

doi: 10.11720/wtyht.2023.1582

阙泽胜,李冠超,胡颖,等.基于 GIS 的土壤环境放射性水平和风险评价[J].物探与化探,2023,47(5):1336-1347. <http://doi.org/10.11720/wtyht.2023.1582>

Que Z S, Li G C, Hu Y, et al. GIS-based assessment of the radioactivity levels and risks of soil environment[J]. Geophysical and Geochemical Exploration, 2023, 47(5): 1336-1347. <http://doi.org/10.11720/wtyht.2023.1582>

基于 GIS 的土壤环境放射性水平和风险评价

阙泽胜,李冠超,胡颖,简锐敏,刘兵

(广东省核工业地质局 辐射环境监测中心,广东 广州 510800)

摘要: 土壤中天然放射性核素含量调查是土壤污染防治的基础。本文运用 GIS 分析技术,采用传统统计、EDA 和 MAD 3 种方法测算得到土壤中放射性核素²³⁸U、²²⁶Ra、²³²Th 和⁴⁰K 的背景值和异常限值,应用 γ 辐射剂量率、等效镭比活度、外照射指数和年有效剂量率 4 个指标评价了广东省土壤环境放射性水平,最后应用地累积指数法、单因子指数法和内梅罗综合指数法进行了全省土壤放射性健康风险评价。结果表明:广东省土壤中放射性核素²³⁸U、²²⁶Ra、²³²Th 和⁴⁰K 含量均值分别为 79.4、102.95、74.59 和 541.25 Bq/kg·干;土壤中²³⁸U、²²⁶Ra、²³²Th 和⁴⁰K 核素比活度背景值分别为 34.27、46.75、32.87、271.79 Bq/kg·干,比活度异常值分别为 111.35、141.805、105.12、946.26 Bq/kg·干;土壤环境放射性水平指标 D 、 Ra_{eq} 、 Hex 和 $AEDR$ 的均值分别为 121.44±67.08 nGy/h、263.48±147.72 Bq/kg、0.08~2.30、148.93±82.26 μ Sv/a;土壤中放射性核素地累积指数污染等级为清洁,单因子指数污染等级为轻微污染,内梅罗综合指数为 0.22~5.52,平均值为 1.74±0.97,污染等级为轻度污染。在土壤中放射性核素健康风险评价中,地累积指数、单因子指数和内梅罗综合指数评价结果基本一致,可作为土壤放射性健康风险评价方法的补充。

关键词: 地理信息系统;土壤放射性;中位数绝对离差法;地累积指数;广东省

中图分类号: X53;X831;P208

文献标识码: A

文章编号: 1000-8918(2023)05-1336-12

0 引言

土壤中天然放射性核素含量调查是研究环境天然放射性水平的重要内容。调查土壤中天然放射性核素含量的现状水平和分布,对及时发现和准确评价环境放射性污染具有更为重要的意义^[1]。土壤放射性污染是我国面临的重要环境问题,其中,确定土壤放射性背景值,并据此制定土壤放射性质量标准是评价土壤环境质量和开展土壤污染防治的前提和基础。

国内外学者开展的土壤环境放射性研究主要集中在放射性水平调查研究,大比例尺调查如 20 世纪 80 年代,为了加强环境放射性监测和环境管理工作,国家环保局组织开展了全国环境天然放射性水平调查,按均匀网格布点,土壤采样点基本与陆地 γ

辐射剂量率测点同位布设,进行了全国土壤中²³⁸U、²²⁶Ra、²³²Th、⁴⁰K 含量调查,摸清了全国土壤中天然放射性核素含量^[1-3]。中小比例尺调查如硫矿^[4]、煤矿^[5-6]、铀矿^[7-8]、稀土矿区^[9]等矿区,铀水冶厂^[10]、稀土冶炼厂^[11]等矿冶设施,以及污染场地^[12-14]。部分学者也开展了土壤环境放射性水平评价,如李战国等^[14]采用 EPA 推荐的放射性污染场地风险评估模型评估了某遗留场地健康风险水平,发现该方法和实验室放射性化学分析结果一致,均表明该场地最大风险来源于²²⁶Ra,并计算出不同途径对风险值的贡献率,验证了评价污染场地的实效性。陈小军^[13]利用污染场地健康与环境风险评估模型(HERA)评估了某磷肥厂健康风险水平,计算出不同土层中关注污染物致癌风险值和非致癌危害商;该模型基于美国《基于风险的矫正行动标准

收稿日期: 2022-11-22; 修回日期: 2023-02-10

基金项目: 2013 年广东省财政项目“广东省放射性地质环境调查与评价”(20130318)

第一作者: 阙泽胜(1984-),男,高级工程师,2010 年毕业于华南农业大学,主要从事天然放射性调查与评价、地理信息系统工程研究工作。

Email:413732798@qq.com

指南》、英国《CLEA 模型技术背景更新文件》以及我国《污染场地风险评估技术导则》(HJ 25.3—2014)编制而成,是污染场地评价的有效方法。刘媛媛等^[15]采用 γ 辐射吸收剂量率和年有效剂量法评价了铀尾矿库区稻田土壤环境放射性水平,研究发现无论是垂向还是平面上,核素 ^{232}Th 、 ^{40}K 的迁移能力均比 ^{238}U 、 ^{226}Ra 弱,应用的两种方法也较科学、准确、定量地评价出了尾矿库对居民造成的辐射影响。杨剑洲等^[16]采用 γ 辐射吸收剂量率、等效镭比活度、外照射指数和年有效剂量法评价了广东省部分地区土壤环境放射性水平,研究发现区内核素分布主要受控于岩石背景,其次为土壤类型和地貌类型,全省土壤核素高于国内和全球的平均水平,但 D 、 $R_{a_{eq}}$ 和 $AEDR$ 远低于安全值,放射性水平处于正常范围,采用的4种评价方法可以作为放射性评价方法的补充。

土壤中放射性核素背景值和异常限值的合理确定,是健康风险评价的基础,前人较多采用传统方法确定背景值。对于样本总体服从正态分布时,传统方法在筛选“清洁”土壤样品时具有较高效率;由于人为活动和自然环境影响,地球化学数据并非服从完美的正态分布,从而一定程度上影响传统方法剔除异常值的效果。为验证传统方法的缺陷,部分学者进行了深入研究,以探索更为稳健方法的方法,如王帅等^[17]在研究山东某岩溶地下水水源地C层土壤重金属的背景值时,用稳健方法如MAD,与常规方法进行了比较,发现稳健统计方法对样本中的异常值有较高的耐抗性;周曙光等^[18]对比了传统和稳健地球化学异常计算方法在化探异常阈值计算中的特点,结果发现稳健统计方法受到数据分布状态的影响远小于传统方法,在稳健统计方法中,以“ $X_{Me} + 2X_{MAD}$ ”为阈值比以 X_{UF} 为阈值获得的Ag地球化学异常结果更能清晰指示已知金矿点的位置;陆丽娜等^[19]在研究夏垫活动断层时,通过实地测量,发现在测算土壤氡背景和异常值过程中,中位数绝对离差方法(MAD)较探索性数据分析方法(EDA)更为稳健。前人将稳健统计方法较多应用在土壤重金属,在土壤放射性领域鲜有报道。土壤放射性水平研究和健康风险评价主要集中在污染场地、矿区和矿冶设施周围等中小尺度^[4-14,20];杨剑洲等^[16]评价了广东省部分地区土壤环境放射性水平,全省共采集49个样,由于样品容量小,结果具有一定局限性。

本文以广东省放射性地质环境调查与评价项目^[21]成果数据为基础,调查基准网度为20 km×20 km,运用GIS空间分析技术,采用传统统计方法、探

索性数据分析方法和中位数绝对离差方法测算了广东省土壤中 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 比活度背景值和异常值,应用 γ 辐射剂量率、等效镭比活度、外照射指数和年有效剂量率指标评价了全省土壤环境放射性水平,最后应用地累积指数法、单因子指数法和内梅罗综合指数法进行了全省土壤放射性健康风险评价,以为全省土壤污染防治、生态环境管护和城市开发建设提供参考和科学依据。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

