

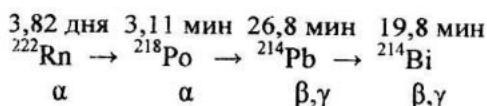
## **СВИНЕЦ-214 И ВИСМУТ-214 В ПРИЗЕМНОЙ АТМОСФЕРЕ СЕВАСТОПОЛЬСКОГО РЕГИОНА**

**Г.Ф. Батраков, Т.В. Чудиновских,  
Т.М. Иванова, А.П. Арбузова,  
Д.А. Кременчуцкий, В.В. Семенов**

Морской гидрофизический институт  
НАН Украины  
г. Севастополь, ул. Капитанская, 2  
*E-mail:* batrg@alpha.mhi.iuf.net

*В статье приводятся результаты измерения концентрации короткоживущих продуктов распада радона-222 ( $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ) в приземной атмосфере севастопольского региона. Представлены статистические характеристики измеренных концентраций. Приведена сезонная изменчивость каждого изотопа и отношения  $^{214}\text{Pb}/^{214}\text{Bi}$ . Рассмотрено влияние метеопараметров на концентрацию  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$ .*

**Введение.** Из нескольких десятков радиоактивных изотопов естественного происхождения, содержащихся в атмосфере и водах океанов и морей, значительный интерес представляют  $^{222}\text{Rn}$  и его короткоживущие продукты распада. Изучению поведения этих изотопов уделяется значительное внимание в ряде регионов земного шара [1 – 3]. Они вносят основной вклад в естественную радиоактивность приземной атмосферы [4]. Цепочка распадов этих изотопов имеет следующий вид:



В этой цепочке лишь  $^{222}\text{Rn}$  находится в газообразном состоянии, остальные радионуклиды связаны с аэрозольными частицами. Наибольший интерес по ряду причин представляют  $^{214}\text{Pb}$  (RaB) и  $^{214}\text{Bi}$  (RaC): это  $\gamma$  – излучающие изотопы и в основном они формируют поле гамма-излучения атмосферы [5];  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  играют определяющую роль в ионизации атмосферы, обусловленной излучением от радиоактивных изотопов [6]; в значительной части опубликованных работ [7] полагают, что  $^{222}\text{Rn}$  находится в атмосфере в равновесии с короткоживущими

продуктами распада и, измеряя концентрацию одного из изотопов, что значительно проще, чем измерение самого  $^{222}\text{Rn}$ , можно рассчитать его концентрацию; в ряде работ было установлено [2, 8], что в некоторых случаях имеют место значительные отклонения от равновесия между  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  и это обстоятельство необходимо учитывать при расчете концентрации  $^{222}\text{Rn}$  по  $^{214}\text{Pb}$  или  $^{214}\text{Bi}$ ; в ряде работ предложено определение происхождения атмосферных аэрозолей по отношению концентраций  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  [8]. Эти изотопы широко используются для исследования различных атмосферных процессов и определения характеристик состояния атмосферы: определение границ внутритропической зоны конвергенции [9], определение концентрации радикала  $\text{HO}^{\cdot}$  в атмосфере [10], оценка состава аэрозолей [9], определение скорости обмена газами между океаном и атмосферой [11] и т.д.

Поведение этих изотопов носит региональный характер, т.е. метеопараметры и другие факторы могут оказывать существенное влияние на абсолютные концентрации, отношение концентраций, взаимодействие с аэрозольными частицами и т.д. Ниже мы представим некоторые результаты исследований поведения этих изотопов в Черноморском регионе.

**Методика измерений.** Существует два подхода при разработке методик определения концентраций  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  в приземной атмосфере. Первый подход реализован в подавляющем большинстве работ. Он заключается в фильтрации воздуха через фильтр, подготовке фильтра с собранными аэрозолями к измерению, измерение отобранной пробы на гамма-спектрометре. Используются различные типы фильтров, размеры фильтров существенно отличаются, скорость прокачки воздуха через фильтр варьируется в широких пределах. Для измерений активности фильтров используются гамма-спектрометры с полупроводниковым или сцинтилляционным детекторами. Второй подход применяется значительно реже. Он заключается в измерении радиоактивного излучения фильтра в процессе фильтрации [1, 12]. Этот подход в

аппаратурном исполнении является более сложным, но он позволяет исследовать относительно высокочастотные колебания концентрации изотопов. В Морском гидрофизическом институте НАН Украины были разработаны и изготовлены два комплекса аппаратуры для измерений  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$ .

