

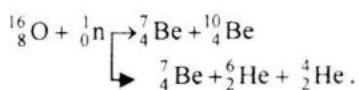
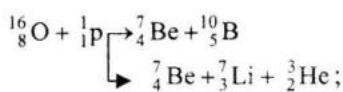
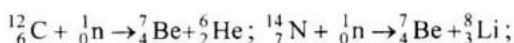
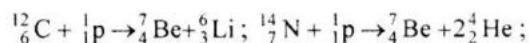
ВРЕМЕННАЯ ИЗМЕНЧИВОСТЬ КОНЦЕНТРАЦИИ ^{7}Be В ПРИЗЕМНОЙ АТМОСФЕРЕ И СУХИХ ВЫПАДЕНИЯХ В СЕВАСТОПОЛЬСКОМ РЕГИОНЕ

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

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

Представлены результаты измерений концентрации ^{7}Be в приземной атмосфере (январь 2007 г. – декабрь 2009 г.) и в сухих выпадениях аэрозолей (октябрь 2000 г.– декабрь 2009 г.). Приведены статистические характеристики полученных рядов наблюдений. Установлены особенности внутригодовой изменчивости концентрации и сухих выпадений.

Бериллий – 7 – это относительно короткоживущий ($T_{1/2} = 53,3$ дня) изотоп, распадающийся в результате К-захвата в стабильный ^{7}Li с максимальной энергией 477 КэВ. Природный радионуклид космогенного происхождения ^{7}Be образуется в результате взаимодействия легких атмосферных ядер, таких как углерод ($Z=6$), азот ($Z=7$) и кислород ($Z=8$), с протонами и нейtronами – основными компонентами космических лучей по следующим реакциям:



Скорость образования ^{7}Be максимальна в верхних слоях стратосферы, здесь образуется приблизительно 70 % радиоизотопа, но некоторые высоконенергетические частицы из потока космических лучей могут достигать и ниж-

них слоев атмосферы. Скорость образования зависит не только от высоты, но и от широты и изменяется в соответствии с одиннадцатилетними циклами солнечной активности, которые модулируют поток космических лучей через магнитное поле Земли. Запас естественного радиоизотопа ^{7}Be в атмосфере оценивается величиной $1,8 \cdot 10^{17}$ Бк [1]. Оценки средней глобальной скорости образования космогенного радионуклида ^{7}Be дают величину порядка 810 атомов/ $\text{м}^2\cdot\text{с}$, а средняя концентрация в тропосфере составляет $12,5$ мБк/ м^3 .

Образуясь в стратосфере и верхних слоях тропосферы, атомарный ^{7}Be окисляется и быстро связывается с аэрозолями субмикронного размера. В такой форме он достаточно быстро удаляется из атмосферы. На земную поверхность ^{7}Be попадает в виде «мокрых» и «сухих» выпадений [2]. Роль сухих выпадений обычно существенно ниже для широт с умеренной влажностью [3].

^{7}Be представляет собой весьма удобный трассер для исследования динамических процессов в атмосфере и океане: достаточно полно изучены основные источники поступления ^{7}Be в воды Мирового океана [4]; ^{7}Be имеет относительно небольшой период полураспада, что определяет его использование при изучении мезомасштабных процессов; после образования быстро адсорбируется на атмосферных аэрозолях [5]; существует градиент концентрации между нижней стратосферой и приземной атмосферой, а также между поверхностными и глубинными водами [4, 6]; разработаны методики определения концентрации ^{7}Be в воздухе и морской воде [1, 4 - 6]; существуют большие массивы надежных данных по концентрации ^{7}Be в приземной атмосфере, которые могут быть использованы для проверки различных гипотез [7].

Наиболее широкое применение в качестве трассера ^{7}Be получил при исследовании атмосферных процессов [9–13]. Изучению поведения ^{7}Be в океане уделяется меньше внимания, хотя возможности использования этого изотопа в качестве трассера для изучения океанических процессов достаточно широки. Данные о концентрации ^{7}Be в гидросфере находят

следующие применения: изучения физических процессов в морях и океанах [6]; определения субдукции и истории перемешивания слоев водных масс [14]; определение возраста донных отложений [15] и т.д.

