

DOI: 10.7524/AJE.1673-5897.20200708001

秦欢欢, 高柏, 黄碧贤, 等. 拉萨河放射性核素²³⁸U和²³²Th 分布特征及健康风险评估[J]. 生态毒理学报,2021, 16(4): 260-270 Qin H H, Gao B, Huang B X, et al. Distribution and health risk assessment of radionuclides ²³⁸U and ²³²Th in Lhasa River [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2021, 16(4): 260-270 (in Chinese)

拉萨河放射性核素²³⁸ U 和²³² Th 分布特征及健康风险 评估

秦欢欢^{1,2,*},高柏²,黄碧贤²,张诗倩²,刘昕瑀²

东华理工大学核资源与环境国家重点实验室,南昌 330013
 东华理工大学水资源与环境工程学院,南昌 330013
 收稿日期:2020-07-08
 录用日期:2020-10-11

摘要:为了解拉萨河中放射性核素²³⁸U和²³²Th的污染水平及其对人类的致癌风险,利用拉萨河中下游和堆龙曲支流 16 个采样点水样的²³⁸U和²³²Th含量,采取美国环境保护局(U.S. Environmental Protection Agency, US EPA)推荐的放射性核素健康风险评价方法,评估不同年龄人群因饮水途径摄人核素的致癌风险。结果表明,拉萨河中²³⁸U和²³²Th平均活度浓度分别为(2.62±3.46)×10⁻² Bq·L⁻¹和(2.3±0.478)×10⁻³ Bq·L⁻¹,比我国地表水平均值分别高 31%和低 61.7%;²³⁸U和²³²Th含量沿程分别呈波动稳定和波动变化的趋势;不同人群平均总致癌风险分别为(4.81±4.61)×10⁻⁸(幼儿组)、(2.29±1.81)×10⁻⁸(少年组)和(3.08±2.13)×10⁻⁸ a⁻¹(成年组),均低于 1×10⁻⁶ a⁻¹(US EPA 标准)和我国地表水平均致癌风险值,但对幼儿的致癌危害最大;²³⁸U 和²³²Th 的致癌风险贡献率随年龄的增长分别下降和上升;建议对羊八井镇附近河水进行持续监测,确保地热资源开发不会造成拉萨河放射性核素的污染。本研究不仅可以为拉萨河放射性核素污染的研究提供参考,而且可以为拉萨河未来的环境保护提供科学依据。

关键词: 放射性核素; 拉萨河; 健康风险评估; 分布特征 文章编号: 1673-5897(2021)4-260-11 中图分类号: X820.4 文献标识码: A

Distribution and Health Risk Assessment of Radionuclides ²³⁸ U and ²³² Th in Lhasa River

Qin Huanhuan^{1,2,*}, Gao Bai², Huang Bixian², Zhang Shiqian², Liu Xinyu²

State Key Laboratory of Nuclear Resources and Environment, East China University of Technology, Nanchang 330013, China
 School of Water Resources and Environmental Engineering, East China University of Technology, Nanchang 330013, China
 Received 8 July 2020 accepted 11 October 2020

Abstract: In order to understand the pollution level of radionuclides ²³⁸U and ²³²Th and their carcinogenic risks to human beings in Lhasa River, the ²³⁸U and ²³²Th contents of water samples collected from 16 sampling points in the middle and lower reaches and the Doilungqu tributary of Lhasa River were measured. The radionuclide health risk assessment method recommended by the U.S. Environmental Protection Agency (US EPA) was used to assess the carcinogenic risk caused by the intake of radionuclides in drinking water by different age groups. The results

基金项目:国家自然科学基金资助项目(41807179);江西省科技厅项目"气候变化和人类活动下拉萨河水文地球化学特征及其环境影响研究与技术示范"

第一作者:秦欢欢(1986—),男,博士,副教授,研究方向为水体污染防治和地下水污染模拟,E-mail: qhhasn@126.com

^{*} 通讯作者(Corresponding author), E-mail: qhhasn@126.com

showed that the average activity concentrations of ²³⁸U and ²³²Th in Lhasa River were $(2.62\pm3.46)\times10^{-2}$ Bq·L⁻¹ and $(2.3\pm0.478)\times10^{-3}$ Bq·L⁻¹, respectively. The contents of ²³⁸U and ²³²Th were 31% higher and 61.7% lower than the national average level of surface water, respectively. The content of ²³⁸U fluctuated steadily along the way while the content of ²³²Th fluctuated along the way. The average total risk of cancer in different populations was $(4.81\pm4.61)\times10^{-8}$ (children group), $(2.29\pm1.81)\times10^{-8}$ (juvenile group) and $(3.08\pm2.13)\times10^{-8}$ a⁻¹ (adult group), respectively, all of which are lower than 1×10^{-6} a⁻¹ (US EPA standard) and the national surface water carcinogenic risk average values. The carcinogenic risk of Lhasa River is the highest to children. The contribution rate of carcinogenic risk of ²³⁸U decreases with the increase of age, while that of ²³²Th increases with the increase of age. It is suggested to monitor the river water near Yangbajing Town continuously to ensure that the development of geothermal resources will not cause radionuclide pollution in Lhasa River. This study can not only provide a reference for the study of radionuclide pollution in Lhasa River, but also provide a scientific basis for the future environmental protection of Lhasa River.