Первый комплекс был разработан и изготовлен в соответствии с традиционным подходом [13]. Комплекс состоит из воздухофильтрационной установки и низкофонового гамма – спектрометра. Воздухофильтрационная установка включает в себя электровентилятор и цилиндрический фильтродержатель, на который помещается тонковолокнистый фильтр ФПИ-15. Фильтродержатель изготовлен в виде цилиндра из металлических стержней. Одна торцевая сторона герметично закрыта, вторая состыкована с входом электровентилятора. Фильтродержатель располагается в приёмной камере, которая представляет из себя металлическую герметичную коробку с крышкой размером 1000 x 600 x 500 мм. При открытой крышке производится смена фильтров. В приёмную камеру воздух подаётся по воздухопроводу вход в который расположен на крыше нижнего корпуса МГИ НАНУ, что соответствует примерно 20 м над уровнем моря. Фильтрация воздуха осуществляется в течение 2 часов с 11.00 до 13.00 по местному времени. После снятия фильтра производится его прессование, т.е. ему придаётся форма имеющегося эталонного источника (диаметр 48 мм, высота 10 мм). Процедура снятия и прессования фильтра занимает от 3 до 5 мин. После прессования фильтр поступает на измерение на низкофоновый гамма-спектрометр. Основными элементами гамма-спектрометра являются сцинтиллятор БДЭ-23 и разработанный и изготовленный нами многоканальный амплитудный анализатор на микроконтроллере [14]. Активность  $^{214}\text{Pb}$  определялась по линии 352 КэВ, а  $^{214}\text{Bi}$  – по линии 609 КэВ. Для расчёта концентрации были получены вычислительные формулы, которые приведены в работе [15]. Во всех используемых методиках полагается, что в течение всего времени отбора пробы имеет место по-

стоянство концентрации этих изотопов в атмосфере. Для подтверждения такого предположения необходимо проведение отдельных исследований. Нами было рассмотрено влияние изменчивости концентрации  $^{222}\text{Rn}$  в приземной атмосфере в процессе фильтрации на результаты определения  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  [16].

Второй комплекс аппаратуры был разработан и изготовлен для детектирования гамма-излучения фильтра в процессе фильтрации. В этом комплексе внутрь цилиндрического фильтродержателя с одной торцевой стороны помещается сцинтилляционный датчик для детектирования гамма-излучения фильтра в процессе фильтрации. Информация с датчика поступает на анализатор. Анализатор позволяет выбирать любое время набора гамма-спектра и в автоматическом режиме выводить его в ПЭВМ в таблицу формата EXEL. Для определения эффективности регистрации детектора необходимо знать абсолютные концентрации  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  в атмосферном воздухе, полученный с помощью первого комплекса.

**Результаты измерений.** Измерения концентраций атмосфере г. Севастополя проводились с января 2007 г. по март 2009 г. Всего было проведено 193 измерения. Временная изменчивость концентрации изотопов представлена на рис. 1 гистограммы частот повторяемости значений приведены на рис. 4, в табл. 1 даны статистические характеристики полученных величин.

Как отмечалось выше, в ряде опубликованных работ, посвящённых измерениям концентрации  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  в приземной атмосфере, полагается, что они находятся в равновесии, т.е. концентрации их, выраженные в активностях, равны.

По данным UNSCEAR 2000 [17] которые были получены в результате обобщения большого количества опубликованных работ, концентрации этих изотопов изменяются от 0,02 до 100 Бк/м<sup>3</sup> [19].

Сопоставление полученных результатов с опубликованными данными показало, что концентрации в приземной атмосфере г. Севастополя наиболее

близки к величинам, полученным в Италии и Греции.

Значения величин  $w_{med}$  и  $w_{avr}$  (табл. 1) говорят о том, что распределения концентраций не являются нормальными. Величины коэффициентов эксцесса сви-

детельствуют о том, что распределения имеют правостороннюю асимметрию. Сезонная изменчивость концентрации радионуклидов исследовалась в различных регионах Земли [1,3,18].

