

张锦,钟春明,高翔,等.某退役铀尾矿库渗水中放射性调查结果与分析[J].世界核地质科学,2025,42(3):659-667. doi: 10.3969/j.issn.1672-0636.2025.03.016

ZHANG Jin, ZHONG Chunming, GAO Xiang, et al. Investigation results and analysis of radioactivity in water seepage of a decommissioned uranium tailing pond[J]. World Nuclear Geoscience, 2025, 42 (3): 659-667 (in Chinese).

某退役铀尾矿库渗水中放射性调查结果与分析

张锦,钟春明,高翔,张鑫

1 湖南中核环保科技有限公司, 湖南 长沙 410007

2 核工业二三〇研究所, 湖南 长沙 410007

3 湖南省伴生放射性矿产资源评价与综合利用工程技术研究中心, 湖南 长沙 410007

摘要 监测某退役铀尾矿库渗水中放射性核素的活度浓度,分析尾矿库在2020—2024年内渗水中的放射性核素活度浓度随时间的变化趋势,并调查渗水和监测井水中的放射性核素的相关性,以评价铀尾矿库渗水对周边地下水的辐射影响。调查结果表明,渗水中 $U_{\text{天然}}$ 范围介于 $15.1\sim 397\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, ^{226}Ra 范围介于 $0.008\sim 0.176\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, ^{210}Pb 范围介于 $0.007\sim 0.172\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, ^{210}Po 范围介于 $0.004\sim 0.021\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, ^{226}Ra 、 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 监测数据均未超过相应限值。监测井水中 $U_{\text{天然}}$ 范围介于 $0.21\sim 2.98\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, ^{226}Ra 范围介于 $0.006\sim 0.023\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, ^{210}Pb 范围介于 $0.004\sim 0.131\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, ^{210}Po 范围介于 $0.002\sim 0.011\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间,总体处于当地本底水平。根据Mann-Kendall检验法评价结果,渗水中 $U_{\text{天然}}$ 和 ^{226}Ra 浓度无显著时间变化趋势, ^{210}Pb 和 ^{210}Po 浓度随时间呈现下降趋势并趋于平稳。根据Spearman秩相关系数评价结果,渗水和监测井水中的 $U_{\text{天然}}$ 、 ^{226}Ra 、 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的Spearman秩相关系数 ρ ,分别为0.314 3、0.074 4、0.939 5和0.460 5,监测井水中 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 与渗水中 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 存在显著正相关性。此次调查为监管部门和企业在今后对尾矿库的辐射环境监管提供数据支撑和监管依据,利于采取针对性强的监管对策。

关键词 铀尾矿库; 渗水; 放射性核素; 监测; Mann-Kendall检验法; Spearman秩相关系数

中图分类号 X591 文献标志码 A 文章编号 1672-0636 (2025) 03-0659-09

Investigation results and analysis of radioactivity in water seepage of a decommissioned uranium tailing pond

ZHANG Jin, ZHONG Chunming, GAO Xiang, ZHANG Xin

1 Hunan Engineering Technology Research Center for Evaluation and Comprehensive Utilization of Associated Radioactive Mineral Resources, Changsha 410007, China

2 Research Institute No. 230, CNNC, Changsha 410007, China

3 Hunan Zhonghe Nuclear Environmental Protection Technology Co., Ltd., Changsha 410007, China

基金项目: 中国核工业地质局铀矿地质项目(编号: 202324-3)资助

收稿日期: 2025-03-25 改回日期: 2025-04-28

第一作者: 张锦,男,1976年生,高级工程师,主要从事环保工程和环境影响评价工作。E-mail: 254180476@qq.com

通信作者: 钟春明,男,1986年生,高级工程师,主要从事放射性化学分析研究工作。E-mail: 363450767@qq.com

Supported by the Central Financial Fund Project (No. 202324-3) under the planning and jurisdiction of the China Nuclear Industry Geological Bureau

Received date: 2025-03-25 revised date: 2025-04-28

First author: ZHANG Jin, male, born in 1976, senior engineer, focusing on environmental protection engineering and environmental impact assessment. E-mail: 254180476@qq.com

Corresponding author: ZHONG Chunming, male, born in 1986, senior engineer, focusing on radiochemical analysis. E-mail: 363450767@qq.com