Большие различия в объемах исследований в атмосфере и океане обусловлены двумя причинами. Во-первых, измерять концентрацию ^{7}Be в морской воде значительно сложнее, чем в атмосфере. Во-вторых, построение математических моделей для ^{7}Be в океане, из-за очень ограниченного объема данных наблюдений, связано с определенными трудностями.

Целью работы является разработка математической модели, позволяющей рассчитывать и прогнозировать поля концентрации ^{7}Be в Черном море. Для этого необходимо в качестве граничного условия задать поток на поверхность моря. Как известно, поступление ^{7}Be на поверхность Земли происходит в результате двух процессов: сухого оседания и вымывания осадками. Следует отметить, что соотношение сухих и мокрых выпадений зависит от региона. В Черноморском регионе данных натурных наблюдений по сухим и мокрым выпадениям ^{7}Be не имеется, и нет моделей, позволяющих рассчитывать его поток на акваторию моря. Поэтому несколько лет назад были начаты исследования содержания ^{7}Be в приземной атмосфере г. Севастополя и плотности выпадения на подстилающую поверхность, на основе которых можно задать граничные условия для математической модели.

Средства и методы измерений. Для определения концентрации ^{7}Be в приземной атмосфере используется комплекс аппаратуры состоящий из воздухофильтрационной установки в которую помещается тонковолокнистый фильтр ФПП-15 и низкофонового гамма - спектрометра. Активность ^{7}Be определяется по линии 477 КэВ. Суммарная погрешность определения концентрации ^{7}Be в каждом измерении не превышает 20 %.

Пробы сухих атмосферных выпадений отбираются с применением металлической кюветы с размерами $70 \times 70 \times 15$ см, на дно которой помещался

лист фильтровальной бумаги, пропитанной техническим маслом. Пробоотборник располагается на высоте около 25 м над уровнем моря. Каждая проба отбирается в течение примерно 3–7 суток при условии отсутствия в этот период атмосферных осадков. По окончании периода отбора слой фильтровальной бумаги извлекается из кюветы, озоляется, зола упаковывается и поступает на измерение. Активность ^{7}Be определяется по линии 477 КэВ. Суммарная погрешность определения концентрации ^{7}Be в каждом измерении не превышает 20 %.

Концентрация ^{7}Be в приземной атмосфере. Измерения концентрации ^{7}Be в приземной атмосфере г. Севастополя проводились с января 2007 г. по декабрь 2009 г. Всего было проведено 192 измерения. Временная изменчивость концентрации радионуклида представлена на рис. 1. Аномально высокие значения концентрации ^{7}Be связаны со случаями вторжения стратосферных воздушных масс, идентифицируемых по методике, отписанной в [16].

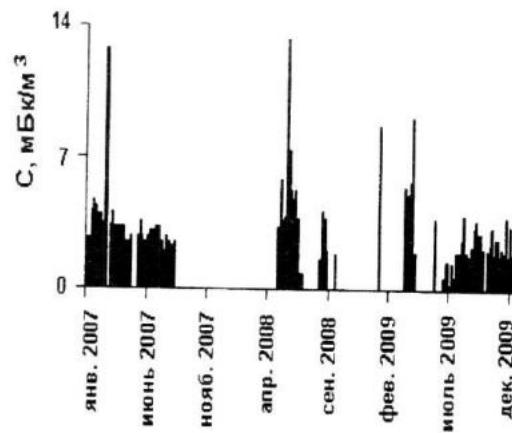


Рис. 1. Измеренные значения концентрации ^{7}Be в пробах аэрозоля, отобранных в Севастополе

Для дальнейшего анализа случаи вторжения стратосферных воздушных масс не учитывались т.к они вносят некоторую неточность в общую картину.

В табл. 1 приведены основные статистические характеристики исходной совокупности измерений концентрации ^{7}Be : количество обработанных аэрозольных проб, экстремальные (максимальное w_{max} и минимальное w_{min}) значения кон-

центрации радионуклидов, среднее значение w_{avr} , медиана w_{med} , мода w_m среднеквадратичное отклонение (дисперсия) σ , коэффициенты асимметрии μ_a и эксцесса μ_e .