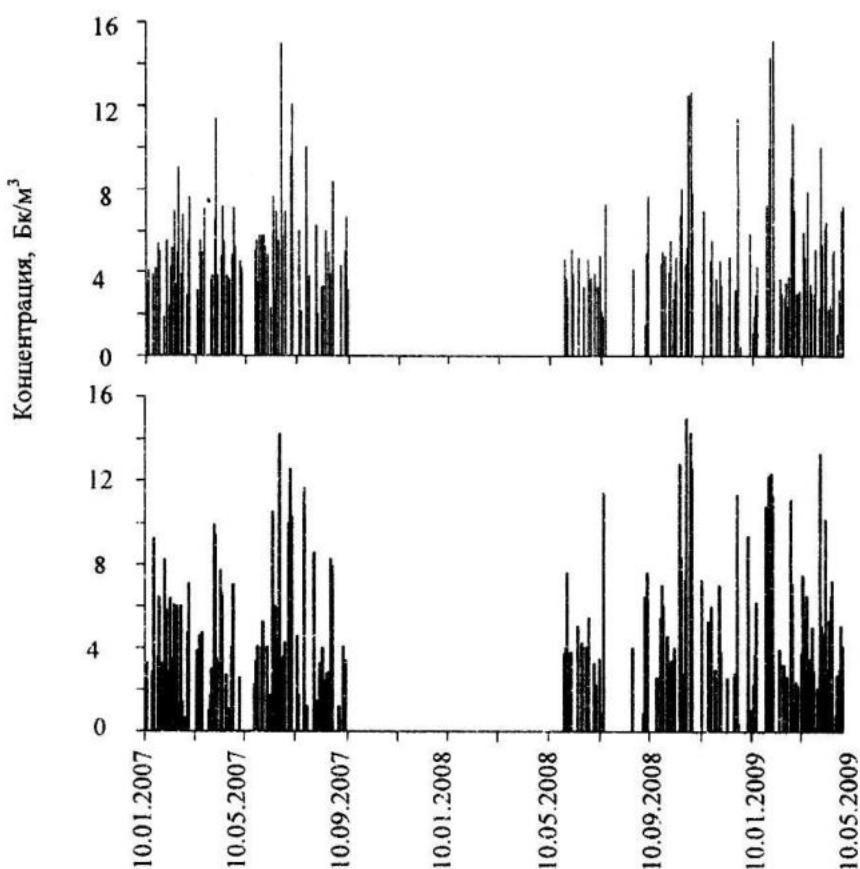


Рис. 1. Концентрации  $^{214}\text{Pb}$  (а) и  $^{214}\text{Bi}$  (б) в пробах аэрозоля, отобранных в Севастополе

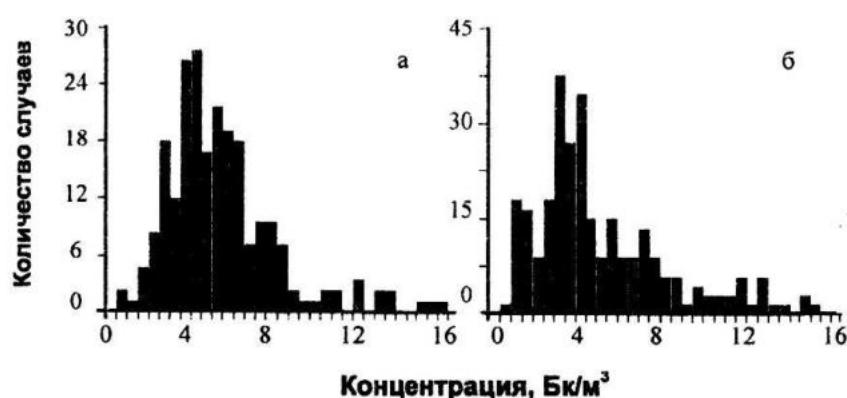


Рис. 2. Диаграмма от повторяемости значений концентрации  $^{214}\text{Pb}$  (а) и  $^{214}\text{Bi}$  (б) в приземной атмосфере г. Севастополя

В значительной части работ сезонная изменчивость не имела чётко выраженной закономерности. В некоторых ре-

гионах [1] наблюдался минимум в летний и максимум концентрации в зимний период. Из данных наблюдений, прово-

димых в г. Севастополе (рис. 3), следует, что в течение года изменения концентрации носят сложный характер – на-

блюдается ряд максимумов и минимумов. Абсолютный максимум концентрации приходится на осенний период.