Keywords: radionuclide; Lhasa River; health risk assessment; distribution characteristics

通常来说,水体(地表水、地下水)是各种疾病和 有害物质向人类和动物传播的重要介质^[1-2]。生活 用水中往往含有对人体健康产生危害的放射性物 质,如来自岩石和土壤的天然放射性核素 (²³⁸U、²²⁶Ra、²³²Th和⁴⁰K等)^[3]以及核试验和核事故产 生的人工放射性核素^[4]。一般来说,日常饮用水中 天然放射性核素产生的辐射剂量比人工放射性核素 产生的辐射剂量要高,长期饮用此类水会造成持续 受照^[1]。当人体接受的核辐射照射剂量长期超过 100 mSv时,其患癌症的风险会有较显著的提升^[5]。 因此,为了预防放射性核素对水体的污染,保证人体 的健康,需要对水体中天然放射性核素的含量和分 布特征进行研究,评价其潜在健康风险。

目前,国内外有许多学者对放射性核素引起的 水质污染问题进行了研究。Singh等^[6]的研究结果 表明,印度Western Haryana地区11%地下水中铀含 量超出印度原子能管理委员会设定的标准值。在我 国,哈日巴拉等^[7]的研究表明,巴彦乌拉铀矿周边饮 用水中总α活度浓度超出了我国饮用水的筛选值。 Fatima等^[8]对巴基斯坦11种桶装水的研究表明,不 同年龄组承受放射性核素照射的有效剂量不同且低 于世界卫生组织(WHO)推荐的照射剂量。丁小燕 等^[9]通过对我国临水河中铀、钍含量的研究,评估了 河水的污染情况和放射性核素所致居民照射的剂 量。现阶段国内对于放射性核素的研究主要集中在 铀矿区或核能发电站周边水渠、地下水等水体^[10-12], 评价对象多为成年人^[9,13],对饮用水和河水中放射性 核素含量、特征和污染评价也有一些研究^[9,14-17]。

拉萨河发源于念青唐古拉山南麓,全长 551

km,流域面积 32 588 km²,平均海拔 5 400 m,是西 藏自治区的政治、经济、文化、交通和宗教核心区,高 原温带半干旱季风气候,日照充足,气温较低,平均 年降水量和蒸散量分别为 460 mm 和 1 217 mm^[18]。 拉萨河流域上游主要是牧区,人口较少,植被以草甸 为主,但由于常年放牧,草甸已退化;中游人类活动 相对较多,耕地面积较小;下游是人口相对密集、农 业发达的地区^[19-20]。近 50 年来,拉萨河流域农 业、工业和城市建设取得了重大进展,特别是"一 江两河"工程的启动,进一步促进了流域农业的发 展。作为西藏自治区重要的水源之一,拉萨河的 水质对流域下游居民的用水和健康有很大影响。 然而,由于经济的快速发展,拉萨河流域的采矿活 动较为密集,由此导致拉萨河流域面临巨大的环 境压力。

有鉴于此,以拉萨河为研究对象,通过对中下游 和支流共16个采样点采集的水样进行分析,测定放 射性同位素²³⁸U和²³²Th的浓度,研究这2种核素在 拉萨河的分布状况,评估不同年龄组居民由饮水途 径摄入的²³⁸U和²³²Th的致癌风险,并将研究结果与 其他案例的评估结果进行对比分析。本研究可以为 拉萨河流域用水安全和健康风险评价提供参考依 据,为保护拉萨河流域的碧水蓝天、实现社会经济和 生态环境保护协调发展提供指导。

1 材料与方法(Materials and methods)

1.1 水样采集和实验方法

在 2017 年 7 月 23 日至 29 日期间按中游、下游、堆龙曲支流的顺序选择了 16 个采样点,包括中游 6 个(S1~S6)、下游 7 个(S7~S13)和堆龙曲支流

3个(DS14、DS14-1和DS15)。利用瞬时采样法进行 河水采样,采样点分布如图1所示。选取S1号采样 点作为本研究中河流的"源头",其余各采样点到S1 的距离为其沿程距离。采用预先清洗的高密度聚乙 烯瓶作为样品采集器,采样前先进行2~3次润洗, 然后在河水表层下逆着水流方向采集水样。采集到 的水样需立即用0.45 μm的滤膜进行过滤,然后用 6 mol·L⁻¹超纯硝酸酸化至pH<2。在瓶口周围用锡 箔胶带和PVC黑胶带密封,保证不渗漏,在瓶身上 做好标记,送至东华理工大学分析测试研究中心进 一步分析。

每个采样点分别采集 350 mL 水用于放射性核 素的检测,检测仪器为电感耦合等离子体质谱仪(inductively coupled plasma mass spectrometer, ICP-MS) Element 2,购自赛默飞世尔科技(Thermo Fisher Scientific)(中国)有限公司,按照中华人民共和国国家环 境保护标准《水质 65 种元素的测定 电感耦合等离 子体质谱法》(HJ700-2014)中的标准方法进行²³⁸U 和²³²Th的浓度测定。水样经预处理后,采用 ICP-MS 进行检测,根据元素的质谱图或特征离子进行 定性,内标法定量。样品由载气带入雾化系统进行 雾化后,以气溶胶形式进入等离子体的轴向通道,在 高温和惰性气体中被充分蒸发、解离、原子化和电 离,转化成的带电荷的正离子经离子采集系统进入 质谱仪,质谱仪根据离子的质荷比进行分离并定性、 定量分析。在一定浓度范围内,质荷比所对应的信 号响应值与其浓度成正比。铀和钍的方法检出限分 别为0.04 μg·L⁻¹和0.05 μg·L⁻¹,测定下限分别为 0.16 µg·L⁻¹和0.20 µg·L⁻¹。使用国家标准中心提 供的标准物质进行质量控制,铀和钍标准溶液证书 编号分别为 GBW(E)080173 和 GBW(E)080174.相 对标准偏差(relative standard deviation, RSD)范围为



图1 研究区位置、水系及水样采集点分布图^[19]

Fig. 1 Study area location, water system and water sample collection points distribution map [19]

0.1%~5%。通过实验测得水样中放射性核素²³⁸U 和²³²Th 的数据都是质量浓度,为了更好地进行剂量 估算,可以将质量浓度换算为活度浓度,换算公式为 $C_{\rm U} = \alpha_{\rm U} \times H_{\rm U}$, $C_{\rm Th} = \alpha_{\rm Th} \times H_{\rm Th}$,其中, $C_{\rm U}$ 和 $C_{\rm Th}$ 分别为 放射性核素²³⁸U和²³²Th 的活度浓度(Bq·L⁻¹), $H_{\rm U}$ 和 $H_{\rm Th}$ 分别为²³⁸U和²³²Th 的质量浓度(g·L⁻¹), $\alpha_{\rm U}$ 和 $\alpha_{\rm Th}$ 分别为²³⁸U和²³²Th 的质量浓度(g·L⁻¹), $\alpha_{\rm U}$ 和