本研究区为广东省陆域部分,面积约为17.98万 km^2 ,常住人口为12 684万人(截至2021年)。广东省地处我国大陆最南部,北依五岭,南濒南海,地处南岭中段,全境位于北纬 $20^{\circ}09' \sim 25^{\circ}31'$ 和东经 $109^{\circ}45' \sim 117^{\circ}20'$ 之间,属于东亚季风区。全省地貌类型复杂多样,地势总体北高南低,东西向腹部倾斜,北部多为山地和高丘陵,最高峰石坑崆海拔1 902 m,南部则为平原和台地。全省山脉大多与地质构造的走向一致,以NE—SW走向占优势,粤北的山脉则多为向南拱出的弧形山脉,粤东和粤西有少量NW—SE走向的山脉,山脉之间有大小谷地和盆地分布。平原以珠江三角洲平原最大,潮汕平原次之,此外还有高要、清远、杨村和惠阳等冲积平原。台地以雷州半岛—电白—阳江一带和海丰—潮阳一带分布较多。构成各类地貌的基岩岩石以花岗岩最为普遍,其次为砂岩和变质岩,粤西北还有较大片区域的石灰岩分布,局部区域分布红色岩系地貌,沿海沿河地区多为第四系沉积层。

1.2 样品采集与测试

全省按20 km×20 km网格布设监测点,结合人口分布、地质条件、土壤分布类型、建筑物结构、核设施周围等适当加密,共采集土壤样品689个,详见采样分布图1。现场采样时,在10 m×10 m范围四角和中心布设5个采样点,每个采样点取长10 cm×宽10 cm×深10 cm子样混合为1个样,去除石块、杂草,取3 kg以上样品装入衬有塑料袋的样品袋中。全省土壤采样基本与环境陆地 γ 辐射剂量率、地面 γ 能谱测量位置一致。样品中核素的测定采用放射性化学分析方法。实验前先测定湿样重量,在烘箱 $100\text{ }^{\circ}\text{C}$ 以下烘干或自然晾干称重,求样品含水量;用粉碎机磨制样品,粉碎样过60目尼纶筛,四分法取土壤样品约1 500 g(其中1 000 g装入玻璃广口瓶内,连同采样记录和测量结果长期保存,建立土壤样

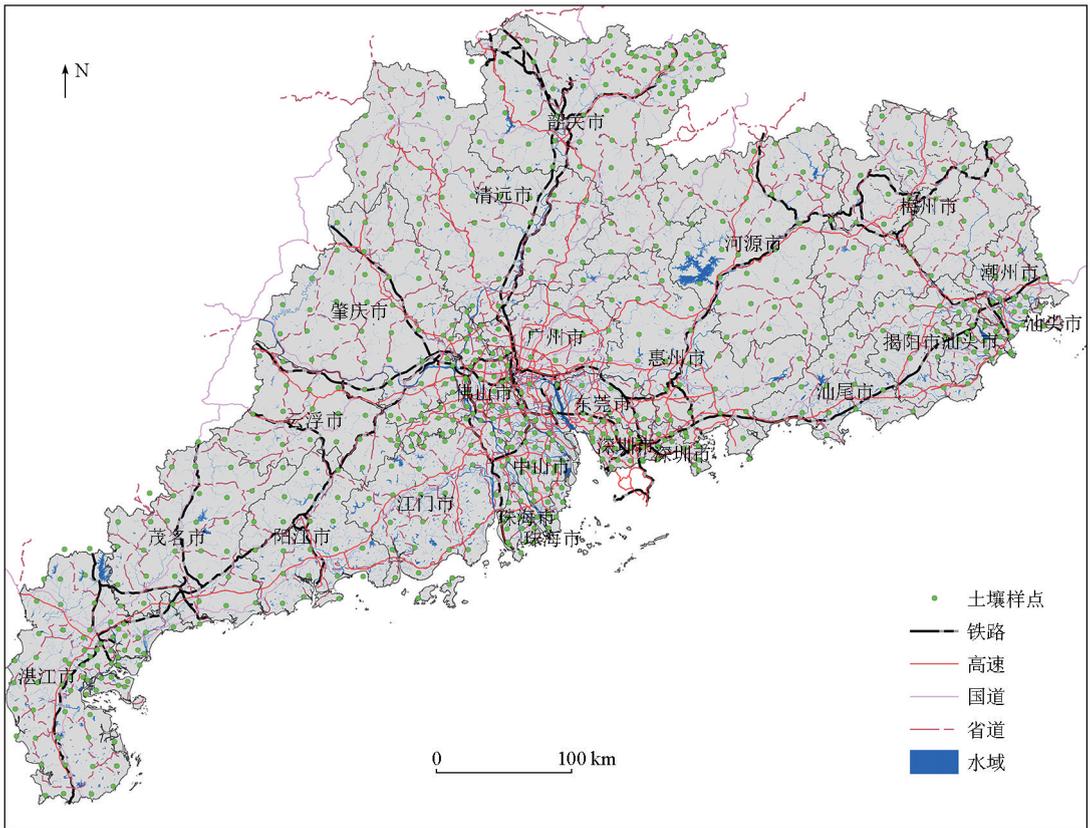


图 1 采样分布示意

Fig. 1 Distribution of sampling sites

品库,另一部分为此次谱仪分析用样),谱仪分析须密封 20 d 后测量。依据《土壤环境监测技术规范》(HJ/T 166—2004)和《土壤中放射性核素的 γ 能谱分析方法》(GB/T 11743—2013)进行样品的收集、保存、运输、储存、质量监控和分析测试。

1.3 研究方法

1.3.1 异常阈值测算方法

1) 传统统计方法

传统统计方法 (traditional statistics, 简称 TS 法),以区域地球化学元素观测值的几何平均值作为背景值,用“均值+2 倍标准差”的方法来确定其异常阈值^[19]。

2) 探索性数据分析方法

探索性数据分析方法 (exploratory data analysis, 简称 EDA 法),先求出样本的中位数,利用中位数将数据分为两组,最小值到中位数的一组数据为 Lower Hinge (LH),最大值到中位数的另一组数据为 Upper Hinge (UH),再分别求取两组数据的中位数 X_{LH} 和 X_{UH} 。 X_{LH} 和 X_{UH} 之差的绝对值就是四分位数间距 (Y_{IQR})^[17]。 X_{LIF} 和 X_{UIF} 分别通过下式计算:

$$X_{LIF} = X_{LH} - (1.5 \times Y_{IQR}), \quad (1)$$

$$X_{UIF} = X_{UH} + (1.5 \times Y_{IQR}), \quad (2)$$

落在异常阈值下限 X_{LIF} 和上限 X_{UIF} 之外的数据即地球化学异常,以四分位数间距作为背景值。

3) 中位数绝对离差方法

中位数绝对离差方法 (median absolute deviation method, 简称 MAD 法),首先求出中位数 X_{Me} ,再将中位数与每一项浓度值做差并求出绝对值,然后对求得的绝对值再求中位数,即 X_{MAD} ^[22]。

$$X_{Me} = \begin{cases} x_{\frac{n+1}{2}}, n = \text{奇数} \\ \frac{1}{2}(x_{\frac{n}{2}} + x_{\frac{n}{2}+1}), n = \text{偶数} \end{cases} \quad (3)$$

$$X_{MAD} = \text{median}_i(|x_i - \text{median}_j(x_j)|), \quad (4)$$

异常阈值为第一次求得的原数据的中位数 X_{Me} 与 2 倍 X_{MAD} 的和。首次计算的中位数,与每一项观测值做差并求出绝对值,用求得的绝对值的算术平均值作为背景值。

1.3.2 土壤放射性评价方法

2022 年 7 月 22 日,中华环保联合会发布关于《土壤污染调查实施指南 第 4 部分 涉及放射性污

染调查、采样及报告编制》(简称团体标准),制定了较为全面权威的天然放射性的辐射危害评价方法。笔者参照团体标准和杨剑洲等^[16]学者研究成果,应用 γ 辐射剂量率、等效镭比活度、外照射指数和年有效剂量率等指标评价了全省土壤环境放射性水平。

1) γ 辐射剂量率

离地面距离为 1 m 高处 γ 辐射吸收剂量率 (D),可根据样品土壤²³⁸U、²³²Th 和⁴⁰K 的放射比活度由 Beck 公式得出,计算公式^[16]为:

$$D = 0.462A_U + 0.604A_{Th} + 0.0417A_K, \quad (5)$$

式中: D 为地面高 1 m 处 γ 辐射剂量率,nGy/k; A_U 、 A_{Th} 和 A_K 分别代表土壤中²³⁸U、²³²Th 和⁴⁰K 的比活度,Bq/kg。