Таблица 1

Статистические характеристики результатов определения концентрации  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  в приземной атмосфере г. Севастополя

Параметры	$^{214}\text{Pb}$	$^{214}\text{Bi}$	$^{214}\text{Pb} / ^{214}\text{Bi}$
Кол-во проб	193	193	193
$w_{\max}$ , Бк/м <sup>3</sup>	15,10	15,0	4,6
$w_{\min}$ , Бк/м <sup>3</sup>	0,10	0,42	0,04
$w_{\text{avr}}$ , Бк/м <sup>3</sup>	4,9	4,8	1,3
$w_{\text{med}}$ , Бк/м <sup>3</sup>	4,5	3,9	1,1
$\sigma$ , Бк/м <sup>3</sup>	2,67	3,17	0,73
$\mu_a$	1,41	1,16	2,09
$\mu_e$	2,65	0,87	5,27

Многочисленными исследованиями установлено [8], что отношение активностей этих радионуклидов подвержено значительным колебаниям в зависимости от природы воздушной массы. В ряде измерений, проведенных на побережье океанов, обнаружен так называемый аномальный сдвиг равновесия между RaB и RaC, т.е. наблюдается превышение активности  $^{214}\text{Bi}$  по отношению к  $^{214}\text{Pb}$ . Эти результаты указывают на возможность использования отношения

этих изотопов для характеристики воздушных масс и состава аэрозольных частиц. Отношение  $^{214}\text{Pb} / ^{214}\text{Bi} > 1$  характерно для аэрозолей континентального происхождения, а  $^{214}\text{Pb} / ^{214}\text{Bi} < 1$  – морского. Из полученных данных в г. Севастополе следует, что большая часть отношений превышает единицу, т.е. аэрозоли имеют в основном континентальное происхождение (рис. 4).

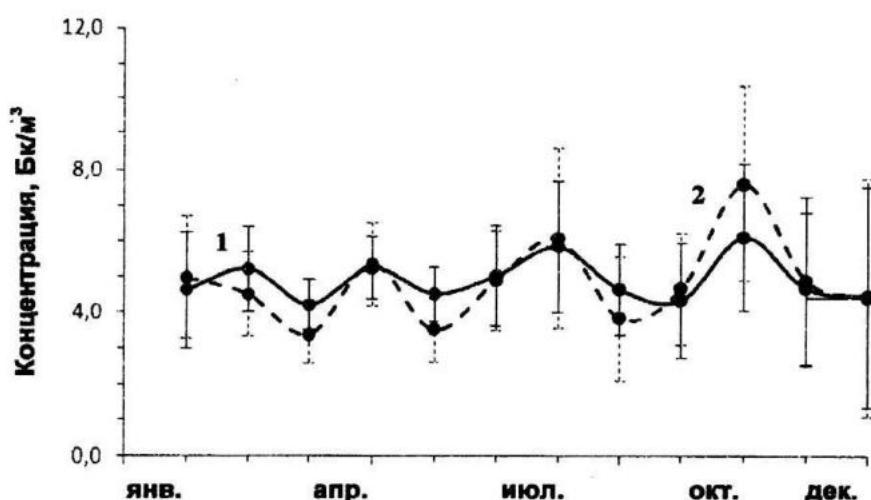


Рис. 3. Внутригодовая изменчивость концентрации  $^{214}\text{Pb}$  (1) и  $^{214}\text{Bi}$  (2) за период наблюдений

Внутригодовая изменчивость среднемесячных значений отношения  $^{214}\text{Pb} / ^{214}\text{Bi}$  (рис. 5) свидетельствует о том, что в зимне-весенний период атмосферные аэрозоли преимущественно

имеют континентальное происхождение, а в летне-зимний – смешанное: как континентальное, так и морское.