1.2 放射性核素健康风险评价方法

20世纪80年代发展起来的健康风险评价主要 以美国国家科学院(National Academy of Sciences, NAS)和美国环境保护局(U.S. Environmental Protection Agency, US EPA)的研究为依据,是通过建立人 体健康与环境污染的关系,定量分析环境污染物对 人体健康造成的伤害及概率[22],一般分为放射性物 质、化学致癌物及非致癌污染物所致健康危害的风 险评价[23]。这些污染物质主要通过直接接触、摄入 水体中食物和饮水3种暴露途径对人体健康造成危 害,而饮水途径是其中很重要的暴露途径^[22]。目前, 国内外已有不少针对放射性核素健康风险评价的研 究[24-27],但国内研究偏重于简单调查,研究特点表现 在以下几个方面[24,28]:(1)研究区域多限于铀矿区,缺 少对河湖水体的研究:(2)研究内容多是简单地对总 α和总β放射性的调查评价;(3)评价对象也多针对 成年人,缺少对不同年龄组人群的评价。而国外的 研究则要深入得多,对放射性核素的评价不仅覆盖 了不同年龄组的人群,而且考虑了更为具体的核素 种类,由此进行的健康风险评价意义更大[24.28]。本 文考虑到国内外研究的现状,以拉萨河流域不同年 龄组的人群为研究对象,采用国际上广泛接受与应 用的评价方法,评估研究区人群由饮水途径摄 入²³⁸U和²³²Th的致癌风险,这是本文的特色与创新 之处。根据国际辐射防护委员会(International Commission on Radiation Protection, ICRP)及 US EPA 建 议的内照射剂量系数法,拉萨河流域居民通过饮水 途径摄入的放射性核素所致患癌风险可通过以下公 式计算[23-25]:

$$\begin{cases} R^{L} = R^{U} + R^{Th} \\ R^{U} = DR \times D_{U} \\ R^{Th} = DR \times D_{Th} \\ D_{U} = C_{U} \times WU^{a} \times g^{a} \\ D_{Th} = C_{Th} \times WU^{a} \times g^{a} \end{cases}$$
(1)

式中:R^L 表示拉萨河所有放射性核素通过饮水途径 导致个人患癌的年风险(a⁻¹); R^U 和 RTh 分别表示放 射性核素²³⁸U和²³²Th 通过饮水途径导致个人患癌 的年风险(a⁻¹);DR 表示人群中由于辐射诱发癌症的 死亡系数(Sv⁻¹),根据耿福明等^[25]、曾光明等^[23]和胡 二邦^[29]的研究,结合 ICRP 和 US EPA 推荐的内照射 剂量系数法,此处 DR 取值为 1.25×10⁻² Sv⁻¹; D_U 和 D_{Th}分别表示放射性核素²³⁸U和²³²Th 通过饮水途径 导致的人均年有效剂量(Sv·a⁻¹); C_U和 C_{Tb}分别表 示放射性核素²³⁸U和²³²Th在河水中的活度浓度(Bq ·L⁻¹); WU^a 表示 a 年龄组人均年饮水量(L·a⁻¹), 根 据齐文[21]和沈威等[24]的研究,同时采用我国原核工 业部推荐的年龄组划分方法,此处幼儿组(年龄<7 岁)、少年组(7岁<年龄<17岁)和成年组(年龄≥18 岁)的取值分别为 400、500 和 730 L·a⁻¹; g^a 表示 a 年龄组的饮水途径摄入剂量的转换系数(Sv·Bq⁻¹), 根据齐文[21]、王志明和王金生[30]的研究以及参考 《电离辐射防护与辐射源安全基本标准》 (GB18871-2002),此处核素²³⁸U对应的幼儿组、少 年组和成年组的剂量转换系数分别为 2.6×10⁻⁷、1.0 ×10⁻⁷和6.3×10⁻⁸Sv·Bq⁻¹,核素²³²Th对应的幼儿 组、少年组和成年组的剂量转换系数分别为1.2× 10^{-6} 、8.4×10⁻⁷ 和 7.4×10⁻⁷ Sv·Bq⁻¹

2 结果与讨论(Results and discussion)

2.1 ²³⁸U 和²³²Th 含量和分布特征

拉萨河 16 个采样点的²³⁸U 和²³²Th 含量(活度浓 度)如表 1 所示。由表 1 可知,拉萨河²³⁸U 和²³²Th 平 均活度浓度分别为(2.62±3.46)×10⁻²Bq·L⁻¹和(2.3± 0.478)×10⁻³Bq·L⁻¹,变异系数分别为 1.32 和 0.206, 说明²³⁸U活度浓度在空间上变化较大,而²³²Th 活度 浓度在空间上则变化较小。²³⁸U 含量比全国地表水平 均活度浓度(0.0200 Bq·L⁻¹)^[31]高 31%,而²³²Th 含量则 比全国地表水平均活度浓度(0.00600 Bq·L⁻¹)^[31]低 61.7%;同时,²³⁸U 和²³²Th 含量均远低于世界卫生组 织(World Health Organization, WHO)规定的饮用水平 均活度浓度标准(10 Bq·L⁻¹和 1 Bq·L⁻¹)^[52]。

图 2 是拉萨河各采样点²³⁸U 和²³²Th 含量(活度 浓度)及其比值变化曲线图。由图 2 可知,在拉萨河 中游(采样点 S1~S6),²³⁸U 和²³²Th 含量沿程均呈波 动变化趋势;在拉萨河下游(采样点 S7~S13),²³⁸U 含量沿程呈波动上升趋势,²³²Th 含量则沿程呈波动 稳定趋势;而在拉萨河堆龙曲支流,²³⁸U 和²³²Th 含 量则沿程呈波动下降趋势。整个拉萨河总体来看, 考虑到数据的不确定性,²³⁸U含量沿程呈波动稳定 趋势,²³²Th含量沿程呈波动变化趋势,²³⁸U含量在 采样点 DS14-1达到最大值(0.142 Bq·L⁻¹),²³²Th含量 则在采样点 DS14达到最大值(3.98×10⁻³ Bq·L⁻¹),主 要原因是采样点 DS14和 DS14-1靠近羊八井镇,有 丰富的地热资源和地热开发电站。地热资源开发会 产生大量废水,这些废水排放至堆龙曲支流,导致河 水中放射性核素含量增加。随着采样点远离羊八井 镇,采样点 DS15中²³⁸U和²³²Th含量显著下降。 由于自然界中 Th 和 U 常伴生一起, 它们性质 相近, 均能放射出 α, β 射线, 人体一旦接受 Th 和 U 的照射将会极大危害身体健康^[9]。在内生作用中处 于密切共生状态的 Th 和 U, 在外生作用过程中会发 生显著的分离现象。一般来说, 地球上各类岩浆岩 中²³² Th/²³⁸ U 活度浓度比值在 4 左右, 而水体中该比 值则要低得多^[33]。河水中²³² Th 含量基本来自河流 周边碎屑岩颗粒, 是由河流周围的碎屑岩在高温高 压、风化等作用下由补给水流带入河流中的。由图 2 可知, 在拉萨河中游, ²³² Th/²³⁸ U 活度浓度比值沿程