2) 等效镭比活度

等效镭比活度 (Ra_{eq}) 计算公式^[16]为:

$$Ra_{eq} = A_{Ra} + 1.43A_{Th} + 0.077A_K, \quad (6)$$

式中: A_{Ra} 、 A_{Th} 、 A_K 分别代表²²⁶Ra、²³²Th 和⁴⁰K 特定的比活度。该式建立在 370 Bq/kg 的²²⁶Ra、259 Bq/kg 的²³²Th 及 4 810 Bq/kg 的⁴⁰K 产生相同 γ 辐射吸收剂量率的基础上^[16]。

3) 外照射指数

外照射指数 (Hex) 用于评价每个样品释放伽马射线的风险程度,计算公式^[16]为:

$$Hex = A_{Ra}/370 + A_{Th}/259 + A_K/4810, \quad (7)$$

式中: A_{Ra} 、 A_{Th} 、 A_K 分别代表²²⁶Ra、²³²Th 和⁴⁰K 的比活度。

4) 年有效剂量率

年有效剂量率 ($AEDR$) 用于评价放射性核素 γ 辐射外照射强度,计算公式^[16]为:

$$AEDR(\mu Sv/a) = D(nGy/h) \times 8760(h/a) \times 0.2 \times 0.7(Sv/Gy) \times 10^{-3}, \quad (8)$$

式中:8 760(h/a)代表时间转换因子;0.2 代表室外居留因子;0.7(Sv/Gy)代表辐射剂量率转换因子。

1.3.3 土壤风险评价方法

目前针对土壤核素污染评价方面的研究较少,部分学者应用地累积指数法^[10-12]、单因子指数法^[11]和内梅罗综合指数法^[11]进行了土壤放射性领域研究,取得较好效果。

1) 地累积指数法

地累积指数法是德国科学家 Muller^[23]于 1969 年提出的一种评价沉积物中重金属污染程度的方法,计算公式^[12]如下:

$$I_{geo} = \log_2(C_n/kB_n), \quad (9)$$

式中: C_n 为元素 n 在沉积物中的浓度; B_n 为沉积物中该元素的地球化学背景值; k 是为考虑各地岩石差异可能会引起背景值的变动而取的系数(一般取值为 1.5)。

2) 单因子和内梅罗综合指数法

单因子指数法^[24]以土壤背景值来评价单一元素的污染状况,计算公式为:

$$P_i = C_i/S_i, \quad (10)$$

内梅罗指数法^[25]全面地反映了土壤污染的综合状况,计算公式如下:

$$P_{综} = \sqrt{\frac{(C_i/S_i)_{max}^2 + (C_i/S_i)_{ave}^2}{2}}. \quad (11)$$

式中: P_i 为单因子污染指数; C_i 为污染物实测值; S_i 为根据需要选取的评价标准; $(C_i/S_i)_{max}$ 、 $(C_i/S_i)_{ave}$ 分别表示在 i 样点中污染物单因子污染指数的最大值与均值; $P_{综}$ 为样点的综合污染指数。

等级评价标准均参考文献^[26], B_n 和 S_i 均为土壤中该元素的地球化学背景值,参考文献^[3]。

2 结果与分析

2.1 土壤中主要放射性核素比活度统计分析

如表 1 所示,土壤中⁴⁰K 的均值和最大比活度均高于²²⁶Ra、²³⁸U 和²³²Th。由于土壤中⁴⁰K 天然本底较高,且常年施加钾肥,故土壤样中检出的⁴⁰K 比活度较高。土壤中⁴⁰K、²²⁶Ra、²³⁸U 和²³²Th 变异系数趋于 0.6,说明离散程度小,样点分布较均匀。⁴⁰K 的偏度小于 1,峰值接近 0,说明数据分布形式为近似正态分布。²³⁸U、²²⁶Ra 和²³²Th 的峰度均大于 1,说明其比活度分布比正态分布陡峭。4 种核素偏度均大于 0,说明数据分布形态右偏,右端有较多极端值。应用 SPSS16.0 计算研究区土壤中²³⁸U、²²⁶Ra、²³²Th 和⁴⁰K 两两间 Pearson 相关系数。如表 2 所示,土壤中 4 种核素间在 0.01 的显著性水平下显著,其中²³⁸U 和²³²Th 相关系数最高,²²⁶Ra 和²³²Th、²²⁶Ra 和²³⁸U 相关性次之,⁴⁰K 和其他核素相关性较小。

表 1 研究区土壤中的放射性核素比活度统计

Table 1 Statistics of specific activity of radionuclides in soil of study area

核素	均值/(Bq·kg ⁻¹ ·干)	标准差/(Bq·kg ⁻¹ ·干)	变异系数	峰值	偏度	最小值/(Bq·kg ⁻¹ ·干)	最大值/(Bq·kg ⁻¹ ·干)
²³⁸ U	79.40	48.89	0.62	3.04	1.64	12	318
²²⁶ Ra	102.95	65.06	0.63	1.68	1.36	10	376
²³² Th	74.59	46.51	0.62	2.86	1.57	8	298
⁴⁰ K	541.25	347.90	0.64	0.24	0.67	4	1747

表 2 研究区土壤中放射性核素间相关系数

Table 2 Correlation coefficient between radionuclides in soil of study area

核素	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K
²³⁸ U	1.000			
²²⁶ Ra	0.765 **	1.000		
²³² Th	0.961 **	0.771 **	1.000	
⁴⁰ K	0.574 **	0.571 **	0.439 **	1.000

注：“**”表示在 0.01 水平(双侧)上显著相关。

2.2 土壤中主要放射性核素比活度背景值和异常值测算结果

应用传统统计方法(简称 TS 法)、探索性数据分析方法(简称 EDA 法)、中位数绝对离差方法(简称 MAD 法),与 20 世纪 80 年代调查结果全国背景值(简称 QG)、广东省背景值(简称 GD)进行对比分析,结果如图 2 所示。结果表明,土壤中²³⁸U 比活度背景值由高到低排序为 TS>GD>EDA>QG>MAD,异常值由高到低排序为 TS>EDA>MAD>QG>GD;土壤中²²⁶Ra 比活度背景值由高到低排序为 TS>EDA>GD>MAD>QG,异常值由高到低排序为 TS>EDA>MAD

>GD>QG;土壤中²³²Th 比活度背景值由高到低排序为 TS>GD>EDA>QG>MAD,异常值由高到低排序为 EDA>TS>MAD>QG>GD;土壤中⁴⁰K 比活度背景值由高到低排序为 QG>TS>EDA>GD>MAD,异常值由高到低排序为 EDA>TS>QG>MAD>GD。土壤中 4 种核素背景值 TS 方法测算结果最高,EDA 次之,MAD 最小,异常值 TS 和 EDA 较高,MAD 最小。

王帅等^[17]用 MAD 稳健方法与常规方法进行了比较,发现稳健统计方法对样本中的异常值有较高的耐抗性;周曙光等^[18]对比了传统和稳健地球化学异常计算方法在化探异常阈值计算中的特点,发现 MAD 方法更能清晰指示已知金矿点的位置,与文献^[17]研究结论也一致。因此,本文用 MAD 方法测算土壤样品中核素比活度的背景值和异常值,测算得到研究区土壤中²³⁸U、²²⁶Ra、²³²Th 和⁴⁰K 核素比活度背景值分别为 34.27、46.75、32.87、271.79 Bq/kg·干;比活度异常值分别为 111.35、141.805、105.12、946.26 Bq/kg·干。