Статистические характеристики отношений  $^{214}\text{Pb} / ^{214}\text{Bi}$  представлены в

табл. 1. Корреляционная зависимость между концентрациями  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  была вычислена для всего массива данных.

Коэффициент корреляции при доверительном интервале 0,95 составил 0,8 (рис. 6).

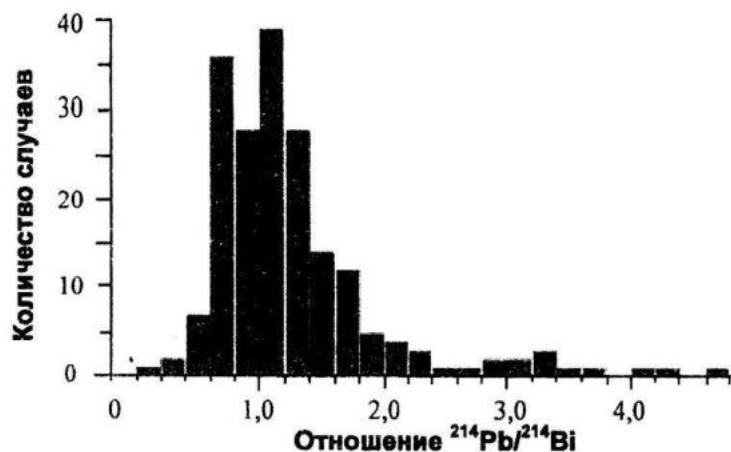


Рис. 4. Диаграмма частот повторяемости значений отношения  $^{214}\text{Pb}/^{214}\text{Bi}$

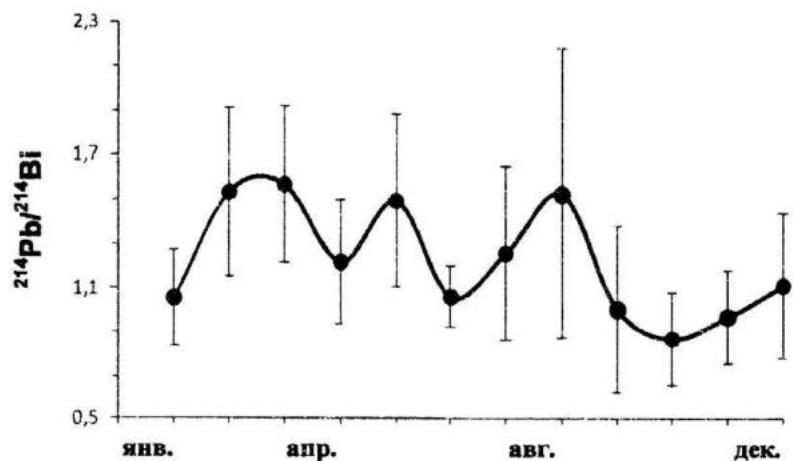


Рис. 5. Сезонная изменчивость отношения  $^{214}\text{Pb}/^{214}\text{Bi}$  в г. Севастополе

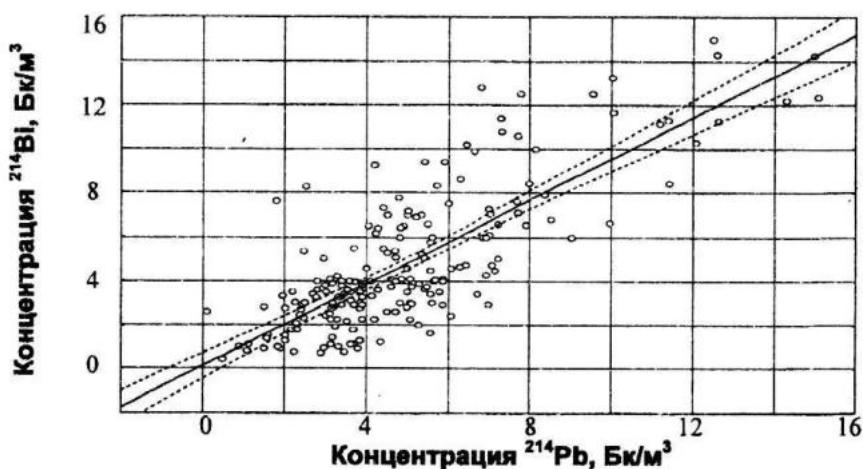


Рис. 6. Зависимость концентрации  $^{214}\text{Bi}$  от концентрации  $^{214}\text{Pb}$