表1 拉萨河各采样点²³⁸U和²³²Th活度浓度

Table 1 The activity concentrations of 250 U and 252 Th at each sampling points of Lhasa Riv	ampling points of Lhasa River	
--	-------------------------------	--

采样点 Sampling point	²³⁸ U	²³² Th	采样点 Sampling point	²³⁸ U	²³² Th
S1	1.31	2.81	S12	1.75	2.23
S2	1.38	2.30	S13	2.48	2.03
S3	2.02	2.10	DS14	8.19	3.98
S4	1.85	2.14	DS14-1	14.2	2.22
S5	1.72	2.10	DS15	1.23	2.00
S6	1.56	2.52	最大值 Maximum	14.2	3.98
S7	0.194	2.09	最小值 Minimum	0.194	1.98
S8	2.15	2.09	平均值 Mean	2.62	2.33
S9	0.733	2.49	标准差 Standard deviation	3.46	0.478
S10	0.908	2.09	变异系数 Coefficient of variation	1.32	0.206
S11	0.332	2.02	全国平均值 National average	2.00	6.00
			世界卫生组织指导值	1 000	1 000
			World Health Organization guidelines	1 000	1 000

注:²³⁸U和²³²Th活度浓度单位为10⁻²Bq·L⁻¹和10⁻³Bq·L⁻¹,变异系数单位量纲为1。

Note: The units of activity concentrations of 238 U and 232 Th are 10^{-2} Bq·L⁻¹ and 10^{-3} Bq·L⁻¹; coefficient of variation is dimensionless.



图 2 拉萨河各采样点放射性核素²³⁸U 和²³²Th 活度浓度及其比值变化曲线

Fig. 2 Activity concentrations and ratio curves of radionuclides ²³⁸U and ²³²Th at each sampling point of Lhasa River

呈先降后升趋势,平均值 0.148;在拉萨河下 游,²³²Th/²³⁸U活度浓度比值沿程呈波动下降趋势, 平均值0.366;而在拉萨河堆龙曲支流,²³²Th/²³⁸U活 度浓度比值沿程呈先降后升趋势,平均值0.0750。 除采样点 S7 和 S11 外,其余样点的²³² Th/²³⁸U 活度 浓度比值均在0.15 左右,证明了拉萨河水中²³²Th含 量远低于²³⁸U含量。拉萨河水中²³⁸U活度浓度明显 高于²³²Th,并且²³²Th 活度浓度极低,这是由铀的水 活动性强和钍在生物圈中的地质化学过程与水无关 的本质特征决定的。上述特征的存在与铀、钍地球 化学行为的差异有关:在天然水中,钍表现出强的颗 粒活性,极易与颗粒物相结合,而铀则表现出水溶性 特征,易从颗粒物中淋滤释出,由此导致拉萨河水体 溶解态²³²Th/²³⁸U活度浓度比值<1的现象。鉴于以 上原因,除采样点 S7 外,其余采样点水体中较低 的²³²Th/²³⁸U活度浓度比值揭示了拉萨河河水对沿 岸土壤和岩石的冲刷较小,导致带入河流的²³²Th含 量较少。

2.2 水化学条件对²³⁸U和²³²Th分布的影响

拉萨河的水化学条件对²³⁸U和²³²Th分布具有 一定的影响,为此对水化学条件与放射性核素含量 进行了相关性分析,具体结果见表2。

在强氧化水体条件下,铀以易溶于水且迁移能 力较强的铀酰离子形式存在,并且铀的溶解度随水 体 pH 值的增大(碱性增强)或减小(酸性增强)而增 强,即铀在强酸或强碱的水体条件下溶解度最大^[17]。 然而,由于天然水体 pH 值在 5~8 之间,多数情况 下铀浓度与水体 pH 值及氧化还原电位(oxidationreduction potential, ORP)值之间并无明显相关性。 在本研究中,拉萨河水体 pH 平均值为 8.06,各采样 点 ORP 值均处于弱氧化的稳定状态,因此,拉萨河 水体中²³⁸U浓度与 pH 值、ORP 值无显著相关性(表 2)。由表 2 可知,²³⁸U浓度与 K⁺浓度有较高正相关 关系(相关系数为 0.835, P<0.05),与 Mg²⁺浓度和 SO₄²⁻浓度有一定负相关关系(相关系数分别为 -0.692 和-0.703),这表明²³⁸U 与 K⁺有相似的来源, 而与 Mg²⁺及 SO₄²⁻ 有不同的来源。据统计资料可 知,低矿化度水中铀含量随总溶解固体(total dissolved solids, TDS)增高而增高,但拉萨河属于微矿 化度水,²³⁸U 与 TDS 之间的这种关系不明显^[17]。

²³² Th 仅有 Th(IV)一个氧化价态存在,因而 ORP 值对水中 Th 活度影响很小。由表2 可知,拉萨河水 体中²³² Th 浓度与 Cl⁻浓度有一定正相关关系(相关 系数为0.609),而与 Ca²⁺、Mg²⁺、SO₄²⁻、HCO₃ 及 TDS 之间有一定负相关关系(相关系数分别为-0.668、 -0.602、-0.614、-0.505 和-0.576),与其他离子无明 显相关关系。这说明,拉萨河水体中²³² Th 与 Cl⁻有 一定的同源性,而与 Ca²⁺、Mg²⁺、SO₄²⁻和 HCO₃等离 子则具有一定的异源性。鉴于河水中²³² Th 主要来 源于河流周边碎屑岩颗粒,以上分析说明拉萨河周 边碎屑岩颗粒在高温高压、风化等作用下由补给水 流向河流,输送了²³² Th 和 Cl⁻。