Как видно из рис. 2 и табл. 1, распределение величины концентрации ^{7}Be – одновершинное, но немного отличается от нормального. Значения w_{avr} и w_{med} близки, но не равны между собой, что говорит о том, что наше распределение не является нормальным (если w_{avr} и w_{med} равны между собой, то распределение является нормальным). Положительный

коэффициент асимметрии указывает на отклонение распределения, представленного на рис. 2, в сторону больших значений (что проявляется как более длинный хвост в области больших значений концентрации ^{7}Be). Положительное значение коэффициента эксцесса μ_e говорит о том, что распределение является более остроконечным, чем нормальное. Коэффициент вариации ($w = 100 * \sigma / w_{avr} = 53\%$) указывает на значительную изменчивость концентрации ^{7}Be за время наблюдения.

Таблица 1

Статистические параметры исходной совокупности измерений концентрации ^{7}Be в г. Севастополе

Кол-во набл.	w_{max} , $\text{Бк}/\text{м}^3$	w_{min} , $\text{Бк}/\text{м}^3$	w_{avr} , $\text{Бк}/\text{м}^3$	w_{med} , $\text{Бк}/\text{м}^3$	w_m , $\text{Бк}/\text{м}^3$	σ , $\text{Бк}/\text{м}^3$	μ_a	μ_e
186	7,40	0,30	2,76	2,65	2,5	1,45	0,69	1,07

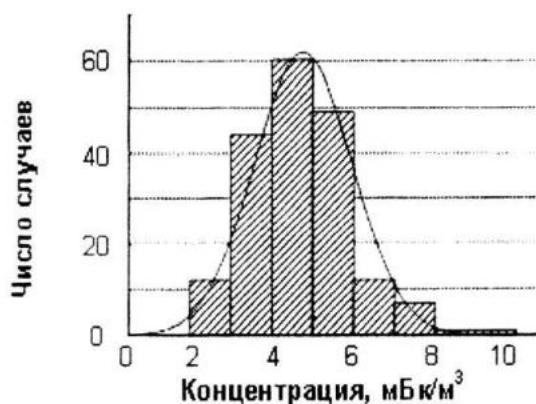


Рис. 2. Функция распределения концентрации ^{7}Be в приземном слое воздуха

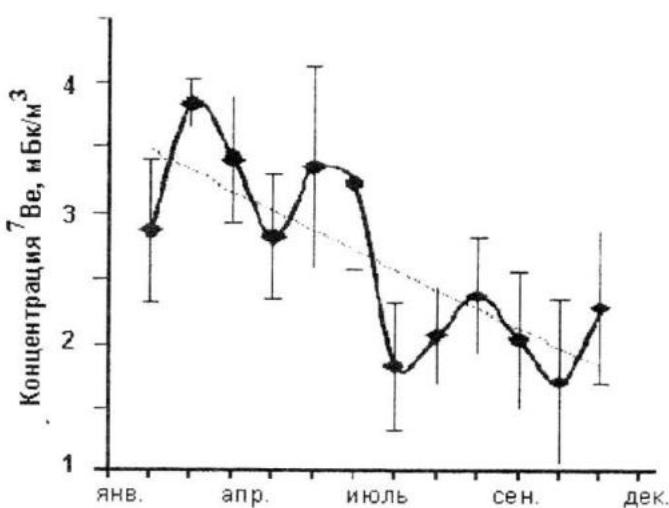
Концентрация ^{7}Be в индивидуальных пробах изменялась от 0,54 до 12,74 $\text{мБк}/\text{м}^3$. Среднее значение концентрации радионуклида равно $2,8 \pm 0,19 \text{ мБк}/\text{м}^3$. На рис. 3 представлен внутригодовой ход концентрации ^{7}Be , полученный как результат усреднения всех полученных значений концентрации радионуклида в течении месяца за все время наблюдений.