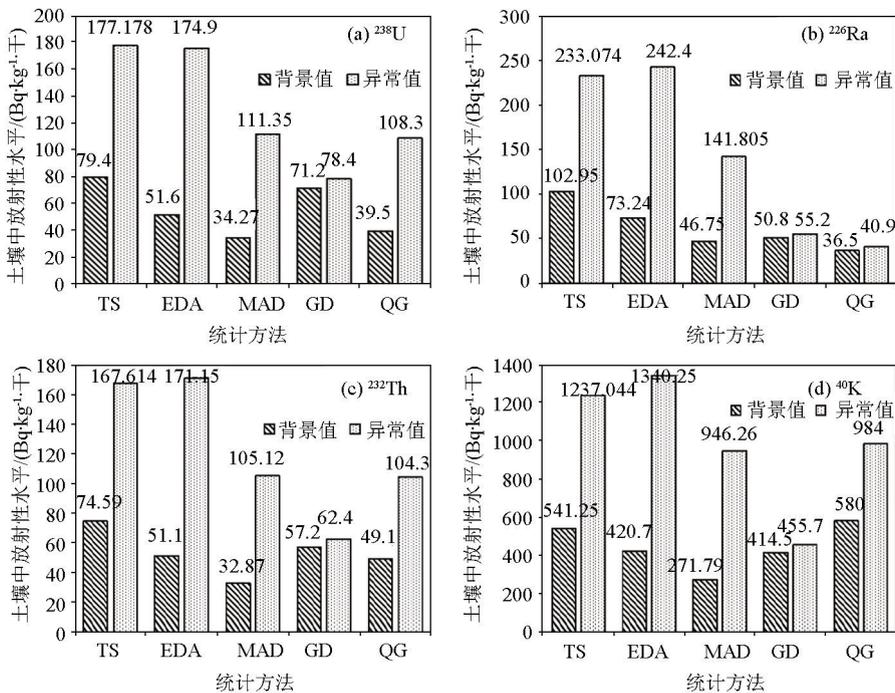


图 2 土壤中放射性比活度背景值和异常限值统计

Fig. 2 Statistics of background value and abnormal limit of radioactivity in soil

2.3 土壤环境放射性水平

根据 Beck 公式测算研究区 D 值范围为 13.59~381.47 nGy/h, 平均值为 121.44 ± 67.08 nGy/h, MAD 法测得异常阈值为 172.83 nGy/h, 其中 19.20% 的采样点超过异常阈值。对比前人研究成果, 广东省空气中的 γ 辐射剂量率约为 20 世纪 80 年代平均值^[26] 的 1.43 倍, 全国平均值^[26] 的 1.93 倍, 世界平均值^[27] 的 1.73 倍, UNSCEAR^[27] 安全值的 0.26 倍。

Ra_{eq} 值范围为 28.26~850.35 Bq/kg, 平均值为 263.48 ± 147.72 Bq/kg, 是安全指标^[28] 的 0.73 倍。MAD 法测得 Ra_{eq} 值的异常阈值为 374.6 Bq/kg, 其

中 19.34% 的采样点超过异常阈值。

$AEDR$ 值范围为 16.67~467.83 $\mu\text{Sv/a}$, 平均值为 148.93 ± 82.26 $\mu\text{Sv/a}$, 是安全指标^[27] 的 0.32 倍。MAD 法测得 $AEDR$ 值的异常阈值为 211.96 $\mu\text{Sv/a}$, 其中 19.20% 采样点超过均值。

Hex 值范围为 0.08~2.3, 平均值为 0.71 ± 0.4 , MAD 法测得异常阈值为 1.01, 其中 19.48% 的采样点超过异常阈值。

如图 3 所示, 4 种方法测算的土壤环境放射性水平在空间上基本一致, 超过异常阈值的采样点数量也基本相同。

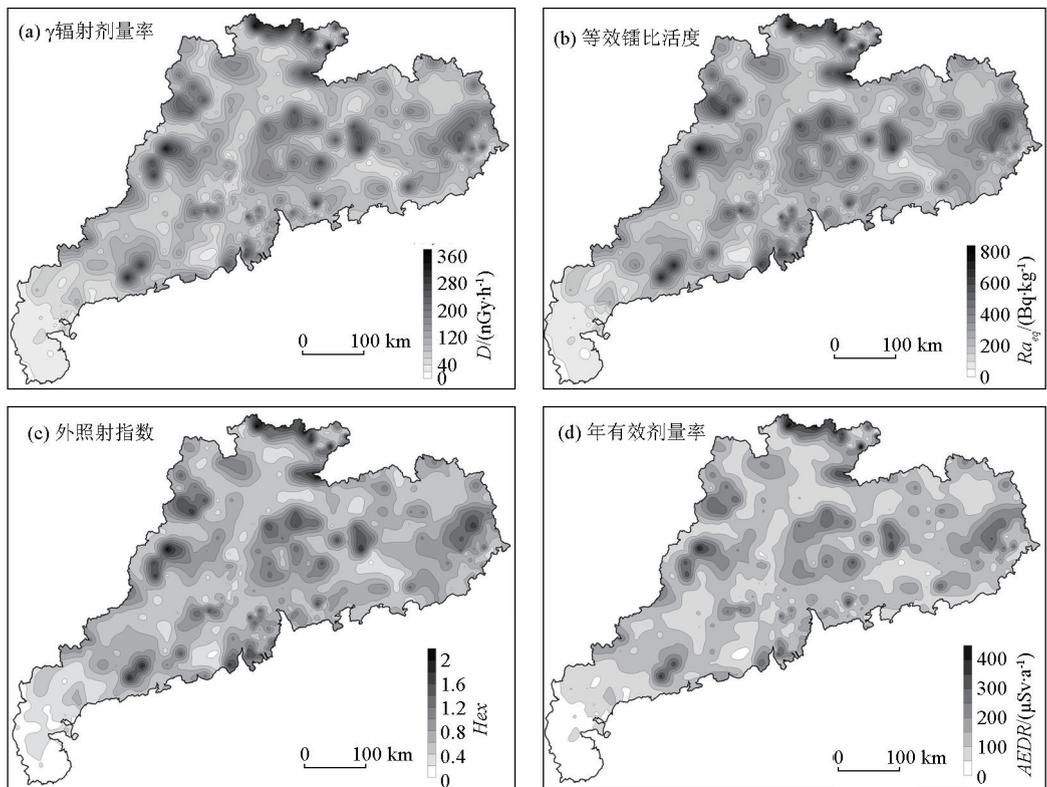


图 3 土壤环境放射性水平分布

Fig. 3 Soil environmental radioactivity level distribution map

2.4 土壤风险评价

地累积指数法测算结果表明, 研究区土壤中²³⁸U 地累积指数为-3.15~1.57, 平均值为-0.66±0.81, 污染等级为清洁; ²²⁶Ra 地累积指数为-3.33~1.97, 平均值为-0.28±0.86, 污染等级为清洁; ²³²Th 地累积指数为-3.06~2.13, 平均值为-0.01±0.91, 污染等级为清洁; ⁴⁰K 地累积指数为-7.14~1.49, 平均值为-0.67±1.44, 污染等级为清洁。综上分析, 地累积指数法测算研究区土壤中放射性核素污染等级为清洁。

单因子指数法测算结果表明, 研究区土壤

中²³⁸U 单因子指数为 0.17~4.46, 平均值为 1.12±0.69, 污染等级为轻微污染; ²²⁶Ra 单因子指数为 0.15~5.87, 平均值为 1.47±0.92, 污染等级为轻微污染; ²³²Th 单因子指数为 0.18~6.57, 平均值为 1.8±1.14, 污染等级为轻微污染; ⁴⁰K 单因子指数为 0.01~4.22, 平均值为 1.31±0.84, 污染等级为轻微污染。综上分析, 单因子指数法测算研究区土壤中放射性核素污染等级为轻微污染。

内梅罗综合指数法测算结果表明, 研究区土壤中放射性核素内梅罗综合指数为 0.22~5.52, 平均值为 1.74±0.97, 污染等级为轻度污染。

如图 4a 所示,土壤中²³⁸U 地累积指数污染等级为偏中度污染区分布在粤北乐昌市和仁化县北缘。轻度污染分布在梅州市、潮州市和揭阳市交汇处,河源市中部和北部,清远、广州市和韶关市交汇处,惠州市中西部,肇庆市中部,肇庆市和清远市交汇处,韶关市北部、东部和西部,江门市东南部,珠海市中西部,阳江市中西部,茂名市西部和东南部。

如图 4b 所示,土壤中²²⁶Ra 地累积指数污染等级为偏中度污染区分布在韶关市北部、南部和东部,肇庆市中部和北部,惠州市中部,河源市南部,潮州市、梅州市和揭阳市交汇处,珠海市中西部,阳江市西南部。轻度污染分布在梅州市东部,潮州市北部、西部和南部,揭阳市大部分区,河源市中部和东部,惠州市中西部,广州市大部分区域,肇庆市北部、中部和南部,清远市四周边缘区,云浮市西部和东部,江门市西北部和东南部,佛山市西南部,阳江市中西部,茂名市西北部。