1401	C 2 CO	inclation	coeffici		ne come		0 and	in an	u chenne	ai paran	licicity in	Liidsa i	AIVCI
	Ca ²⁺	Mg^{2+}	Na^+	\mathbf{K}^+	Cl⁻	SO_4^{2-}	HCO ₃	NO_3^-	pН	ORP	TDS	²³⁸ U	²³² Th
Ca ²⁺	1												
Mg^{2+}	0.748	1											
Na^+	0.458	0.377	1										
\mathbf{K}^+	-0.064	-0.364	0.405	1									
Cl ⁻	0.006	0.010	0.658	0.401	1								
SO_4^{2-}	0.748	0.614	0.122	-0.542	-0.232	1							
HCO_3^-	0.860^{*}	0.785	0.624	0.193	0.231	0.366	1						
NO_3^-	0.319	0.178	0.574	0.390	0.211	0.071	0.421	1					
pН	-0.077	-0.252	-0.434	0.165	-0.464	-0.093	-0.169	-0.480	1				
ORP	0.129	0.385	0.371	-0.315	0.283	0.144	0.225	0.426	-0.935**	1			
TDS	0.958**	0.835*	0.609	0.022	0.166	0.619	0.955**	0.412	-0.200	0.250	1		
²³⁸ U	-0.411	-0.692	-0.032	0.835*	0.067	-0.703	-0.228	0.134	0.363	-0.478	-0.398	1	
²³² Th	-0.668	-0.602	0.186	0.319	0.609	-0.614	-0.505	-0.014	-0.149	0.030	-0.576	0.369	1

表 2 拉萨河水中²³⁸U和²³²Th含量与水化学参数相关性系数

Table 2 Correlation coefficients of the content of ²³⁸U and ²³²Th and chemical parameters in Lhasa River

注:*表示 P<0.05,**表示 P<0.01; ORP 表示氧化还原电位, TDS 表示总溶解固体。

Note: *means P<0.05; **means P<0.01; ORP represents oxidation-reduction potential; TDS represents total dissolved solids.

2.3 ²³⁸U 和²³²Th 健康风险评估与分析

在表3中总结了拉萨河各采样点通过饮水途径 摄入放射性核素²³⁸U和²³²Th导致幼儿、少年和成年 等不同年龄组的患癌风险评估值。由表3可知.拉 萨河各采样点由²³⁸U和²³²Th导致不同年龄组的致 癌风险数量级范围为10⁻⁸~10⁻⁷ a⁻¹.比 ICRP 建议 的最大可忽略风险值(5.0×10⁻⁵ a⁻¹)及 US EPA 设定 的 A 类致癌物质可接受风险值(10⁻⁶ a⁻¹)^[34]低。平 均来看,拉萨河幼儿组、少年组和成年组的总致癌风 险分别为(4.81±4.61) × 10⁻⁸、(2.29±1.81)×10⁻⁸ 和 (3.08±2.13)×10⁻⁸ a⁻¹,变异系数分别为 0.959、0.792 和 0.691,均低于 US EPA 的标准,处于可接受的水 平,致癌风险低。横向比较来看,不同年龄组总致癌 风险大小顺序为幼儿组>成年组>少年组,说明幼儿 比少年和成年更容易因²³⁸U和²³²Th导致身患癌 症,²³⁸U和²³²Th对幼儿毒性更大,这跟幼儿各器官 尚处于快速生长期、身体较弱有较大关系。

由表3可知,拉萨河流域居民通过饮水途径摄

入单个放射性核素最高致癌风险为采样点 DS14-1 幼儿组摄入²³⁸U所致(18.44×10⁻⁸ a⁻¹), 而最低致癌 风险则为采样点 S7 少年组摄入²³⁸U 所致(0.1×10⁻⁸ a⁻¹)。采样点 DS14-1 位于羊八井镇, 地热资源开发 导致的尾液排放使得该采样点²³⁸U对幼儿组、少年 组和成年组产生的致癌风险均比其他采样点要高. 又由于幼儿尚处于身体发育阶段,对放射性核素比 较敏感,虽然幼儿组饮水量比少年组和成年组少,但 也导致采样点 DS14-1 幼儿组摄入238U 所致患癌风 险在所有采样点、所有年龄组里是最大的。采样点 S7 位于中游和下游分界处,受到水体中悬浮物吸附 作用和周围水体补给稀释作用影响,导致该采样 点²³⁸U和²³²Th含量均较低,这些核素的致癌风险亦 较小。

图 3 是拉萨河各年龄组放射性核素²³⁸U 和²³²Th 总致癌风险柱状图。由图3可知,各采样点不同年 龄组总致癌风险大小排序均为幼儿组>成年组>少 年组。这是由于不同年龄人群具有不同的呼吸及肠

