1.57 \sim 4.51) \times 10^{-3}$ 几乎一致,也与白书明等^[16]报道的²²⁶Ra 在土壤-萝卜转移系数 4.5×10^{-3} 很接近。而²²⁶Ra 在土壤-萝卜叶的迁移系数为 3.40×10^{-3} ,要高于其在土壤-萝卜中的转移系数,但也在上述文献报道的范围内。本研究也可以得出萝卜叶对土壤中的²²⁶Ra 的吸附作用要强于萝卜。虽然高值区土壤中²³⁸U 的放射性水平远高于全国环境天然放射性水平调查中土壤²³⁸U 的放射性水平,但萝卜中的²³⁸U 放射性水平却与陆产食品全国放射性水平调查^[2]一致,也就是说萝卜对²³⁸U 的吸附作用要小于²²⁶Ra。

本研究调查的高值区土壤中的²²⁶Ra 和²³⁸U 含量高与调查区域附近的铀矿开采相关。铀矿开采产生的尾矿、矿渣、废液等含有丰富的²³⁸U、²²⁶Ra 等核素。该高值区经初步调查疑为铀矿尾矿或矿渣等临时转运场或转运过程中遗撒地,后经农民小范

围翻耕土地使高值区达到近 30 m²。因此,需要进一步对高值区进行调查,并适当采取相关措施。

利益冲突 本人与本人家属、其他研究者未因进行该研究而接受任何不当的职务或财务利益,在此对研究的独立性和科学性予以保证

作者贡献声明 赵新春负责采样、实验监测、数据分析和编写论文;冯兰英和马一龙负责采样、样品制备和实验监测;谢萍负责设计调查研究方案;周艳负责实施调查研究方案并带队采样;覃志英负责实验质量控制和数据分析

参 考 文 献

- [1] 《海产食品放射性调查》编辑组. 海产食品放射性调查[M]. 北京:原子能出版社,1983:275-303.
Edit Group of Seafood Radioactivity Survey. Seafood radioactivity survey [M]. Beijing: Atomic Energy Press, 1983: 275-303.
- [2] 张景源, 诸洪达. 中国食品放射性及所致内剂量[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1989: 210-234.
Zhang JY, Zhu HD. Radioactive and internal dose of food in China [M]. Beijing: China Environmental Science Press, 1989: 210-234.
- [3] 李忠平, 杨小柯, 刘祖森. 1994—2004 年核电站周围 20 km 深圳地区食品中放射性活度水平分析[J]. 中国食品卫生杂志, 2007, 19(4): 330-332.
Li ZP, Yang XK, Liu ZS. Analysis of certain food radioactivity level in ambient area of 20 km away from nuclear power plant in Shenzhen area from 1994 to 2004 [J]. Chin J Food Hygi, 2007, 19(4): 330-332.
- [4] 杨小勇, 余宁乐, 陈群, 等. 田湾核电站周围饮用水和食品放射性水平分析[J]. 中华放射医学与防护杂志, 2012, 32(4): 407-409. DOI:10.3760/cma.j.issn.0254-5098.2012.04.021.
Yang XY, Yu NL, Chen Q, et al. Analysis of the radioactivity level of drinking water and food around Tianwan nuclear power plant [J]. Chin J Radiol Med Prot, 2012, 32(4): 407-409. DOI:10.3760/cma.j.issn.0254-5098.2012.04.021.
- [5] 刘鸿诗, 胡晓燕, 陈彬, 等. 秦山核电基地外环境放射性水平 20 年监测结果[J]. 原子能科学技术, 2013, 47(10): 1906-1915. DOI:10.7538/yzk.2013.47.10.1906.
Liu HS, Hu XY, Chen B, et al. Monitoring result of radioactivity level in external environment around Qinshan NPP base during past twenty years [J]. At Energy Sci Technol, 2013, 47(10): 1906-1915. DOI:10.7538/yzk.2013.47.10.1906.
- [6] 许家昂, 李全太, 陈英民, 等. 海阳核电厂周边地区食品中放射性核素调查[J]. 中国辐射卫生, 2011, 20(4): 387-389.
Xu JA, Li QT, Chen YM, et al. The investigation of activity concentrations of radionuclides in foods in the adjoining areas of HaiYang nuclear power plant [J]. Chin J Radiol Health, 2011, 20(4): 387-389.
- [7] 国家技术监督局, 中华人民共和国卫生部. GB/T 16145-1995 生物样品中放射性核素的 γ 能谱分析方法[S]. 北京: 中国标

准出版社,1996.

National Technical Supervision Bureau, Ministry of Health of the People's Republic of China. GB/T 16145-1995 Gamma spectrometry method of analyzing radionuclides in biological samples [S]. Beijing:Standards Press of China,1996.

- [8] 国家质量监督检验检疫总局, 中国国家标准化管理委员会. GB/T 11713-2015 高纯锗 γ 能谱分析通用方法[S]. 北京: 中国标准出版社, 2015.