如图 4c 所示,土壤中²³²Th 地累积指数污染等级为偏中度污染区分布在韶关市北部和东部,肇庆市中部和北部,清远市西部和东部,河源市中部,梅州市、潮州市和揭阳市交汇处,广州市中部,惠州

市西部,深圳市西部,珠海市大部分区域,中山市中部,江门市东部,阳江市西南部。轻度污染分布在梅州市、潮州市和揭阳市交汇处,河源市中部和北部,韶关市北部、东部和西部,清远市东部和西部,惠州市东南部,广州市大部分区域,肇庆市中部和北部,东莞市西部,深圳市西部和东部,中山市,珠海市,江门市西部和东部,云浮市西部和东部,阳江市大部分区域,茂名市中部、西部和东部。

如图 4d 所示,土壤中⁴⁰K 地累积指数污染等级为偏中度污染区分布在潮州市和梅州市交汇处,韶关市南部和北部。轻度污染分布在梅州市中部、南部和北部,潮州市北部、西部和东南部,揭阳市北部、东部和南部,汕尾市南部,惠州市中部和南部,东莞市西部,广州市北部、东南部,清远市中部、东部和西部,肇庆市中部和南部,佛山市西部,中山市北部,珠海市,云浮市西部,阳江市西部,茂名市东部和北部。

如图 5 所示,土壤中放射性核素内梅罗综合指数污染等级为重度污染区分布在潮州市西部,梅州市东部,河源市中部,韶关市南部、东部和北部,清远市东部,肇庆市北部和中部,广州市中部和北部,惠州市中部和西部,中山市西部,珠海市中部和南

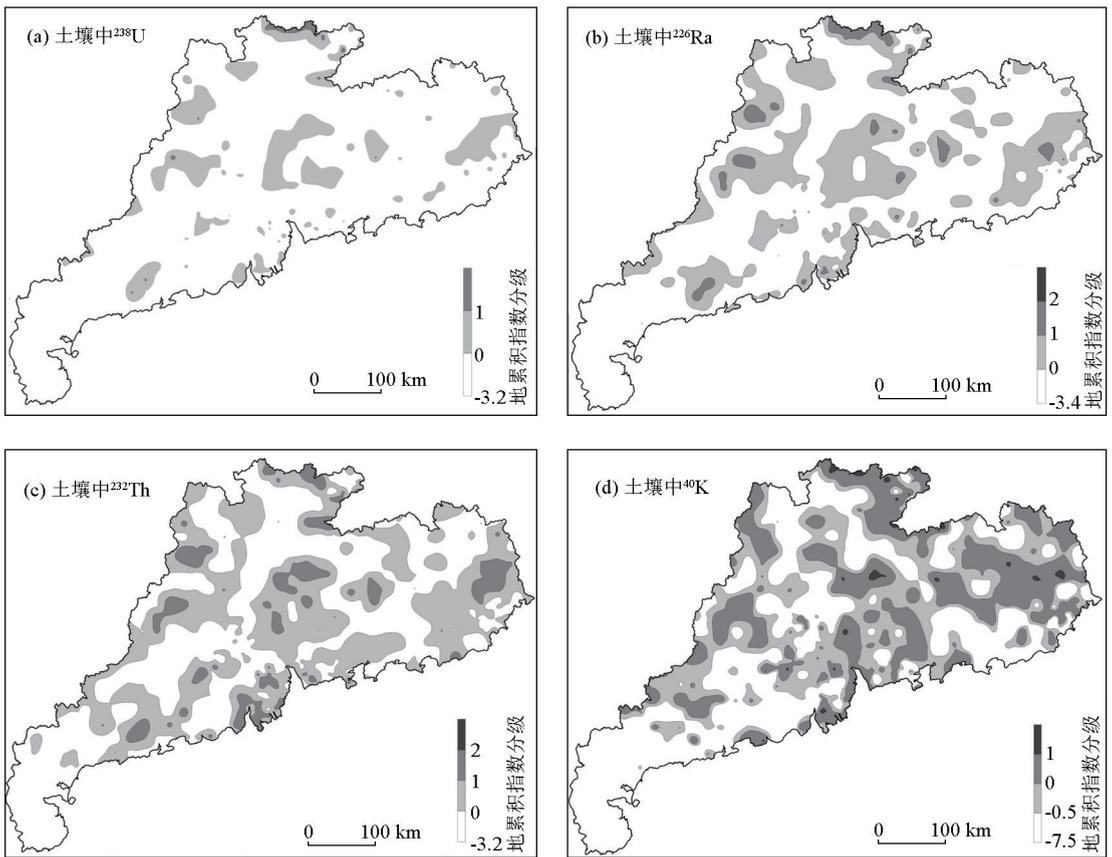


图 4 基于地累积指数法的土壤风险评价分布

Fig. 4 Soil risk assessment distribution map based on geo-accumulation index method

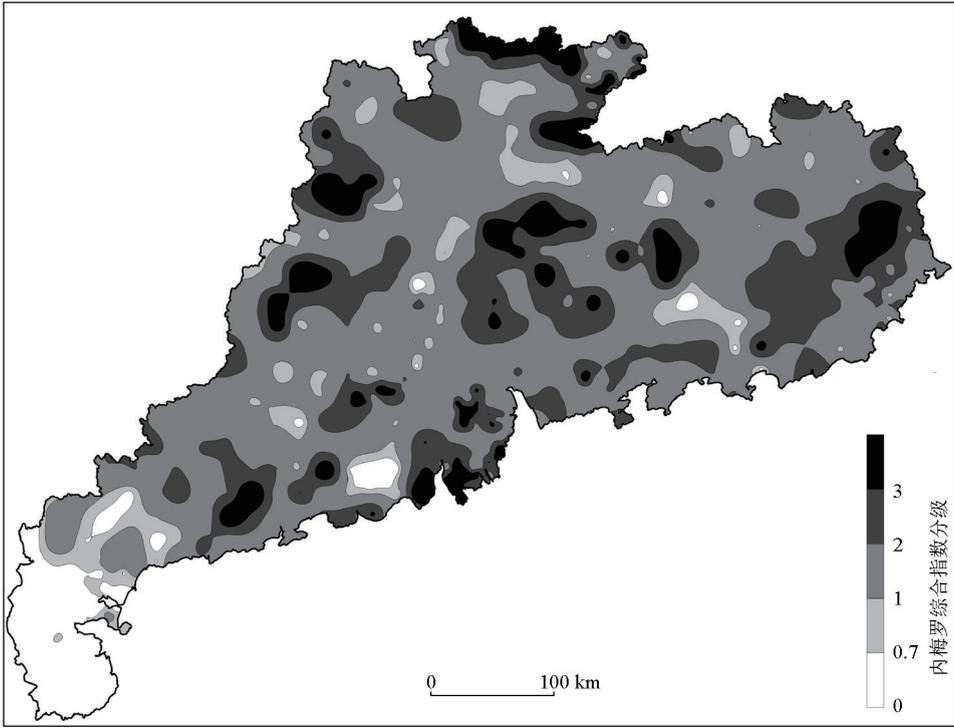


图 5 基于内梅罗综合指数法的土壤风险评价分布

Fig. 5 Soil risk assessment distribution map based on Nemero comprehensive index method

部,江门市南部,阳江市西南部。中度污染区分布在潮州市西部,梅州市东部和北部,揭阳市大部分区域,汕尾市北部和西部,惠州市西部和南部,河源市中部和北部,广州市北部,清远市东部和西部,韶关市东部、南部和北部,肇庆市中部和北部,中山市中部和北部,珠海市北部,江门市东部和西部,云浮市东部和西部,阳江市西部和东部,茂名市中部和西部。轻度污染分布在雷州半岛以外的广东省大部分区域。警戒线处分布在湛江市和茂名市交汇处,江门市中部,阳江市北部,河源市、惠州市、汕尾市交汇处,清远市和韶关市交汇处,清远市南部,肇庆市西部边缘。

2.5 地质环境对土壤中放射性核素分布影响

应用 ArcGIS 软件,从广东省区域地质图上提取花岗岩分布区,对地质构造带进行多级缓冲区分析,

分别与土壤采样点进行空间叠置分析。如图 6 所示,花岗岩区土壤中⁴⁰K 比活度高于非花岗岩区,其他核素比活度基本一致。花岗岩区土壤环境放射性水平和土壤污染指数均高于非花岗岩区。如图 7 所示,地质构造带缓冲区距离 10 km 内土壤中放射性核素比活度、土壤环境放射性水平、土壤污染指数数值基本相当,均高于 10 km 以上水平。如图 8 所示,土壤环境放射性异常区均分布在花岗岩区和地质构造带附近,说明地质因素对土壤环境放射性水平影响密切。