Table 3	le 3 Carcinogenic risk assessment of sampling points in Lhasa River								
		²³⁸ U			²³² Th			总计 Total	
采样点	幼儿组	少年组	成年组	幼儿组	少年组	成年组	幼儿组	少年组	成年组
Sampling point	Children	Juvenile	Adult	Children	Juvenile	Adult	Children	Juvenile	Adult
	group	group	group	group	group	group	group	group	group
S1	1.70	0.653	0.751	1.69	1.18	1.90	3.39	1.84	2.65
S2	1.80	0.691	0.794	1.38	0.968	1.55	3.18	1.66	2.35
S3	2.62	1.008	1.16	1.26	0.883	1.42	3.88	1.89	2.58
S4	2.41	0.927	1.07	1.28	0.898	1.44	3.69	1.83	2.51
S5	2.23	0.859	0.987	1.26	0.881	1.42	3.49	1.74	2.40
S6	2.02	0.777	0.894	1.51	1.06	1.70	3.53	1.84	2.60
S7	0.252	0.100	0.112	1.26	0.880	1.41	1.51	0.977	1.53
S8	2.80	1.08	1.24	1.25	0.876	1.41	4.05	1.95	2.65
S9	0.953	0.366	0.421	1.49	1.04	1.68	2.44	1.41	2.10
S10	1.18	0.452	0.522	1.26	0.880	1.41	2.44	1.33	1.94
S11	0.432	0.166	0.191	1.21	0.847	1.36	1.64	1.01	1.55
S12	2.28	0.877	1.01	1.34	0.938	1.51	3.62	1.81	2.52
S13	3.22	1.24	1.42	1.22	0.854	1.37	4.44	2.09	2.80
DS14	10.6	4.09	4.71	2.39	1.67	2.69	13.0	5.77	7.39
DS14-1	18.4	7.09	8.15	1.33	0.934	1.50	19.8	8.03	9.66
DS15	1.60	0.617	0.710	1.19	0.834	1.34	2.80	1.45	2.05
平均值 Mean	3.41	1.31	1.51	1.40	0.977	1.57	4.81	2.29	3.08
标准差 Standard deviation	4.50	1.73	1.99	0.287	0.201	0.323	4.61	1.81	2.13
变异系数 Coefficient of variation	1.32	1.32	1.32	0.206	0.206	0.206	0.959	0.792	0.691

表 3 拉萨河各采样点致癌风险评估

TT 1 1 2	<u> </u>	•	• 1		C	1.	• .	•	T 1	D '
Table 3	Carcinoc	zenic	risk	assessment	ot	sampling	noints	1n	Lhasa	R ive
Tuole 5	Curennog	, on the	TION	abbebbillelle	O1	Sumpring	pomus	111	Linubu	1010

注:致癌风险评估值单位为10⁻⁸ a⁻¹,变异系数单位量纲为1。

Note: The unit of carcinogenic risk assessment value is 10⁻⁸ a⁻¹; coefficient of variation is dimensionless.

道系统状况和新陈代谢速度,幼儿对放射性核素更 敏感,从而使得幼儿组具有更高的致癌风险。对于 3个年龄组来说,总致癌风险与放射性核素²³⁸U 和²³²Th含量分布类似,在采样点DS14-1出现最高 值,分别为19.78×10⁻⁸(幼儿组)、8.03×10⁻⁸(少年组) 和9.66×10⁻⁸ a⁻¹(成年组)。

图 4 是各年龄组中²³⁸U 和²³²Th 对总致癌风险 的贡献率饼状图,由图 4 可知,幼儿组中²³⁸U 和²³²Th 分别贡献了 71% 和 29% 的致癌风险,少年组中²³⁸U 和²³²Th 分别贡献了 57% 和 43% 的致癌风险,而成 年组中²³⁸U 和²³²Th 分别贡献了 49% 和 51% 的致癌 风险。在饮水途径摄入的放射性核素导致的患癌风 险中,²³⁸U 的贡献率随年龄的增长而下降,²³²Th 的 贡献率则随年龄的增长而上升。这说明,拉萨河流 域不同年龄人群需重点关注的放射性核素不同:幼 儿和少年应多关注²³⁸U 导致的致癌风险,成年则应 同时关注²³⁸U 和²³²Th 导致的致癌风险。 2.4 不同河流致癌风险评估的比较与讨论

为进一步了解不同河流中放射性核素²³⁸U 和²³²Th 导致的致癌健康风险,在表 4 中列出了拉萨 河结果和我国其他河流评估结果的比较,包括²³⁸U 和²³²Th 平均活度浓度和采用同样方式计算的平均 总致癌风险。临水河水体中²³⁸U和²³²Th平均活度 浓度较高,分别为 0.0810 Bq · L⁻¹ 和 1.4390 Bq · L^{-1[24]},平均总致癌风险分别为 2.3567×10⁻⁶(幼儿 组)、1.0597×10⁻⁶(少年组)和1.3742×10⁻⁶ a⁻¹(成年 组),均超过了1×10⁻⁶ a⁻¹,对人体存在潜在致癌风 险。同拉萨河研究结果相比,湘江衡阳段、洞庭湖水 系、额尔齐斯河支流和干流的放射性核素²³⁸U 和²³²Th 平均活度浓度均比拉萨河低, 它们的总致癌 风险亦低于拉萨河,风险处于可忽略的水平:我国地 表水²³⁸U平均活度浓度低于拉萨河,但²³²Th平均活 度浓度高于拉萨河,由此计算的总致癌风险则高于 拉萨河,但仍处于可忽略的水平(<1×10⁻⁶ a^{-1})。



图 3 拉萨河各年龄组放射性核素²³⁸U 和²³²Th 总致癌风险柱状图

Fig. 3 Histogram of total carcinogenic risk of radionuclides ²³⁸U and ²³²Th in different age groups of Lhasa River



Fig. 4 Pie chart of contribution rates of ²³⁸U and ²³²Th to total carcinogenic risk of different age groups in Lhasa River

	平均活度浓	度/(Bq・L ⁻¹)	总致癌风险/(10 ⁻⁸ a ⁻¹)				
河湖名称	Average activity con	ncentration/(Bq \cdot L ⁻¹)	Total c	Total carcinogenic risk/(10 ⁻⁸ a ⁻¹)			
Names of rivers and lakes	²³⁸ U	²³² Th	幼儿组	少年组	成年组		
	(10^{-2})	(10 ⁻³)	Children group	Juvenile group	Adult group		
湘江衡阳段[2]	0.460	0.204	0.721	0.216	0.402		
Hengyang section of Xiangjiang River ^[2]	0.460	0.204	0./21	0.316	0.402		
洞庭湖水系[2]	1.00	1 55	2.25	1.20	1.67		
Dongting Lake water system ^[2]	1.09	1.55	2.33	1.20	1.07		
临水河[24]	8 10	1 440	226	107	127		
Linshui River ^[24]	8.10	1 440	230	106	137		
额尔齐斯河支流 ^[33]	0.700	0.100	0.070	0.202	0.470		
Irtysh River tributary ^[33]	0.700	0.100	0.970	0.392	0.470		
额尔齐斯河干流[33]	2.70	0.0000	2.56	1.20	1.61		
Irtysh River main stream ^[33]	2.70	0.0800	3.30	1.38	1.01		
全国地表水平均[24]	2.00	6.00	(20	2.52	5.20		
Average level of surface water in China ^[24]	2.00	6.00	6.20	3.52	5.20		
拉萨河(本研究)	2 (2	2.20	4.01	2.20	2.00		
Lhasa River (This study)	2.62	2.30	4.81	2.29	3.08		