Abstract: This study monitored the activity concentrations of radionuclides in seepage water from a decommissioned uranium tailings pond, analyzed the temporal trends of radionuclide concentrations in seepage water from 2020 to 2024, and investigated the correlations between radionuclides in seepage water and monitoring well water to evaluate the radiological impact of seepage on surrounding groundwater. The results showed that the seepage water contained uranium at concentrations ranging from 15.1 to 397 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, ^{226}Ra from 0.008 to 0.176 $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$, ^{210}Pb from 0.007 to 0.172 $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$, and ^{210}Po from 0.004 to 0.021 $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$, levels of ^{226}Ra , ^{210}Pb , and ^{210}Po are all below regulatory limits. In monitoring well water, uranium concentrations ranged from 0.21 to 2.98 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, ^{226}Ra from 0.006 to 0.023 $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$, ^{210}Pb from 0.004 to 0.131 $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$, and ^{210}Po from 0.002 to 0.011 $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$, all consistent with local background levels. Analysis using the Mann-Kendall test revealed no significant temporal trends for uranium and ^{226}Ra in seepage water, while ^{210}Pb and ^{210}Po concentrations exhibited declining trends and become stable. According to the evaluation results of Spearman correlation coefficient, the Spearman correlation coefficient ρ_s for uranium, ^{226}Ra , ^{210}Pb , and ^{210}Po in the seepage water and monitoring well water were 0.314 3, 0.074 4, 0.939 5, and 0.460 5, respectively. Significant positive correlations were observed between ^{210}Pb and ^{210}Po in monitoring well water and their counterparts in seepage water. These findings provided critical data and regulatory guidance for authorities and enterprises to strengthen radiation environmental monitoring and implement targeted management strategies, thereby mitigating potential risks to groundwater safety around uranium tailings facilities.

Keywords: uranium tailings pond; seepage water; radionuclides; monitoring; Mann-Kendall test; Spearman correlation coefficient

铀矿在开采和冶炼过程中会产生尾矿石、废液和废渣,为此得建立专门存放铀尾矿石和废渣的尾矿库(尾渣库),其储存的尾矿量很大并且留存了 97% 以上的铀系衰变子体 ^{226}Ra 及其一系列放射性子体^[1],由于堆放在尾矿库的尾矿和废渣直接暴露在环境中,受长期风化、雨水侵蚀和淋滤作用影响,尾矿库中的放射性核素会随地表水与地下水进入水环境与土壤环境^[2-3]。这些放射性核素不仅可通过粉尘及饮水直接被人体吸收及富集^[4],也可在食物链中迁移及富集,会对人类和环境造成长期的潜在影响和危害^[5]。

铀尾矿库一般通过尾矿库渗漏污染地下水,是放射性核素向周围环境扩散的主要途径之一^[6]。退役铀尾矿库随着库龄的不断增长,库区内的放射性核素渗入地下水的可能性随之增加,从而提高周边地下水环境受放射性污染的风险性,并具有长期性、隐蔽性的特点^[7-8]。宋鑫等^[9]以南方铀尾矿为例,采用单因子指数法和潜在危害指数法对其周边土壤和水体中铀的污染状况进行分析评价。魏强林等^[10]以某铀尾矿库为例,采用单因子

污染指数对周边地表水的铀和钾进行分析评价。张乾等^[11]以某退役铀尾矿库为例,对库区周边环境的放射性水平进行调查与评价。目前,针对退役铀尾矿库渗水和周边地下水中放射性核素的长期变化趋势以及相关影响评价的研究较少。因此,有必要对铀尾矿库渗水和周边地下水的放射性核素水平进行长期现状调查与分析,评价渗水中放射性核素浓度变化趋势,了解周边地下水可能存在的污染情况。

2020—2024 年期间,对某已退役铀尾矿库的渗水和监测井水中的放射性核素活度浓度进行长期监测,以掌握该尾矿库渗水和监测井水中主要放射性核素的活度浓度水平变化趋势,分析铀尾矿库渗水和监测井水中的放射性核素的相关性。为铀尾矿库水环境治理、退役治理工程及后期监护管理提供参考依据。

1 项目概况

该铀尾矿库于 1994 年退役,目前处于退役长期监护阶段。尾矿库位于水冶厂区以南约

800 m的丘陵山谷中。库区为丘陵地貌,地形高差变化不大,比高介于20~30 m之间,最高的一个山头仅40 m左右。尾矿库建在一条SN向,两端开口的山沟内。至尾矿库退役时,尾矿库占地面积为1.76 km²,汇水面积为1.47 km²,滩面面积为1.36 km²,尾矿库周圈长约6 000 m,坝体总长4 600 m,坝坡面积24.3万m²。尾矿库周圈建设有坝体,在尾矿库南边设置有渗水收集泵房,以收集坝体四周汇集的尾矿库渗水,渗水由收集及返回系统返回尾矿库,不对外排放。由于历史原因,尾矿库建设初期无库底防渗措施,2003—2021年期间,责任单位多次对尾矿库的滩面、坝体、防渗设施、排洪(水)设施、坝体浸润线及位移观测设施、尾矿库周围渗水收集及返回系统、环坝公路等进行了安全整治。但可能存在小部分尾矿库渗水进入浅层地下水、地表径流水和大气环境中,进而对周边环境造成辐射影响。为及时了解、掌握尾矿库砂层透水稳定性及渗出水污染变化趋势,对尾矿库渗水进行放射性监测十分

必要。

2 调查内容与方法

2.1 调查内容

根据《辐射环境监测技术规范: HJ 61—2021》^[12]、《铀矿冶辐射环境监测规定: GB 23726—2009》^[13]等相关标准规定,于2020—2024年对尾矿库渗水泵房里收集的渗水进行放射性水平监测,并在尾矿库地下水流经下游西南方向离渗水泵房1.0 km处设置有监测水井点1处。监测项目为U_{天然}、²²⁶Ra、²¹⁰Po和²¹⁰Pb,监测频次为1次/季度。