2.6 不同地貌分区土壤中放射性核素分布特征

根据广东省地矿局水文工程地质一大队资料,综合考虑大地构造、地貌形态、成因及外营力作用等因素,将广东省划分为 6 个地貌大区:粤北褶皱侵蚀溶蚀中低山区(I)、粤西断块隆起侵蚀低山丘陵

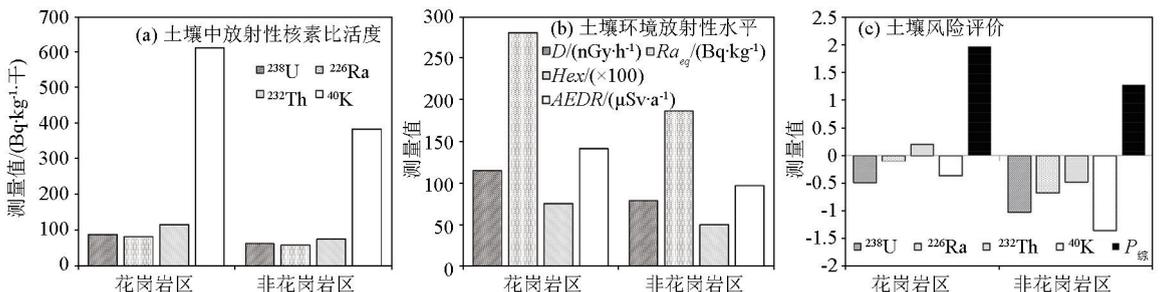


图 6 花岗岩中土壤中放射线核素分布

Fig. 6 Radionuclide distribution in soil of granite

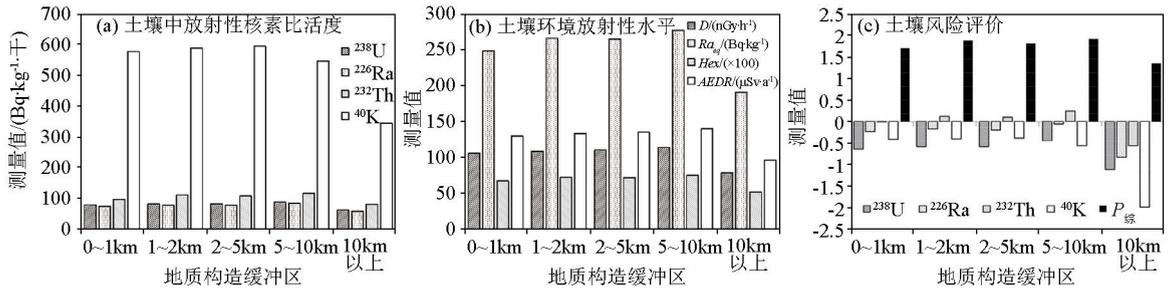


图 7 不同地质构造缓冲区内土壤中放射线核素分布

Fig. 7 Radionuclide distribution in soil within different geological structure buffer zones

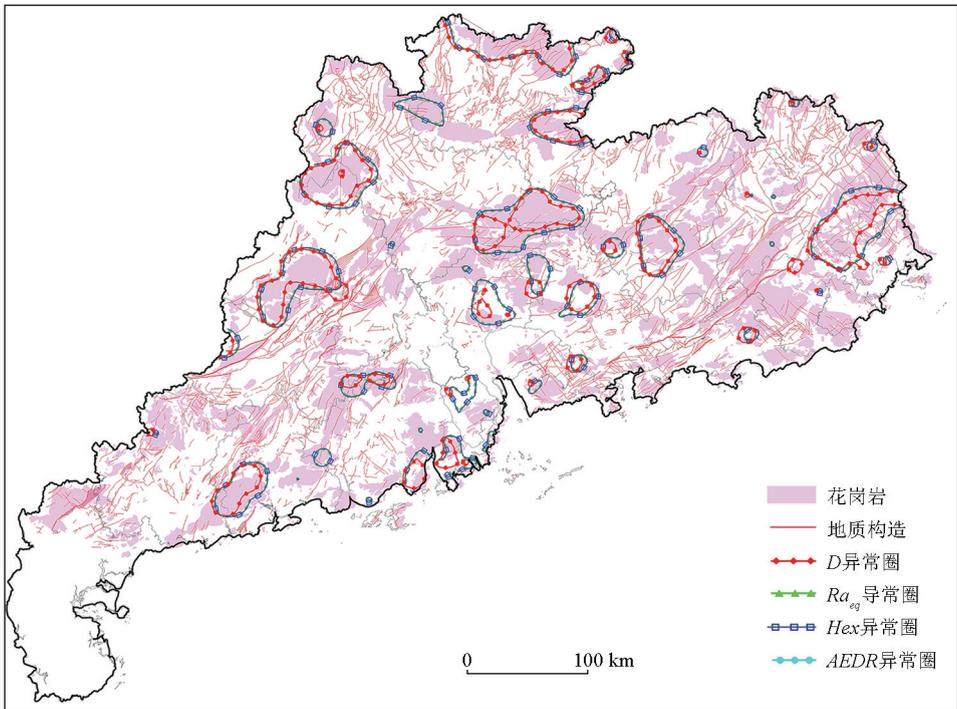


图 8 土壤环境放射性异常区与地质因素空间关系

Fig. 8 Spatial relationship between radioactive anomaly area of soil environment and geological factors

区(Ⅱ)、粤东褶皱侵蚀剥蚀平行岭谷低山丘陵区(Ⅲ)、沿海断陷侵蚀堆积平原台地区(Ⅳ)、珠江三角洲断陷堆积平原区(Ⅴ)和雷州半岛断陷侵蚀堆积台地平原区(Ⅵ)。应用 ArcGIS 软件,对广东省地貌分区略图进行投影校正,与土壤采样点位进行

空间叠置分析。如图 9 所示,雷州半岛断陷侵蚀堆积台地平原区土壤中放射性核素比活度、土壤环境放射性水平和土壤污染指数远低于广东省其他区域。

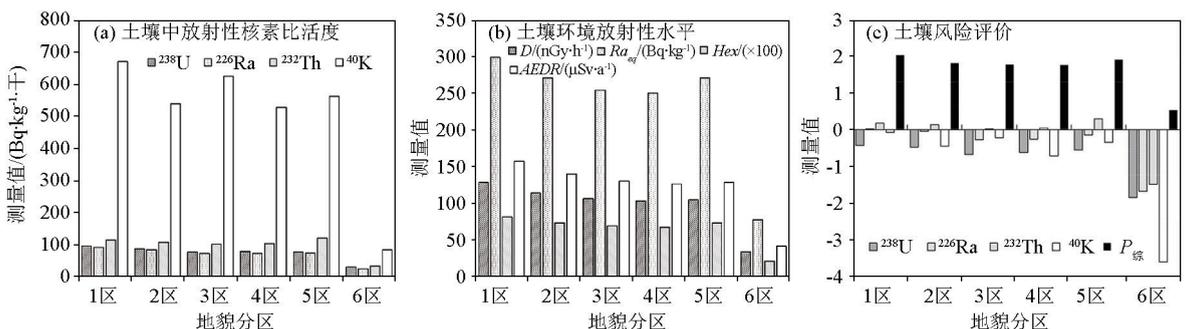


图 9 不同地貌土壤中放射线核素分布

Fig. 9 Radionuclide distribution in soils of different landforms

3 讨论

土壤中的放射性核素不仅对环境产生放射性危害,而且通过生物圈进入食物链危及生态系统的稳定,给人类生命和健康带来威胁^[14]。土壤元素背景值代表一定时间内在所研究的区域土壤中化学组成的基本情况,它是一个区域性的概念^[29]。笔者通过采集广东省 698 个土壤样品并进行了放射性化学分析,对此研究了传统统计方法(TS)、探索性数据分析方法(EDA)和中位数绝对离差方法(MAD)在测算土壤²³⁸U、²²⁶Ra、²³²Th、⁴⁰K 比活度背景值和异常值方面的差异,结果发现 TS 法测算结果最高,EDA 次之,MAD 最小,验证了 MAD 法在该领域具有较好的稳健性和科学性。