Как видно из представленных данных, максимальные значения концентрации наблюдаются в период конец зимы – начало весны, что обусловлено интенсификацией процессов обмена между

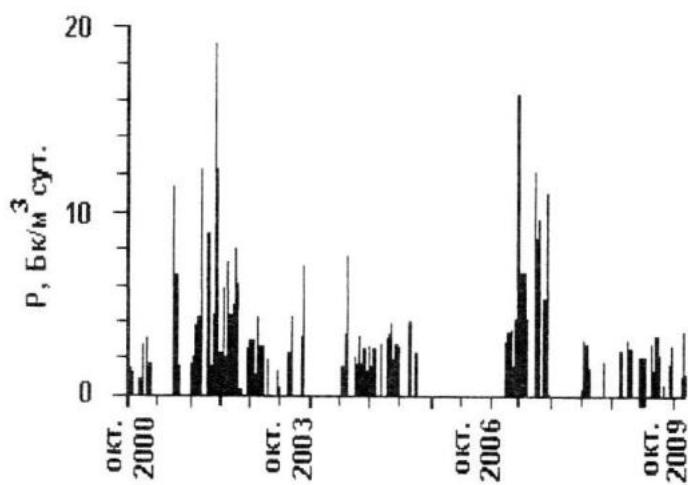
стратосферой и тропосферой – явление, характерное для данных широт в это время года. Минимальные значения концентрации наблюдались в осенний период. Максимальные и минимальные значения различаются более, чем в 20 раз.

Плотность выпадения ^{7}Be . Измерения ^{7}Be в пробах сухих выпадений проводились с октября 2000 г. по декабрь 2009 г. Всего за период исследований было отобрано около 370 проб. На рис. 4 и 5 приведены временная изменчивость содержания ^{7}Be в пробах атмосферных аэрозолей и среднемесячные значения потока ^{7}Be в прибрежной зоне Черного для периода 2000 – 2009 гг.

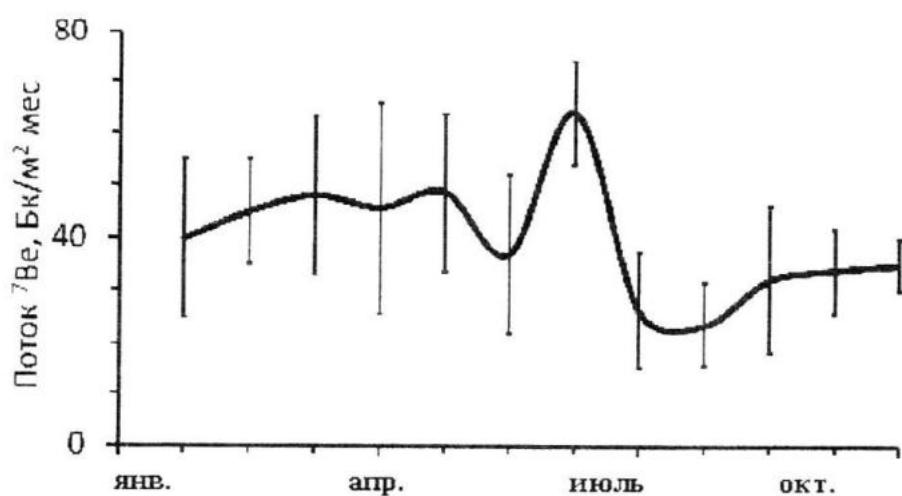
Для выявления причин резкого увеличения потоков ^{7}Be в приземном воздухе в отдельные периоды, были проанализированы синоптические условия над Европой. Для анализа использовался немецкий архив синоптических совмещенных карт высотной топографии (уровень 500 гПа) и приземного барического поля над Европой. Было проанализировано 75 карт, связанных с днями, когда радионуклид вообще не обнаруживался и 48 карт, связанных с периодами высокой активности радионуклида в атмосферных выпадениях.



Р и с. 3. Внутригодовая изменчивость среднемесячной концентрации ^{7}Be в приземной атмосфере г. Севастополя



Р и с. 4. Временная изменчивость плотности сухих выпадений ^{7}Be в Севастопольском регионе



Р и с. 5. Среднемесячные значения потока ^{7}Be в прибрежной зоне Черного моря для периода 2000 – 2009 гг.

Анализ карт выявил резкие отличия в структуре распределения высотного и приземного барического поля над Европой в периоды высоких концентраций радионуклида ^{7}Be в приземном воздухе г. Севастополя и в периоды его очень низких концентраций. В те дни, когда уровни активности нуклида в атмосферных выпадениях были ниже предела обнаружения гамма-спектрометра, распределение как высотного поля давления, так и приземного над Европой носило ярко выраженную зональную направленность с преобладанием длинных волн малой амплитуды. Такой характер распределения давления над Северным полушарием, как известно, приводит к меньшей вероятности разрывов в тропопаузе и препятствует проникновению стратосферных воздушных масс, насыщенных ^{7}Be , в нижние слои тропосфера.