2.2 监测方法和仪器

依据GB 23726—2009对水样进行规范采集、保存、运输以及实验室检测分析。采样和核素分析检测方法,优先选择适用的国家和行业标准分析方法、监测技术规范,以及生态环境部门推荐的统一分析方法及有关规定等^[14-17]。采用的监测方法、监测仪器和检出限见表1。

表1 监测方法、监测仪器及检出限

Table 1 Monitoring methods, monitoring instruments and detection limits

监测对象	监测项目	监测方法	监测仪器	检出限
渗水、监测井水	²²⁶ Ra	《水中镭-226的分析方法: GB 11214—1989》 ^[14]	PC-2100型镭钍分析仪	0.002 Bq·L ⁻¹
	U _{天然}	《水质 65种元素的测定 电感耦合等离子体质谱法: HJ 700—2014》 ^[15]	NexION 300X型电感耦合等离子体质谱仪	0.04 μg·L ⁻¹
	²¹⁰ Po	《水中钋-210的分析方法: HJ 813—2016》 ^[16]	7200-4-1型低本底α能谱仪	0.001 Bq·L ⁻¹
	²¹⁰ Pb	《水中铅-210的分析方法: EJ/T 859—1994》 ^[17]	MPC-9604型流气式低本底α、β测量仪	0.003 Bq·L ⁻¹

2.3 管理限值

根据本次调查实际情况以及相关标准规定,选取《铀矿冶辐射防护和辐射环境保护规定: GB 23727—2020》表3^[18]中规定的限值作为渗水监测数据对比分析的参照标准,U_{天然}≤0.3 mg·L⁻¹、²²⁶Ra≤1.1 Bq·L⁻¹、²¹⁰Pb≤0.5 Bq·L⁻¹、²¹⁰Po≤0.5 Bq·L⁻¹,实际渗水不外排。监测井水参考《生活饮用水卫生标准: GB 5749—2022》^[19]中规定的限值,即U_{天然}≤30 μg·L⁻¹、²²⁶Ra≤1.0 Bq·L⁻¹,对²¹⁰Po、²¹⁰Pb未做限值规定。

2.4 质量保证

1)实验室通过了省级检验检测机构资质认定并严格按照质量管理体系要求开展相关

工作。

2)现场采样和实验室分析检测人员均通过了相关项目培训,并做到持证上岗。

3)使用的监测仪器按照有关规定进行了检定或校准并在有效期内使用。

3 辐射环境本底水平

根据《中国环境天然放射性水平》(2015年)^[20]当地辐射环境监测数据,受当时技术水平、仪器设备和测量方法等条件限制,仅监测了U_{天然}和²²⁶Ra,未监测²¹⁰Po、²¹⁰Pb。尾矿库建立前周边水体的U_{天然}和²²⁶Ra本底值见表2。

表 2 尾矿库周边地表水、井水中 $U_{\text{天然}}$ 和 ^{226}Ra 本底值Table 2 Uranium and ^{226}Ra background values in the surface water and well water around the tailings pond

介质	$U_{\text{天然}}$ 测量结果/ ($\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)		^{226}Ra 测量结果/ ($\text{mBq}\cdot\text{L}^{-1}$)	
	范围	平均值	范围	平均值
水体 (湘江)	0.05~10.5	1.35	0.50~22.54	2.72
井水	1.22~12.67	5.12	0.25~9.55	3.85

4 调查结果

4.1 渗水放射性核素监测结果

2020—2024 年对泵房中尾矿库渗水进行取样放射性监测, $U_{\text{天然}}$ 、 ^{226}Ra 、 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 各监测了 20 个数据, 监测结果见表 3。由表 3 可知, 2020—2024 年期间, 尾矿库渗水中 $U_{\text{天然}}$ 质量浓度范围介于 $15.1\sim 397\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, 最大值出现在 2021 年, 为 $397\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 本项目尾矿库渗水不外排, 由渗水收集及返回系统返回至尾矿库; ^{226}Ra 活度浓度范围介于 $0.008\sim 0.176\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, 最大值出现在 2023 年, 为 $0.176\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$, ^{226}Ra 监测数据均未超 $1.1\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 限值; ^{210}Pb 活度浓度范围介于 $0.007\sim 0.172\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, 最大值出现在 2020 年, 为 $0.172\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$, ^{210}Pb 监测数据均未超 $0.5\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 限值; ^{210}Po 活度浓度范围介于 $0.004\sim 0.021\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, 最大值出现在 2020 年, 为 $0.021\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$, ^{210}Po 监测数据均未超 $0.5\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 限值。