本次调查得到广东省土壤中放射性核素²³⁸U、²²⁶Ra、²³²Th 和⁴⁰K 含量均值分别为 79.4、102.95、74.59 和 541.25 Bq/kg·干,是杨剑洲等^[16]调查结果的 0.94、1.32、0.72 和 1.17 倍,是 20 世纪 80 年代广东省调查结果^[1,3]的 1.12、2.03、1.30 和 1.31 倍。杨剑洲等^[16]研究采集的土壤样品为 49 个;20 世纪 80 年代广东省调查^[1,3]网度为 50 km×50 km,采集的土壤样品为 153 个;本次调查采用 20 km×20 km 调查网度,采集土壤样品 689 个,较前人的研究成果,精度上有较大提高,结果更加准确。

笔者应用 γ 辐射剂量率(D)、等效镭比活度(Ra_{eq})、外照射指数(Hex)和年有效剂量率($AEDR$)指标评价了全省土壤环境放射性水平,4 个指标均值分别是杨剑洲等^[16]调查结果的 0.96、1.01、0.59 和 0.96 倍。本次调查采集的土壤样品数也是杨剑洲等^[16]的 14.2 倍,说明调查样本数对研究结果有一定影响。

前人未对广东省土壤中放射性核素开展健康风险评价,笔者应用地累积指数法、单因子指数法和内梅罗综合指数法进行了测算,结果显示 3 种方法在测算土壤中放射性核素健康风险评价时结论基本一致,为该领域风险评价提供了解决方法。应用 GIS 空间分析方法,进一步验证了地质构造带和花岗岩分布区土壤环境放射性水平较高,工程活动中宜采取相应辐射防护措施。

4 结论

1)广东省土壤中 4 种核素背景值 TS 方法测算结果最高,EDA 次之,MAD 最小,异常值 TS 和 EDA

较高,MAD 最小。土壤中²³⁸U、²²⁶Ra、²³²Th 和⁴⁰K 核素比活度背景值分别为 34.27、46.75、32.87 和 271.79 Bq/kg·干,异常值分别为 111.35、141.805、105.12、946.26 Bq/kg·干。

2)广东省空气中的 γ 辐射剂量率平均值为 121.44±67.08 nGy/h,约为 20 世纪 80 年代平均值^[26]的 1.43 倍,全国平均值的 1.93 倍,世界平均值^[27]的 1.73 倍,UNSCEAR^[27]安全值的 0.26 倍。全省 Ra_{eq} 平均值为 263.48±147.72 Bq/kg,是安全指标^[28]的 0.73 倍。全省 $AEDR$ 平均值为 148.93±82.26 μ Sv/a,是安全指标^[27]的 0.32 倍。全省 Hex 值范围 0.08~2.3,平均值为 0.71±0.4,异常阈值为 1.01,19.48%的采样点超过异常阈值。4 种方法测算的土壤环境放射性水平在空间上基本一致,超过异常阈值的采样点数量也基本相同。

3)广东省土壤中放射性核素地累积指数污染等级为清洁。全省土壤中放射性核素单因子指数污染等级为轻微污染。全省土壤中放射性核素内梅罗综合指数为 0.22~5.52,平均值为 1.74±0.97,污染等级为轻度污染。

4)地质构造带缓冲区距离 10 km 内土壤中放射性核素比活度、土壤环境放射性水平、土壤污染指数数值基本相当,均高于 10 km 以上水平。土壤环境放射性异常区均分布在花岗岩区和地质构造带附近,说明地质因素对土壤环境放射性水平影响密切。

5)雷州半岛断陷侵蚀堆积台地平原区土壤中放射性核素比活度、土壤环境放射性水平和土壤污染指数远低于广东省其他区域。

致谢:感谢广东省核工业地质局辐射环境监测中心辐射实验室对仪器进行了标定和样品检测,监测中心质量管理科进行了野外质控,钟文麒、毛彦明、徐浩、张永智、林健等同仁进行了野外数据采集,艾桂根教授、吴星根高级工程师、林强高级工程师提供了技术指导,以及各位同行学者提供论文思路的启发,感谢审稿专家的宝贵意见。

参考文献 (References):

- [1] 全国环境天然放射性水平调查总结报告编写小组. 全国土壤中天然放射性核素含量调查研究(1983-1990年)[J]. 辐射防护, 1992, 12(2): 122-142.
National Environmental Natural Radioactivity Level Survey Summary Report Preparation Team. Investigation and study on natural radionuclide content in soil in China (1983-1990) [J]. Radiation Protection, 1992, 12(2): 122-142.
- [2] 曹龙生, 杨亚新, 张叶, 等. 中国大陆主要省份土壤中天然放射性核素含量分布规律研究[J]. 东华理工大学学报: 自然科学

- 版,2012,35(2):167-172.
- Cao L S, Yang Y X, Zhang Y, et al. Study on the distribution of natural radionuclide content in soil in major provinces of Chinese mainland[J]. *Journal of East China University of Technology: Natural Science Edition*, 2012, 35(2):167-172.
- [3] 曾庆卓,陈联光,郑伟. 广东省土壤中天然放射性核素含量调查研究[J]. *辐射防护*, 1993, 13(5):372-375.
- Zeng Q Z, Chen L G, Zheng W. Investigation and study on natural radionuclide content in soil in Guangdong Province[J]. *Radiation Protection*, 1993, 13(5):372-375.
- [4] 李文文,汪杰,黄涛,等. 安徽铜陵硫化物尾矿区矿砂、土壤和沉积物的天然放射性评价[J]. *生态毒理学报*, 2022, 17(2):290-298.
- Li W W, Wang J, Huang T, et al. Natural radioactivity evaluation of mineral sands, soil and sediments in Tongling sulphide tailings area of Anhui Province[J]. *Chinese Journal of Ecotoxicology*, 2022, 17(2):290-298.
- [5] 杨磊. 矿区周边农田土壤与农作物放射性核素水平检测和评价[J]. *山东农业大学学报:自然科学版*, 2017, 48(6):918-921.
- Yang L. Detection and evaluation of radionuclide levels in farmland and crops around mining areas[J]. *Journal of Shandong Agricultural University: Natural Science Edition*, 2017, 48(6):918-921.
- [6] 杨永虎,孔利锋,李宗硕,等. 准东煤矿开采区土壤中天然放射性水平环境调查及评价[J]. *新疆环境保护*, 2017, 39(2):23-27.
- Yang Y H, Kong L F, Li Z S, et al. Environmental investigation and evaluation of natural radioactivity level in soil in Zhundong coal mining area[J]. *Xinjiang Environmental Protection*, 2017, 39(2):23-27.
- [7] 洪加标. 某铀尾矿库周边环境土壤和地表水放射性水平测量与健康风险评估[D]. 南昌:东华理工大学, 2017.
- Hong J B. Measurement of soil and surface water radioactivity level and health risk assessment in the surrounding environment of a uranium tailings reservoir[D]. Nanchang: East China University of Technology, 2017.
- [8] 吴信民,刘庆成,杨亚新,等. 广东下庄铀矿田土壤天然放射性测定及环境影响评价[J]. *核技术*, 2005, 28(12):918-921.
- Wu X M, Liu Q C, Yang Y X, et al. Determination of natural radioactivity and environmental impact assessment of soil in Xia Zhuang uranium mine, Guangdong [J]. *Nuclear Techniques*, 2005, 28(12):918-921.
- [9] 张琮,施泽明,阚泽忠,等. 牦牛坪稀土矿区土壤天然放射性水平评价[J]. *辐射防护*, 2015, 35(2):123-128.
- Zhang C, Shi Z M, Kan Z Z, et al. Evaluation of natural radioactivity level of soil in yakniuping rare earth mining area[J]. *Radiation Protection*, 2015, 35(2):123-128.
- [10] 钟可意,王笠成,邵波霖,等. 某铀水冶厂周边土壤放射性核素U和Th分布特征及污染评价[J]. *生态毒理学报*, 2022, 17(4):460-470.
- Zhong K Y, Wang L C, Shao B L, et al. Distribution characteristics and pollution evaluation of soil radionuclides U and Th around a uranium water smelter plant[J]. *Acta Ecotoxicologica Sinica*, 2022, 17(4):460-470.
- [11] 李冠超,史天成,杨波,等. 某稀土冶炼厂及周边环境土壤中放射性核素分布特征与风险评估[J]. *有色金属:冶炼部分*, 2021(8):119-126.
- Li G C, Shi T C, Yang B, et al. Distribution characteristics and risk assessment of radionuclides in soil of a rare earth smelter and surrounding environment[J]. *Nonferrous Metals: Smelting Part*, 2021(8):119-126.
- [12] 蒋文波,高柏,张海阳,等. 某铀矿区周边土壤²³⁸U和²²⁶Ra分布特征及污染评价[J]. *中国环境科学*, 2021, 41(4):1799-1805.
- Jiang W B, Gao B, Zhang H Y, et al. Distribution characteristics and pollution evaluation of ²³⁸U and ²²⁶Ra in the surrounding soil of a uranium mining area[J]. *China Environmental Science*, 2021, 41(4):1799-1805.
- [13] 陈小军. 污染场地健康与环境风险评估模型(HERA)在土壤污染调查修复中的应用研究[J]. *节能*, 2020, 39(5):129-131.
- Chen X J. Application of health and environmental risk assessment model (HERA) in soil pollution investigation and remediation [J]. *Energy Conservation*, 2020, 39(5):129-131.
- [14] 李战国,朱勇兵,李军,等. ²²⁶Ra污染场地调查与健康风险评估[J]. *安全与环境学报*, 2020, 20(6):2408-2415.
- Li Z G, Zhu Y B, Li J, et al. ²²⁶Ra contaminated site investigation and health risk assessment[J]. *Journal of Safety and Environment*, 2020, 20(6):2408-2415.
- [15] 刘媛媛,张春艳,魏强林,等. 铀尾矿库区稻田土中放射性核素的空间分布和放射性水平评价[J]. *生态毒理学报*, 2018, 13(5):305-312.
- Liu Y Y, Zhang C Y, Wei Q L, et al. Spatial distribution and radionuclide level evaluation in paddy soil in uranium tailings reservoir area[J]. *Chinese Journal of Ecotoxicology*, 2018, 13(5):305-312.
- [16] 杨剑洲,龚晶晶,唐世新,等. 广东省部分地区土壤放射性核素的测定和剂量评估[J]. *物探与化探*, 2020, 44(2):419-425.
- Yang J Z, Gong J J, Tang S X, et al. Determination and dose assessment of soil radionuclides in some areas of Guangdong Province [J]. *Geophysical and Geochemical Exploration*, 2020, 44(2):419-425.
- [17] 王帅,王红旗,周庆涛,等. 基于稳健统计的土壤环境背景值研究及应用[J]. *环境科学研究*. 2009, 22(8):944-949.
- Wang S, Wang H Q, Zhou Q T, et al. Research and application of soil environmental background value based on robust statistics[J]. *Environmental Research*. 2009, 22(8):944-949.
- [18] 周曙光,周可法,王金林. 稳健数据分析方法在地球化学异常阈值计算中的应用研究[C]//第十二届全国数学地质与地学信息学术研讨会, 2013:129-134.
- Zhou S G, Zhou K F, Wang J L. Application of robust data analysis method in geochemical anomaly threshold calculation [C]//Proceedings of the 12th National Symposium on Mathematical Geology and Geoscience Information, 2013:129-134.
- [19] 陆丽娜,李静,沈军,等. 夏垫活动断层土壤氡地球化学特征[J]. *震灾防御技术*. 2016, 11(4):736-746.
- Lu L N, Li J, Shen J, et al. Geochemical characteristics of radon in