В те периоды, когда отмечалось резкое увеличение активности ^{7}Be в пробах атмосферных выпадений, над Европой наблюдалось развитие ярко выраженной меридиональности (в барическом поле наблюдаются короткие волны большой амплитуды). Как правило, это способствовало проникновению холодных масс воздуха в тылу хорошо развитых высотных ложбин далеко на юг, в том числе на все Черное море, достигая восточного Средиземноморья. В результате наблюдалось формирование высотных цикло-

нов в регионе. Именно такая синоптическая ситуация способствовала большей вероятности проникновения ^{7}Be из стрatosферного резервуара в приземные слои воздуха, что, по-видимому, и приводило в отдельные дни к резким всплескам (в десятки раз) активности радионуклида в аэрозолях приземного воздуха в г. Севастополе.

Оценить сезонную изменчивость полного потока ^{7}Be по данным наблюдений не представляется возможным, поскольку проводились измерения только сухих выпадений атмосферных аэрозолей.

Для оценки сезонного хода полных выпадений ^{7}Be в Севастопольском регионе были использованы зависимости потока радионуклида от количества атмосферных осадков, полученные авторами работы [18, 19] (рис.6). Зависимость потока ^{7}Be от количества осадков аппроксимируется уравнением:

$$P = 0.406f^2 + 6.74f + 34.41$$

где P – плотность "влажного" выпадения ^{7}Be из атмосферы; f – количество осадков. Зависимость имеет нелинейный характер, поскольку эффективность вымывания атмосферных аэрозолей зависит в первую очередь от интенсивности осадков [18, 19].

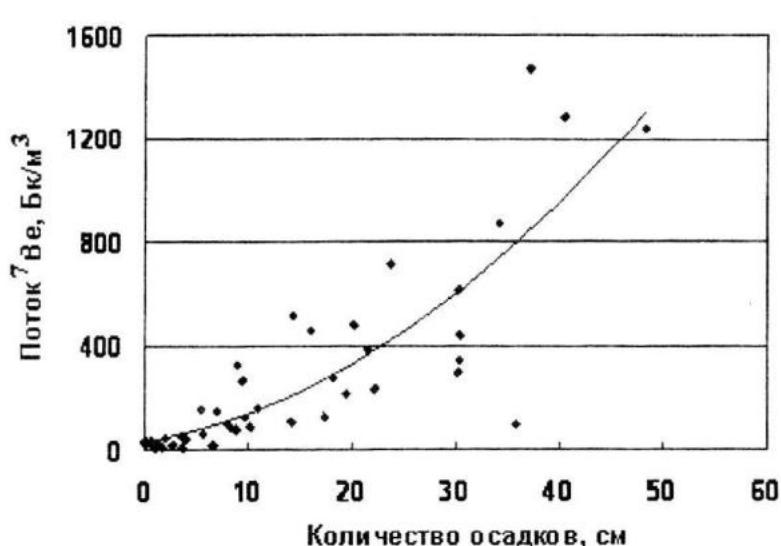


Рис. 6. Зависимость "влажного" выпадения ^{7}Be от количества осадков

Для расчета потока ^{7}Be с атмосферными осадками использовали архивы данных метеонаблюдений, проводимых Севастопольским гидрометеобюро (2000 – 2003 гг.) и метеостанцией, расположенной в районе аэропорта Бельбек (20 км от г. Севастополя, 2005 – 2009 гг.). Результаты проведенных оценок приведены на рис. 7. Полный поток ^{7}Be на подстилающую поверхность за месяц рассчитывали как сумму сухих выпадений, осредненных для каждого месяца за период наблюдений (рис. 5), и поступления с осадками.

Несмотря на то, что концентрация ^{7}Be в приземном слое воздуха имеет хорошо выраженную сезонную изменчивость (рис. 3) с максимумом в зимне-весенний период, внутригодовая ход как сухих, так и влажных выпадений суще-

ственно отличается. Если в распределении сухих выпадений наблюдается небольшой максимум, приходящийся на конец зимы – начало весны (рис. 5), то полный поток бериллия имеет максимальные значения в осенний период (рис. 7). Обусловлено это тем, что основное количество ^{7}Be поступает на земную поверхность в виде “влажных” выпадений. В зависимости от сезона на долю сухих выпадений ^{7}Be приходится от 18 до 48 % от полного потока. Поскольку максимальное количество осадков в последнее десятилетие по данным метеонаблюдений в Севастопольском регионе приходится на осенний сезон, то именно в этот период отмечается и максимальный поток ^{7}Be из атмосферы (рис. 8).