表 3 渗水中放射性核素监测结果

Table 3 Monitoring results of the radionuclides in seepage water

年份/年	$U_{\text{天然}}$ / ($\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)		^{226}Ra / ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$)		^{210}Pb / ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$)		^{210}Po / ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$)	
	范围	平均值	范围	平均值	范围	平均值	范围	平均值
2020	15.1~353	116	0.008~0.022	0.013	0.085~0.172	0.116	0.011~0.021	0.015
2021	43.0~397	158	0.010~0.058	0.035	0.041~0.063	0.053	0.005~0.013	0.008
2022	57.2~251	118	0.009~0.034	0.016	0.030~0.055	0.038	0.005~0.009	0.006
2023	21.7~357	146	0.042~0.176	0.087	0.016~0.024	0.021	0.005~0.006	0.006
2024	39.0~341	168	0.011~0.021	0.014	0.007~0.014	0.010	0.004~0.005	0.005

表 4 监测井水中放射性核素监测结果

Table 4 Monitoring result of the radionuclides in water wells

年份/年	$U_{\text{天然}}$ / ($\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)		^{226}Ra / ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$)		^{210}Pb / ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$)		^{210}Po / ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$)	
	范围	平均值	范围	平均值	范围	平均值	范围	平均值
2020	0.83~1.73	1.22	0.009~0.023	0.016	0.021~0.131	0.072	0.004~0.011	0.006
2021	0.45~0.87	0.59	0.007~0.019	0.011	0.013~0.021	0.017	0.004~0.009	0.006
2022	0.21~1.09	0.65	0.007~0.020	0.011	0.008~0.009	0.009	0.002~0.004	0.003
2023	1.11~2.98	2.21	0.006~0.021	0.013	0.005~0.007	0.006	0.002~0.004	0.003
2024	0.36~1.36	0.88	0.011~0.017	0.014	0.004~0.007	0.005	0.003~0.004	0.003

4.2 监测井水放射性核素监测结果

为了更好地评价尾矿库渗水对周边地下水的影响, 对位于尾矿库地下水流经下游西南方向离渗水泵房 1.0 km 处设置的监测井进行同步采样分析。监测井水放射性核素监测结果见表 4。由表 4 可知, 2020—2024 年期间, 监测井水中 $U_{\text{天然}}$ 质量浓度范围介于 $0.21\sim 2.98\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, 总体低于当地本底水平, 未超过饮用水 $30\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 限值; ^{226}Ra 活度浓度范围介于 $0.006\sim 0.023\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, 与当地本底水平基本一致, 相差不大, 未超过饮用水 $1.0\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 限值; ^{210}Pb 活度浓度范围介于 $0.004\sim 0.131\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, 除了 2020 年出现 $0.131\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 稍高的监测数据外, 总体位于低浓度水平波动; ^{210}Po 活度浓度范围介于 $0.002\sim 0.011\ \text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, 总体平稳在低浓度水平。

4.3 Mann-Kendall 检验法评价

Mann-Kendall (曼-肯德尔) 检验法是一种常用的非参数检验方法^[21], 该方法可用于检

验时间序列数据是否具有趋势性,其是基于数据的秩,而不是数据本身。原理是通过比较数据中每个点和其后续点的大小关系,来判断数据中是否存在单调上升或单调下降的趋势。常用于气象、水文和水质时间序列的变化趋势和突变分析。Mann-Kendall 检验法计算如下:

1) 计算统计量 S

对于时间序列 $X = \{X_1, X_2, \dots, X_n\}$ 统计所

$$VAR(S) = \frac{1}{18} (n(n-1)(2n+5) - \sum_{k=1}^p q_k(q_k-1)(2q_k+5)) \quad (3)$$

式(3)中: q_k —第 k 个重复值的出现次数; p —重复值的组数。

3) 计算标准化统计量 Z

$$Z = \begin{cases} \frac{S-1}{\sqrt{VAR(S)}} & \text{if } S > 0 \\ 0 & \text{if } S = 0 \\ \frac{S+1}{\sqrt{VAR(S)}} & \text{if } S < 0 \end{cases} \quad (4)$$

4) 判断显著性

在显著性水平 $\alpha = 0.05$ 条件下,标准正态分布临界值 $Z_{1-\alpha} = 1.96$ 。若 $|Z| \geq Z_{1-\alpha}$ 且 $Z \geq 0$, 则存在显著单调上升的趋势;若 $|Z| \geq Z_{1-\alpha}$ 且 $Z < 0$, 则存在显著单调下降的趋势;若 $|Z| < Z_{1-\alpha}$, 则无显著趋势。

2020—2024 年渗水中 $U_{\text{天然}}$ 、 ^{226}Ra 、 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的监测数据随时间的分布见图 1, 采用 Mann-Kendall 检验法判断放射性核素随时间的变化趋势结果见表 5。由表 5 并结合图 1 可知, 2020—2024 年期间, 尾矿库渗水中 $U_{\text{天然}}$ 监测数据波动剧烈, 时间序列无明显单调性, 数据无显著趋势, 可能受随机因素或周期性影响

有 $X_j > X_i (j > i)$ 的情况数减去 $X_j < X_i$ 的情况数:

$$S = \sum_{j=1}^{n-1} \sum_{i=j+1}^n \text{sgn}(X_j - X_i) \quad (1)$$

$$\text{sgn} = \begin{cases} 1 & \text{if } (X_j - X_i) > 0 \\ 0 & \text{if } (X_j - X_i) = 0 \\ -1 & \text{if } (X_j - X_i) < 0 \end{cases} \quad (2)$$