**Влияние метеопараметров на концентрацию  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$ .** Концентрация  $^{222}\text{Rn}$  в приземном слое атмосферы в наибольшей степени зависит от двух параметров – скорости эксхаляции  $^{222}\text{Rn}$  и скорости вертикального турбулентного обмена. Теоретически эксхаляция имеет обратную зависимость от давления. Практически же такой однозначной связи не существует. Объясняется это тем, что высокое и низкое давление связаны с определенным комплексом различных метеорологических элементов. При низком давлении обычно имеет место сильная конвекция, что приводит к уменьшению концентрации  $^{222}\text{Rn}$  и продуктов его распада. Низкое давление часто сопровождается выпадением осадков, а это также уменьшает концентрацию радиоактивных веществ. С другой стороны, низкое давление приводит к увеличению эксхаляции  $^{222}\text{Rn}$ , т.е. к увеличению концентрации продуктов распада радона. С другой стороны имеются работы, в концентрации. При высоком давлении обычно имеет место сухая, спокойная, безветренная и ясная погода, что приводит к высыханию почвы и увеличению возможности эксхаляции. Однако повышение атмосферного давления препятствует этому процессу. Все выше изложенное не позволяет установить однозначной связи между давлением и величиной концентрации  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$ .

Рассмотрим зависимость концентраций  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  от температуры приземного слоя воздуха. С ростом температуры некоторые почвы интенсивно высыхают, при этом в их капиллярах улучшаются условия для эксхаляции  $^{222}\text{Rn}$ , а, следовательно, повышается концентрация продуктов распада в приземной атмосфере. В литературе нет единого мнения о влиянии температуры воздуха на концентрацию  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$ . По нашим данным такой зависимости не наблюдается.

Еще одним фактором, который может оказывать влияние на концентрации рассеиваемых радионуклидов, является относительная влажность. Здесь, так же как и с температурой, результаты не однозначны, но в большинстве работ наблюдалась прямая пропорциональная зависимость между концентрацией и

влажностью. С увеличением влажности уменьшается вертикальный обмен воздушных масс, а это приводит к повышению концентрации  $^{222}\text{Rn}$  у земной поверхности. Наши измерения не показали зависимости концентрации  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  от влажности приземного слоя воздуха.

И, наконец, последний метеопараметр, который может оказывать влияние на концентрацию, это ветер. Скорость ветра тесно связана с турбулентностью. Рост скорости ветра приводит к увеличению вертикального обмена, а, следовательно, к уменьшению содержания  $^{222}\text{Rn}$ . Направление ветра может значительно изменять концентрацию. Воздушные массы, проходя районы с высоким содержанием  $^{222}\text{Rn}$ , обогащаются им и приходят в исследуемый район с высоким содержанием  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$ . Обычно воздушные потоки, которые приходят с моря, обеднены радиоактивными изотопами. Связь концентраций с ветром по нашим данным установить пока не удалось.

**Заключение.** Концентрации  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  в приземной атмосфере севастопольского региона в период 10.01.07 – 10.05.09 г. находились в пределах 0,1–15,1 Бк/м<sup>3</sup> и 0,42 – 15,0 Бк/м<sup>3</sup> соответственно. Эти величины близки полученным в Греции и Италии.

В течение года изменения концентрации носят сложный характер – наблюдается ряд максимумов и минимумов.

Из полученных данных следует, что большая часть отношений  $^{214}\text{Pb}/^{214}\text{Bi} > 1$ , т.е. аэрозоли в приземной атмосфере севастопольского региона имеют в основном континентальное происхождение.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Marcazzan G.M., Caprioli , Valli G., Vecchi R. Temporal variation of  $^{212}\text{Pb}$  concentration in outdoor air of Milan and a comparison with  $^{214}\text{Bi}$ . //Journal of Environmental Radioactivity. – 2003. – V. 65. – P. 77–90.
2. Shapiro M.H., Forbes-Resha J.L.  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  ratios in air at a height of 20 m. // J. Geophys. Res. – 1975. – V. 80. – N. 12. – P. 1605 – 1613.