表 4 拉萨河研究结果与我国其他河湖结果的比较

拉萨河的研究采用的是较成熟的致癌健康风险 模型,相关参数是依据大量前人研究成果而确定的, 因此,对于拉萨河水体放射性核素致癌风险的评价 具有较强的科学性和适用性。然而,本研究结果只 是对放射性核素分布及致癌健康风险评价的初步研 究,仅考虑了饮水途径摄入放射性核素²³⁸U和²³²Th 的致癌风险,评估致癌风险时使用的参数大多数是 US EPA 的推荐值,不一定适用于我国^[35]。后续可 通过采取增加不同时间的采样,增加其他放射性核 素的测定,综合考虑饮水、呼吸和皮肤接触等途径的 影响,研究更符合我国人群的参数等措施,深入研究 拉萨河放射性核素分布特征和健康风险,使得研究 结果更具有科学指导意义。

参考文献(References):

- [1] 鞠金欣, 薛茹, 陈尔东. 生活饮用水中放射性核素指导 水平的探讨[J]. 中国辐射卫生, 2016, 25(2): 163-166 Ju J X, Xue R, Chen E D. Study on guidance levels for radionuclides in drinking water [J]. Chinese Journal of Radiological Health, 2016, 25(2): 163-166 (in Chinese)
- [2] 肖峰. 湘江衡阳段水中天然放射性核素调查[D]. 衡阳: 南华大学, 2018: 2-6

Xiao F. The survey of natural radioactive elements of Xiang Jiang section in Xiang Jiang River [D]. Hengyang: University of South China, 2018: 2-6 (in Chinese)

[3] 涂彧, 俞荣生, 张海江, 等. 苏州市区各种水体中总放 射性水平检测及评价[J]. 工业卫生与职业病, 2005, 31 (5): 301-304

Tu Y, Yu R S, Zhang H J, et al. Measurement and evaluation of total radioactivity in water bodies of Suzhou City [J]. Industrial Health and Occupational Diseases, 2005, 31 (5): 301-304 (in Chinese)

- [4] 孙亚茹, 武云云, 万玲, 等. 北京市生活饮用水放射性 水平调查分析[J]. 首都公共卫生, 2014, 8(4): 155-157 Sun Y R, Wu Y Y, Wan L, et al. Investigation and analysis of radioactivity level of drinking water in Beijing [J]. Capital Journal of Public Health, 2014, 8(4): 155-157 (in Chinese)
- [5] Brenner D J, Doll R, Goodhead D T, et al. Cancer risks attributable to low doses of ionizing radiation: Assessing what we really know [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2003, 100(24): 13761-13766
- [6] Singh B, Garg V K, Yadav P, et al. Uranium in groundwater from Western Haryana, India [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2014, 301(2): 427-433
- [7] 哈日巴拉, 拓飞, 胡碧涛, 等. 巴彦乌拉铀矿周围饮用 水中放射性及健康风险[J]. 中国环境科学, 2017, 37(9): 3583-3590
- [8] Fatima I, Zaidi J H, Arif M, et al. Measurement of natural radioactivity in bottled drinking water in Pakistan and

consequent dose estimates [J]. Radiation Protection Dosimetry, 2007, 123(2): 234-240

[9] 丁小燕,张春艳,高柏,等.临水河放射性核素的分布 特征及评价[J].有色金属(冶炼部分),2017(2):59-62, 70

Ding X Y, Zhang C Y, Gao B, et al. Distribution characteristics and evaluation of radioactivity in Linshui River [J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 2017(2): 59-62, 70 (in Chinese)

[10] 杜金秋,关道明,姚子伟,等.大连近海沉积物中放射 性核素分布及环境指示[J].中国环境科学,2017,37(5): 1889-1895

Du J Q, Guan D M, Yao Z W, et al. Distribution and environmental significances of radionuclides in sediments of Dalian coastal area [J]. China Environmental Science, 2017, 37(5): 1889-1895 (in Chinese)

[11] 施宸皓,梁婕,曾光明,等. 某废弃铀矿周边农田土壤 重金属和放射性元素的风险分析和修复措施[J]. 环境 工程学报, 2018, 12(1): 213-219
Shi C H, Liang J, Zeng G M, et al. Assessment of heavy metal and radionuclide pollution risk in farmland around

an abandoned uranium mine and its related remediation measures [J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2018, 12(1): 213-219 (in Chinese)

- [12] Malakootian M, Khashi Z, Iranmanesh F, et al. Radon concentration in drinking water in villages nearby Rafsanjan fault and evaluation the annual effective dose [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2014, 302(3): 1167-1176
- [13] 梁晓军, 宋文磊, 李建, 等. 饮用水放射性污染现状及 健康风险评价研究进展[J]. 职业与健康, 2015, 31(3): 417-419
 Liang X J, Song W L, Li J, et al. Research progress on drinking water radioactivity pollution and its health risk assessment [J]. Occupation and Health, 2015, 31(3): 417-419 (in Chinese)
- [14] 李福生, 陈英民, 陈跃, 等. 小清河河水中的放射性水 平及变化规律[J]. 中国辐射卫生, 2000, 9(2): 86-87
- [15] 马庆录, 刘文华, 朱婀娜, 等. 青海湖环境中放性核素 水平与卫生学评价[J]. 中国公共卫生, 2005, 21(1): 58-59
- [16] 曹敬丽,许家昂,陈英民,等.南水北调东线山东段通 水前主要湖区水放射性水平[J].中国辐射卫生,2006, 15(2):142-143