2) 计算方差 $VAR(S)$

若数据中存在重复值(ties), 需修正方差:

产生了 397、353、357 和 341 等极值; ^{226}Ra 监测数据呈现先升后降再升的波动, 无明显时间单调趋势; ^{210}Pb 监测数据第 7~8 个数据点 (0.057→0.063) 存在短暂上升波动, 后期数据 (第 9~20 个) 稳定在低值区间 (0.007~0.034), 尽管中期短暂上升波动, 但整体下降趋势明确。 ^{210}Pb 的 Z 值为 -5.29 表明, ^{210}Pb 监测数据中存在显著的下降趋势, 并趋于平稳; ^{210}Po 监测数据第 8 个数据点 (0.013) 为异常波动, 显著高于前后值, 尽管第 8 个数据点短暂波动, 但未影响整体变化方向, ^{210}Po 的 Z 值为 -3.99 表明, 数据中存在显著的下降趋势, 并趋于平稳。

4.4 Spearman 秩相关系数评价

Spearman 秩相关系数又称等级相关系数, 是将两要素的样本值按数据的大小顺序排列位次, 以各要素样本值的位次代替实际数据而求得的一种统计量, 是一种非参数性质 (与分布无关) 的秩检验统计参数, 用来度量两个变量之间联系的强弱。采用 Spearman 秩相关系数评价尾矿库渗水和监测水井的放射性核素之间的相关性。Spearman 秩相关系数计算公式为^[22]:

表 5 2020—2024 年渗水中 $U_{\text{天然}}$ 、 ^{226}Ra 、 ^{210}Pb 和 ^{210}Po Mann-Kendall 检验法评价结果

Table 5 Evaluation results of the Mann-Kendall trend test for U , ^{226}Ra , ^{210}Pb and ^{210}Po in seepage water in 2020-2024

核素	监测数据 $\{X_1, X_2, \dots, X_{20}\}$	S	$VAR(S)$	Z	结论
$U_{\text{天然}}$	33.6, 353, 63.6, 15.1, 397, 43.0, 103, 88.3, 57.2, 76.8, 251, 88.3, 57.2, 21.7, 357, 149, 341, 232, 58.6, 39.0	12	948	0.357	无显著趋势
^{226}Ra	0.009, 0.008, 0.022, 0.014, 0.032, 0.010, 0.058, 0.039, 0.009, 0.010, 0.011, 0.034, 0.042, 0.042, 0.176, 0.088, 0.012, 0.021, 0.011, 0.013	16	950	0.50	无显著趋势
^{210}Pb	0.172, 0.113, 0.085, 0.092, 0.052, 0.041, 0.057, 0.063, 0.034, 0.031, 0.030, 0.055, 0.024, 0.021, 0.022, 0.016, 0.014, 0.008, 0.007, 0.009	-165	950	-5.29	下降趋势
^{210}Po	0.021, 0.014, 0.011, 0.012, 0.007, 0.006, 0.005, 0.013, 0.005, 0.006, 0.005, 0.009, 0.005, 0.006, 0.005, 0.006, 0.004, 0.005, 0.005, 0.005	-94	561	-3.99	下降趋势

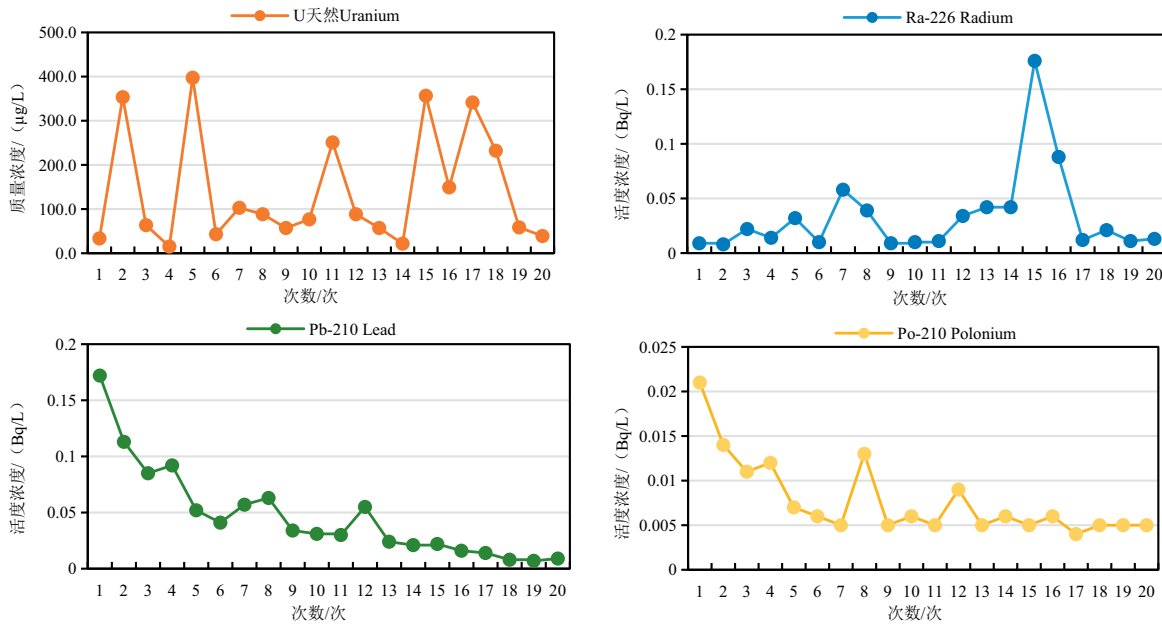


图 1 2020—2024 年渗水中放射性核素监测数据分布图

Fig. 1 Distribution map of radionuclide monitoring data from 2020 to 2024 in seepage water