3. *Rangarajan C. and Eapen C.D.*  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  Activity in the Atmosphere // *J. Geophys. Res.* – 1981. – V. 86, No C4. – P. 3194 – 3198.
4. *Радиация. Дозы, эффекты, риск.* – М.: Мир. – 1988. – 79 с.
5. *Кухтевич В.И., Машкович В.П.* Распространение ионизи-рующих излучений в воздухе. – М.: Атомиздат. – 1979. – 214 с.
6. *Сердюкова А.С., Капитанов Ю.Т.* Изотопы радона и продукты их распада в природе. – М.: Атомиздат. – 1975. – 276 с.
7. *Shapiro M.H., Kosowski R., Jones D.F.* Radon Series Disequilibrium in Southern California Coastal Air // *J. Geophys. Res.* – 1978. – V. 83. – N. C2. – P. 929 – 933.
8. *Синьков С.И.* Поведение короткоживущих продуктов распада радона в приводной атмосфере /Диссертация на соискание учёной степени кандидата химических наук – МГУ им. М.В. Ломоносова. – Москва. – 1990. – 173 с.
9. *Мединец В.И., Тарнопольский А.Г.* Об определении границ внутритропической зоны конвергенции по концентрации радона // *Метеорология и гидрология*. – 1978. – № 2. – С. 37 – 41.
10. *Williams J., Gros V., Bonsang B., Kazan V.* HO<sup>·</sup>– cycle in 1997 and 1998 over the southern Indian Ocean derived from CO, radon, and hydrocarbon measurements made at Amsterdam Island // *Journal Geophys. Res.* – 2001. – V. 106. – No. D12. – P. 12,719 – 12,725.
11. *Broeker W.S., Peng T.-H.* Gas exchange rates between air and sea // *Tellus*. – 1974. – 26, № 1–2. – P. 21–35.
12. *Мединец В.И.* Непрерывная регистрация естественной Радиоактивности в приводном слое атмосферы // Ядерно-физические методы анализа в контроле окружающей среды / Тезисы докладов 1 Всесоюзного совещания. – Ташкент. – 1979. – С. 106.
13. *Батраков Г.Ф., Семенов В.В.* Комплекс аппаратуры для измерений концентраций радиоактивных изотопов в приземной атмосфере // Системы контроля окружающей среды / Средства и информационные технологии. – Севастополь: МГИ НАН Украины, – 2006. – С. 324 – 326.
14. *Батраков Г.Ф., Копытина Н.В., Мязин В.В., Семенов В.В.* Анализатор импульсов на микроконтроллере для измерений концентрации гамма-излучающих изотопов в объектах внешней среды // Системы контроля окружающей среды / Средства, модели и мониторинг. – Севастополь: МГИ НАН Украины, 2007. – С. 292 – 298.
15. *Батраков Г.Ф., Земляной А.Д.* О методике расчёта концентраций RaA (Pb-214), RaB (Bi-214) и ThB (Pb-212) в приземной атмосфере по гамма-спектрам // Системы контроля окружающей среды / Средства, информационные технологии и мониторинг. – Севастополь: МГИ НАН Украины, 2008. – С. 257–263.
16. *Батраков Г.Ф., Земляной А.Д..* О влиянии изменения концентрации радона–222 на результаты мониторинга продуктов его распада в атмосфере // Сб.: Экологическая безопасность прибрежной и шельфовой зон и комплексное использование ре-сурсов шельфа. – Севастополь: ЭКОСИ-Гидрофизика. – 2009. – Вып. 18. – С. 57 – 62.
17. *UNSCEAR, 2000.* United Nations Scientific Committee of the Effects of ionizing Radiation. Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations, New York. – P. 84 – 156.
18. *Ahmed A.A., Mohamed A., Ali A.E., et al.* Seasonal variations of aerosol residence time in the lower atmospheric boundary layer // *J. of Environmental Radioactivity*. – 2004. – V. 77. – P. 275 – 283.
19. *Papastefanou C.* Radioactive aerosols. – Amsterdam: Elsevier. – 2008. – 171 pp.