- summer mat active fault soil[J]. Earthquake Defense Technology, 2016, 11(4): 736-746.
- [20] 章蕾. 污染场地调查及健康风险评估的研究[D]. 南京:南京师范大学, 2013.
- Zhang Q. Research on contaminated site investigation and health risk assessment[D]. Nanjing: Nanjing Normal University, 2013.
- [21] 阙泽胜. 广东省放射性地质环境监测数据管理信息系统建设及应用[J]. 辐射防护通讯, 2020, 40(6): 39-43.
- Que Z S. Construction and application of radioactive geological environment monitoring data management information system in Guangdong Province [J]. Radiation Protection Communications, 2020, 40(6): 39-43.
- [22] 盛骤, 谢式千, 潘承毅. 概率论与数理统计[M]. 北京: 高等教育出版社, 2008.
- Sheng Z, Xie S Q, Pan C Y. Probability theory and mathematical statistics[M]. Beijing: Higher Education Press, 2008.
- [23] Muller G. Index of geoaccumulation in sediments of the Rhine River[J]. Geojournal, 1969, 2(108): 108-118.
- [24] 郑国璋. 农业土壤重金属污染研究的理论与实践[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2007.
- Zheng G Z. Theory and practice of heavy metal pollution in agricultural soil[M]. Beijing: China Environmental Science Press, 2007.
- [25] 杨艳, 吴攀, 李学先, 等. 贵州织金县贯城河上游煤矿区富硒高镉土壤重金属的分布特征及生态风险评价[J]. 生态学杂志, 2018, 37(6): 1797-1806.
- 2018, 37(6): 1797-1806.
- Yang Y, Wu P, Li X X, et al. Distribution characteristics and ecological risk assessment of heavy metals in selenium-rich and high-cadmium soil in the upper reaches of Guancheng River, Zhijin County, Guizhou[J]. Chinese Journal of Ecology, 2018, 37(6): 1797-1806.
- [26] 全国环境天然放射性水平调查总结报告编写小组. 全国环境天然贯穿辐射水平调查研究(1983-1990年)[J]. 辐射防护, 1992, 12(2): 96-121.
- National Environmental Natural Radioactivity Level Survey Summary Report Preparation Team. Investigation and study of natural penetrating radiation level in the national environment(1983-1990)[J]. Radiation Protection, 1992, 12(2): 96-121.
- [27] UNSCEAR, Annex B. Exposures of the public and workers from various sources of radiation[R]. New York: United Nations, 2008.
- [28] Beretka J, Matthew P J. Natural radioactivity of Australian building materials, industrial wastes and by-products [J]. Health Physics, 1985, 48(1): 87.
- [29] 秦建侯, 邓勃. 北京地区土壤元素背景值处理原则和方法[J]. 清华大学学报: 自然科学版, 1988(6): 56-63.
- Qin J H, Deng B. Principles and methods for processing soil element background values in Beijing [J]. Journal of Tsinghua University: Natural Science Edition, 1988(6): 56-63.

GIS-based assessment of the radioactivity levels and risks of soil environment

QUE Ze-Sheng, LI Guan-Chao, HU Ying, JIAN Rui-Min, LIU Bing

(Radiation Environmental Monitoring Center of Guangdong Province Nuclear Industry Geological Bureau, Guangzhou 510800, China)

Abstract: Investigating the concentrations of natural radionuclides in soils is basic for soil pollution prevention and control. First, this study determined the background values and anomaly thresholds of radionuclides ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{40}K in soils in Guangdong Province using the geographic information system (GIS) and three methods, namely conventional statistics, exploratory data analysis (EDA), and median absolute deviation (MAD). Then, this study assessed the radioactivity levels of the soil environment using four indices: the γ radiation dose rate, the equivalent radium specific activity, the external exposure index, and the annual effective dose rate. Finally, this study assessed the health risks of the soil radioactivity using the geoaccumulation index method, the single factor index method, and the Nemerow composite index method. The results indicate that: (1) Radionuclides ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{40}K in soils of Guangdong Province have average concentrations of 79.4, 102.95, 74.59, and 541.25 ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{dry}$), respectively; (2) The four radionuclides have background values of 34.27, 46.75, 32.87 and 271.79 ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{dry}$), and the anomaly values of 111.35, 141.805, 105.12, 946.26 ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{dry}$); (3) The radioactivity level indices for soil environment, namely D , Ra_{eq} , Hex , and $AEDR$, show averages of 121.44 ± 67.08 nGy/h, 263.48 ± 147.72 Bq/kg, $0.08 \sim 2.3$, and 148.93 ± 82.26 $\mu\text{Sv/a}$, respectively; (4) The radionuclide geoaccumulation index suggests clean soils, the single factor index indicates slight pollution, and the Nemerow composite index of $0.22 \sim 5.52$ (average: 1.74 ± 0.97) indicates mild pollution. These three indices, which suggest roughly consistent results for the health risk assessment of radionuclides in soils, can serve as a supplement to the health risk assessment method for soil radioactivity.

Key words: geographic information system; soil radioactivity; median absolute deviation method; geoaccumulation index; Guangdong Province