$$\rho_s = 1 - \frac{6}{n(n^2 - 1)} \times \sum_{j=1}^n (x_j - y_j)^2 \quad (5)$$

式(5)中： ρ_s —Spearman 秩相关系数； n —监测数据的次数； x_j —渗水中某种放射性核素浓度按从小到大排序后所处的秩次； y_j —监测井水中某种放射性核素按照渗水中排序后的所处秩次。当出现相同数据时，在求秩次时以它们的平均值为准。

将计算得到的秩相关系数 ρ_s 的绝对值与 Spearman 秩相关系数统计(表 6)中的临界值

W_p 进行比较。Spearman 等级相关系数的取值范围为： $\{-1, 1\}$ ，绝对值越大，相关性越强。当 $|\rho_s| > W_p$ ，则表明变化趋势有显著意义，若 ρ_s 为正值，则表明在评价时间段内渗水和监测井水的放射性核素的相关性呈上升趋势；若 ρ_s 为负值，则表明在评价时间段内渗水和监测井水的放射性核素的相关性呈下降趋势。当 $|\rho_s| \leq W_p$ ，则表明在评价时间段内渗水和监测井水的放射性核素无显著相关性。

表 6 Spearman 秩相关系数检验的 W_p 临界值

Table 6 W_p critical value of Sperrman correlation coefficient

监测数据次数/ n	临界值 W_p	监测数据次数/ n	临界值 W_p
4	1.000	13	0.484
5	0.900	14	0.464
6	0.829	15	0.443
7	0.714	16	0.429
8	0.643	17	0.414
9	0.600	18	0.401
10	0.564	19	0.391
11	0.536	20	0.380
12	0.503	21	0.370

根据 2020—2024 年期间渗水和监测井水中 $U_{\text{天然}}$ 、 ^{226}Ra 、 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的监测数据，采用 Spearman 秩相关系数评价法计算相应的秩相关系数 ρ_s 见表 7。由表 7 可知，2020—2024 年期间渗水和监测井水中的 $U_{\text{天然}}$ 和 ^{226}Ra 的 Spearman 秩相

关系系数 $\rho_s < W_p(0.380)$ ，说明渗水和监测井水中的 $U_{\text{天然}}$ 、 ^{226}Ra 浓度变化趋势均没有显著相关意义；渗水和监测井水中的 ^{210}Pb 的 Spearman 秩相关系数 ρ_s 为 $0.9395 > W_p(0.380)$ ，说明渗水和监测井水中的 ^{210}Pb 活度浓度的变化趋势有强显著相关

性,呈上升趋势;渗水和监测井水中的²¹⁰Po的 Spearman 秩相关系数 ρ_s 为 $0.4605 > W_p(0.380)$,

说明渗水和监测井水中的²¹⁰Po活度浓度的变化趋势有显著相关性,呈上升趋势。

表 7 2020—2024 年渗水和监测井水的 Spearman 秩相关系数

Table 7 The Sperrman correlation coefficient for seepage water and monitoring wells in 2020—2024

次数	临界值 W_p	Spearman 秩相关系数 ρ_s							
		$U_{\text{天然}}$	结论	²²⁶ Ra	结论	²¹⁰ Pb	结论	²¹⁰ Po	结论
20	0.380	0.314 3	无显著相关	0.074 4	无显著相关	0.939 5	上升	0.460 5	上升

5 结 论

1) 铀尾矿库作为我国铀矿开发过程中的一个重要环节,其对当地周围辐射环境的影响至关重要。通过本次调查掌握了某已退役铀尾矿库的渗水和周边监测井水中的放射性核素 $U_{\text{天然}}$ 、²²⁶Ra、²¹⁰Pb 和 ²¹⁰Po 在 2020—2024 年期间的浓度水平和随时间变化趋势,铀尾矿库渗水与监测井水中的 ²¹⁰Pb、²¹⁰Po 存在正相关性, $U_{\text{天然}}$ 、²²⁶Ra 无显著相关性。

2) 此次调查为监管部门和企业在今后对尾矿库的辐射环境监管提供数据支撑和监管依据,利于采取针对性强地监管对策。建议对该退役尾矿库周边地下水状况开展长期监测,密切关注地下水放射性核素含量水平,发现异常及时采取措施。

致谢:对审稿专家和编辑老师的辛勤付出表示诚挚的感谢。

参考文献

1 李韧杰,潘英杰. 铀矿冶设施退役与环境治理 [M]. 北京:原子能出版社,2001:152-163.
LI Renjie, PAN Yingjie. Retirement of uranium mining and metallurgical facilities and environment-algovernance [M]. Beijing: Atomic Energy Publishing House, 2001: 152-163 (in Chinese).