Cao J L, Xu J A, Chen Y M, et al. The radioactivity levels in the main lakes of Shandong basin in east line of south to north water diversion [J]. Chinese Journal of Radiological Health, 2006, 15(2): 142-143 (in Chinese) [17] 易玲,高柏,刘媛媛,等.铀矿区周边水体典型核素污染特征及风险评价[J].中国环境科学,2019,39(12): 5342-5351

Yi L, Gao B, Liu Y Y, et al. Distribution characteristics and risk assessment of typical radionuclides in water around uranium mining area [J]. China Environmental Science, 2019, 39(12): 5342-5351 (in Chinese)

- [18] Qin H H, Gao B, He L, et al. Hydrogeochemical characteristics and controlling factors of the Lhasa River under the influence of anthropogenic activities [J]. Water, 2019, 11(5): 948
- [19] 何柳. 拉萨河流域水文地球化学特征及其风化指示
 [D]. 抚州: 东华理工大学, 2019: 7-10
 He L. Hydrogeochemical characteristics and weathering indicators in Lhasa River basin [D]. Fuzhou: East China Institute of Technology, 2019: 7-10 (in Chinese)
 [20] 龚晨. 西藏拉萨河流域水化学时空变化及影响因素研
- [21] 齐文. 某铀尾矿区及下游河水水环境放射性污染特征研究[D]. 抚州: 东华理工大学, 2016: 33-43
 Qi W. Pollution characteristics of a uranium tailings dam and downstream river environment radioactivity [D]. Fuzhou: East China Institute of Technology, 2016: 33-43 (in Chinese)
- [22] 倪彬, 王洪波, 李旭东, 等. 湖泊饮用水源地水环境健康风险评价[J]. 环境科学研究, 2010, 23(1): 74-79
 Ni B, Wang H B, Li X D, et al. Water environmental health risk assessment in lake sources of drinking water
 [J]. Research of Environmental Sciences, 2010, 23(1): 74-79 (in Chinese)
- [23] 曾光明, 卓利, 钟政林, 等. 水环境健康风险评价模型
 [J]. 水科学进展, 1998, 9(3): 212-217
 Zeng G M, Zhuo L, Zhong Z L, et al. Assessment models for water environmental health risk analysis [J]. Advances in Water Science, 1998, 9(3): 212-217 (in Chinese)
- [24] 沈威,高柏,章艳红,等.临水河天然放射性核素调查 及健康风险评价[J].科学技术与工程,2019,19(19): 374-379

Shen W, Gao B, Zhang Y H, et al. Investigation of radionuclides and health risk assessment in Linshui River [J]. Science Technology and Engineering, 2019, 19(19): 374-379 (in Chinese)

[25] 耿福明, 薛联青, 陆桂华, 等. 饮用水源水质健康危害的风险度评价[J]. 水利学报, 2006, 37(10): 1242-1245
Geng F M, Xue L Q, Lu G H, et al. Water quality health-hazard risk assessment on drinking water supply sources
[J]. Journal of Hydraulic Engineering, 2006, 37(10): 1242-1245 (in Chinese)

- [26] Gharbi F, Baccouche S, Abdelli W, et al. Uranium isotopes in Tunisian bottled mineral waters [J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2010, 101(8): 589-590
- [27] Ajayi O S, Achuka J. Radioactivity in drilled and dug well drinking water of Ogun state Southwestern Nigeria and consequent dose estimates [J]. Radiation Protection Dosimetry, 2009, 135(1): 54-63
- [28] 梁晓军,宋文磊,李建,等. 饮用水放射性污染现状及 健康风险评价研究进展[J]. 职业与健康, 2015, 31(3): 417-419
 Liang X J, Song W L, Li J, et al. Research progress on drinking water radioactivity pollution and its health risk assessment [J]. Occupation and Health, 2015, 31(3): 417-419 (in Chinese)
- [29] 胡二邦.环境风险评价实用技术和方法[M].北京:中国环境科学出版社,2000:467-473
- [30] 王志明,王金生.长江水的使用所致流域居民剂量的 估算[J].中国环境科学,2000,20(S1):73-76
 Wang Z M, Wang J S. Estimation of dose to peoples due to using and being in contact with the water of Yangtze River [J]. China Environmental Science, 2000, 20(S1):73-76 (in Chinese)
- [31] 全国环境天然放射性水平调查总结报告编写小组. 全国水体中天然放射性核素浓度调查(1983—1990年)
 [J]. 辐射防护, 1992, 12(2): 143-163

The Writing Group of the Summary Report on Nationwide Survey of Environmental Radioactivity Level in China. Survey of natural radioactivity level of the waters in China (1983—1990) [J]. Radialization Protection, 1992, 12(2): 143-163 (in Chinese)

[32] 蒋经乾,李玲,占凌之,等. 某尾矿库周边水放射性分布特征及其评价[J]. 有色金属(冶炼部分), 2015(11):
60-63
Jiang J Q, Li L, Zhan L Z, et al. Radioactivity distribution

characteristics and evaluation of water of tailings periphery [J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 2015 (11): 60-63 (in Chinese)

- [33] 李社红,郑宝山,朱建明,等.额尔齐斯河流域及某稀 有多金属矿废水铀、钍含量分布及其环境影响[J]. 矿 物学报, 2003, 23(4): 308-312
 Li S H, Zheng B S, Zhu J M, et al. Distribution of uranium and thorium in the Irtysh River and upriver wastewater from a rare multi-metal mine [J]. Acta Mineralogica Sinica, 2003, 23(4): 308-312 (in Chinese)
- [34] 王啸,高亮,段喜贵,等.天津市地下水和地热流体中 天然放射性核素调查与评价[J]. 辐射防护, 2012, 32(4): 248-253

Wang X, Gao L, Duan X G, et al. Investigation and assessment of natural radionuclides in groundwater and geothermal fluid of Tianjin City [J]. Radiation Protection, 2012, 32(4): 248-253 (in Chinese)

[35] 韩冰,何江涛,陈鸿汉,等.地下水有机污染人体健康风险评价初探[J].地学前缘,2006,13(1):224-229
Han B, He J T, Chen H H, et al. Primary study of health-based risk assessment of organic pollution in groundwater
[J]. Earth Science Frontiers, 2006, 13(1): 224-229 (in Chinese)