General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine, Standardization Administration. GB/T 11713-2015 General analytical methods of high-purity germanium gamma spectrometer [S]. Beijing: Standards Press of China, 2015.

- [9] 国家质量监督检验检疫总局, 中国国家标准化管理委员会. GB/T 11743-2013 土壤中放射性核素的 γ 能谱分析方法[S]. 北京: 中国标准出版社, 2014.

General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine, Standardization Administration. GB/T 11743-2013 Determination of radionuclides in soil by gamma spectrometry [S]. Beijing: Standards Press of China, 2014.

- [10] 何振芸, 罗国桢, 黄家矩. 全国环境天然放射性水平调查研究概况[J]. 辐射防护, 1992, 12(2):81-94.

He ZY, Luo GZ, Huang JJ. Nationwide survey of environmental natural radioactivity level in China [J]. Radiat Prot, 1992, 12(2):81-94.

- [11] 朱昌寿, 刘玉兰, 徐宁, 等. 中国食品和水中天然放射性核素水平及其对居民所致内照射剂量 [R]. 中国核科技报告, 1991, S3, 1-19.

Zhu CS, Liu YL, Xu N, et al. Investigation of natural radionuclides in foods and waters in China and evaluation of internal dose to public [R]. Chin Nucl Sci Technol Rep, 1991,

S3, 1-19.

- [12] 张瑞香. 广东高本底地区食品放射性水平及所致居民内照射剂量[J]. 职业医学, 1988, 15(3): 7-9.

Zhang RX. Radionuclides concentration in food and subsequent internal radiation doses in habitants in high background radiation area of Guangdong [J]. Occup Med, 1988, 15(3): 7-9.

- [13] 陈秀云, 赵时敏, 杨孝桐. 福建省部分食品和水中 ^{226}Ra 放射性含量及其所致居民内照射剂量估算[J]. 海峡预防医学杂志, 1996, 2(4): 15-16.

Chen XY, Zhao SM, Yang XT. ^{226}Ra radioactive content of some food and water in Fujian province and estimation of the radiation dose [J]. Strait J Prevent Med, 1996, 2(4): 15-16.

- [14] 刘锡岱, 黄祖德, 吴卫红. ^{226}Ra 在土壤-农作物系统中的积累和转移[J]. 辐射防护, 1983, 8(8): 211-217.

Liu XD, Huang ZD, Wu WH. The accumulation and migration of ^{226}Ra in soil-crops system [J]. Radiat Prot, 1983, 8(8): 211-217.

- [15] 秦苏云, 戚勇, 李淑琴, 等. ^{90}Sr , ^{137}Cs 、天然铀、 ^{226}Ra 和 ^{239}Pu 在陆地食物链中的转移系数[J]. 辐射防护, 1995, 15(4): 241-252.

Qing SY, Qi Y, Li SQ, et al. Study for transfer coefficients of ^{90}Sr , ^{137}Cs , natural U, ^{226}Ra and ^{239}Pu in terrestrial food chains [J]. Radiat Prot, 1995, 15(4): 241-252.

- [16] 白书明, 任秀英, 孙骞, 等. 兰州市土壤-农作物系统放射性核素转移初探[J]. 甘肃环境研究与监测, 1993, 1(6): 13-16.

Bai SM, Ren XY, Sun Q, et al. Preliminary study on radionuclide transfer of soil-crop system in Lanzhou [J]. Environ Res Monit in Gansu, 1993, 1(6): 13-16.

(收稿日期: 2016-08-12)

· 消息 ·

2016 世界生命科学大会在京召开

2016 年 11 月 1 日至 3 日, 世界生命科学大会在北京国家会议中心胜利召开。本次会议主题为“健康、农业、环境”, 是我国目前举办的生命科学领域层次最高、覆盖面最广的一次国际学术盛会。10 位诺贝尔奖获得者、4 位世界粮食奖和沃尔夫农业奖获得者和来自世界 36 个国家和地区的科技界、产业界代表齐聚一堂, 把脉生命科学领域学术前沿问题。

大会设生物学、基础医学、临床医学、药学、农业、环境、动物、生物技术、健康营养、医学伦理与卫生政策、生物样本库等 66 个分会主题, 400 余名国际著名学者在会上作邀请报告, 探讨生物、健康、农业、环境等领域的最新研究进展及发展趋势。

中国医学科学院放射医学研究所樊赛军研究员和美国德克萨斯大学安德森癌症中心 Junjie Chen 教授共同担任了“放射医学与防护”分会场主席。分会还邀请了军事医学科学院周平坤研究员、芝加哥大学 Douglas Bishop 教授、复旦大学的邵春林教授、德克萨斯大学的 Lei Li 教授、苏州大学张舒羽教授和中山大学唐业梅教授等放射医学与防护研究领域知名专家和青年学者作了精彩的学术报告。通过参加此次学术盛会, 放射医学与防护领域科研人员进一步开拓了学术视野, 加强了与国内外相关领域专家的沟通与联系, 为放射医学学术研究和起到了良好的促进作用。

(中国医学科学院放射医学研究所科教处 刘伟利)