2 郭超,王忠阳,成建军. 伊犁盆地南缘煤炭开发区水中放射性特征[J]. 世界核地质科学, 2024, 41 (3): 611-622.
GUO Chao, WANG Zhongyang, CHENG Jianjun. Characteristics of water radioactivity in the coal mining area at the southern margin of Yili basin [J]. World Nuclear Geoscience, 2024, 41 (3) : 611-622 (in Chinese).

3 李娜娜. 某退役铀矿山放射性环境现状调查及评

价[J]. 铀矿冶, 2023, 42(1) : 80-90.
LI Nana. Investigation and evaluation of environmental radioactivity for a decommissioned uranium mine [J]. Uranium Mining and Metallurgy, 2023, 42(1) : 80-90 (in Chinese).

4 张帅,哈日巴拉,格日勒满达呼,等. 内蒙古巴彦乌拉铀矿周边井水铀含量水平调查[J]. 辐射防护, 2023, 43(2) : 137-144.
ZHANG Shuai, HA Ribala, GE Rilemandahu, et al. Uranium content survey of well water around Bayanwula uranium mining area in Inner Mongolia radiation [J]. Radiation Protection, 2023, 43 (2) : 137-144 (in Chinese).

5 钟春明,张鑫,黄宇琦. 某退役铀矿山周围土壤样品中 ²¹⁰Pb 和 ²¹⁰Po 的联测结果分析[J]. 中国辐射卫生, 2023, 32(6) : 685-690.
ZHONG Chunming, ZHANG Xin, HUANG Yuqi. Combined determination of ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po in soil samples around a decommissioned uranium mine [J]. Chinese Journal of Radiological Health, 2023, 32 (6) : 685-690 (in Chinese).

6 刘畅,廉冰,王彦,等. 铀尾矿库周边农产品中镭-226及铀浓度调查分析[J]. 中国辐射卫生, 2022, 31(6) : 682-686+693.
LIU Chang, LIAN Bing, WANG Yan, et al. Investigation and analysis of concentrations of radium-226 and uranium in agricultural products around uranium tailings pond [J]. Chinese Journal of Radiological Health, 2022, 31(6) : 682-686+693 (in Chinese).

7 格丽玛,王亚兰,牛洁. 新疆典型地浸铀矿山辐射环境现状调查与分析[J]. 世界核地质科学, 2024, 41(5) : 1049-1056.
GE Lima, WANG Yalan, NIU Jie. Investigation and analysis on current situation of radiation environment of typical in-situ leaching uranium mines in Xinjiang [J]. World Nuclear Geoscience, 2024, 41(5) : 1049-1056 (in Chinese).

- 8 李娜娜. 某铀矿山废石堆多层覆土治理效果实验研究[J]. 世界核地质科学, 2023, 40(4): 1044-1055.
LI Nana. Experimental study on treatment effect of a uranium minewaste rock piles by covering multilayer soils [J]. World Nuclear Geoscience, 2023, 40(4): 1044-1055 (in Chinese).
- 9 宋鑫, 熊芷毓, 李杰, 等. 华南铀尾矿附近土壤和水体中铀的分布与污染评价[J]. 有色金属(冶炼部分), 2024(12): 139-145.
SONG Xin, XIONG Zhiyu, LI Jie, et al. Research on distribution and contamination evaluation of uranium in soil and water near uranium tailings in south China [J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 2024(12): 139-145 (in Chinese).
- 10 魏强林, 陈功新, 曾华, 等. 某铀尾矿库周边地表水中铀和钾分布特征与评价[J]. 有色金属(冶炼部分), 2019(8): 85-89.
WEI Qianglin, CHEN Gongxin, ZENG Hua, et al. Distribution and evaluation of nuclide uranium and potassium in surface water around uranium tailings [J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 2019(8): 85-89 (in Chinese).
- 11 张乾, 杨亚新, 张卫民, 等. 退役铀尾矿库周边环境的放射性水平调查与分析[J]. 科学技术与工程, 2020, 20(10): 4166-4171.
ZHANG Qian, YANG Yaxin, ZHANG Weimin, et al. Investigation and analysis on radioactivity around decommissioned uranium tailings pond [J]. Science Technology and Engineering, 2020, 20(10): 4166-4171 (in Chinese).
- 12 中华人民共和国生态环境部. 辐射环境监测技术规范: HJ 61—2021[S]. 北京: 中国标准出版社, 2022: 6-7.
Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China. Technical specification for radiation environmental monitoring: HJ 61—2021 [S]. Beijing: Standards Press of China, 2022: 6-7 (in Chinese).
- 13 中华人民共和国环境保护部, 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局. 铀矿冶辐射环境监测规定: GB 23726—2009[S]. 北京: 中国标准出版社, 2010: 3-4.
Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China, General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the Peoples Republic of China. Regulation for radiation environmental monitoring in uranium mine and mill: GB 23726—2009 [S]. Beijing: Standards Press of China, 2010: 3-4 (in Chinese).
- 14 国家环境保护局. 水中镭-226的分析方法: GB 11214—1989[S]. 北京: 中国标准出版社, 1990: 1-7.
State Bureau of Environment Protection of China. Analytical determination of radium-226 in water: GB 11214—1989 [S]. Beijing: Standards Press of China, 1990: 1-7 (in Chinese).
- 15 中华人民共和国环境保护部. 水质 65种元素的测定 电感耦合等离子体质谱法: HJ 700—2014[S]. 北京: 中国标准出版社, 2014: 1-24.
Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China. Water quality—Determination of 65 elements—Inductively coupled plasma-mass spectrometry: HJ 700—2014 [S]. Beijing: Standards Press of China, 2014: 1-24 (in Chinese).
- 16 中华人民共和国环境保护部. 水中钋-210的分析方法: HJ 813—2016[S]. 北京: 中国标准出版社, 2014: 1-11.
Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China. Analysis of polonium-210 in water: HJ 813—2016 [S]. Beijing: Standards Press of China, 2016: 1-11 (in Chinese).
- 17 中国核工业总公司. 水中铅-210的分析方法: EJ/T 859—1994[S]. 北京: 中国标准出版社, 1995: 1-6.
China National Nuclear Corporation. Analysis of lead-210 in water: EJ/T 859—1994 [S]. Beijing: Standards Press of China, 1995: 1-6 (in Chinese).
- 18 生态环境部, 国家市场监督管理总局. 铀矿冶辐射防护和辐射环境保护规定: GB23727—2020[S]. 北京: 中国标准出版社, 2020: 4-5.
Ministry of Ecology and Environment, State Administration for Market Regulation. Regulations for radiation protection and radiation environment protection in uranium mining and milling: GB23727—2020 [S]. Beijing: Standards Press of China, 2020: 4-5 (in Chinese).
- 19 国家市场监督管理总局, 国家标准化管理委员会. 生活饮用水卫生标准: GB 5749—2022[S]. 北京: 中国标准出版社, 2022: 8-9.
State Administration for Market Regulation, National Standardization Administration. Standards for drinking water quality: GB 5749—2022 [S]. Beijing: Standards Press of China, 2022: 8-9 (in

- Chinese).
- 20 中国环境天然放射性水平编辑委员会. 中国环境天然放射性水平[M]. 1版. 北京:中国原子能出版社,2015:506-508.
- Editorial Committee of Natural Environmental Radioactivity Level in China. Natural environmental radioactivity level in China[M]. 1st ed. Beijing: Atomic Energy Publishing House, 2015:506-508(in Chinese).
- 21 HAMEDKH, RAO AR. A modified Mann-Kendall trend test for autocorrelated data [J]. Journal of Hydrology, 1998, 204(1/4): 182 - 196.
- 22 李佳艺. 基于水质综合污染指数的 Spearman 秩相关系数法分析晋江流域水质自动监测的适用性[J]. 环境科学导刊, 2022, 41(4): 88-92.
- LI Jiayi. The applicability of automatic water quality monitoring in Jinjiang river basin analyzed by Spearman rank correlation coefficient method based on water quality comprehensive pollution index [J]. Environmental Science Survey, 2022, 41(4): 88-92 (in Chinese).

(上接第 658 页, Continued from page 658)

- Experimental Testing of the National Technical Committee on Land and Resources Standardization. The specification of testing quality management for geological laboratories-Part 2: Preparation of rock and mineral samples; DZ/T 0130.2—2006 [S]. Beijing: Geological Publishing House, 2006(in Chinese).
- 19 全国国土资源标准化技术委员会. 硅酸盐岩石化学分析方法 第 30 部分: 44 个元素量测定 GB/T 14506.30-2010[S]. 北京: 中国标准出版社, 2010.
- National Technical Committee on Land and Resources Standardization. Methods for chemical analysis of silicate rocks-Part 30: Determination of 44 elements GB/T 14506.30-2010 [S]. Beijing: Standard Press of China, 2010(in Chinese).
- 20 刘筱雪, 方帷, 李晓, 等. 氧化还原电位去极化法及铂电极直接测定法对比研究[J]. 分析科学学报, 2017, 33(6): 851-854.
- LIU Xiaoxue, FANG Wei, LI Xiao, et al. Comparative study of the depolarization curve method and platinum electrode direct determination method[J]. Journal of Analytical Science, 2017, 33(6): 851-854(in Chinese).
- 21 袁建, 孙进, 李博文, 等. 超低稀释比熔融制样 X 射线荧光光谱法测定铀矿石中主次量元素[J]. 世界核地质科学, 2024, 41(4): 817-823.
- YUAN Jian, SUN Jin, LI Bowen et al. The determination of major and minor elements in uranium ore by X-ray fluorescence spectrometry with sample preparation of ultra-low dilution fusion[J]. World Nuclear Geoscience, 2024, 41(4): 817-823(in Chinese).