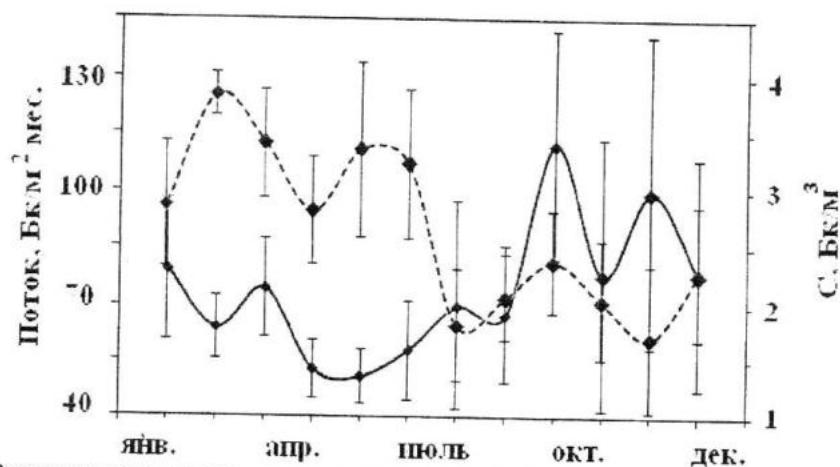


Рис. 7. Внутригодовая изменчивость среднемесячной концентрации (пунктирная линия) и полного потока (сплошная линия) ^{7}Be

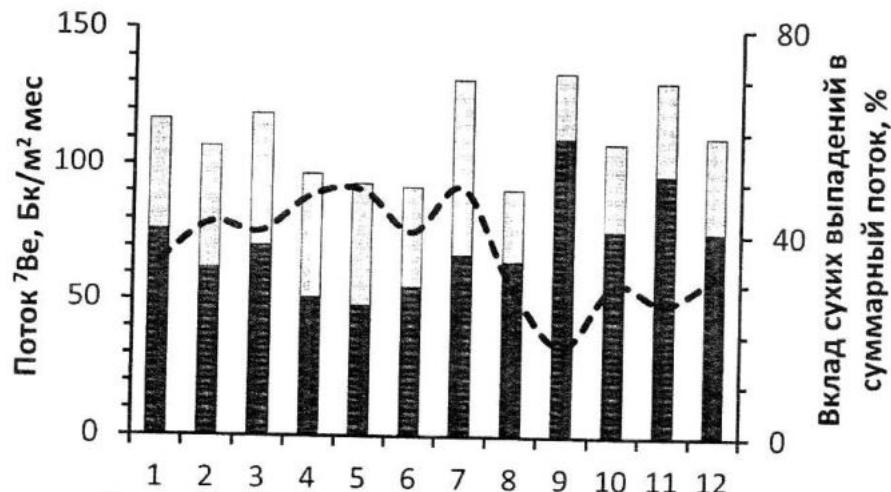


Рис. 8. Вклад сухих (1) и влажных (2) выпадений в полный поток ^{7}Be в Севастопольском регионе; относительный вклад сухих выпадений (3)

Связь потока ${}^7\text{Be}$ с метеопараметрами. В литературе нет единого мнения о влиянии отдельных метеопараметров на величину потока ${}^7\text{Be}$ из атмосферы.

На основе данных, полученных в ходе наблюдений в Севастопольском регионе, и метеонаблюдений нами была предпринята попытка оценить влияние атмосферного давления, температуры и влажности приземного слоя воздуха и количества осадков на количество ${}^7\text{Be}$ в сухих выпадениях. Анализ корреляци-

онных зависимостей показал, что температура (рис. 9 б) и влажность приземной атмосферы не влияют на поток сухих выпадений ${}^7\text{Be}$. При доверительной вероятности 0,95 наблюдается слабая (на уровне -0,18) корреляционная зависимость между потоком ${}^7\text{Be}$ и давлением в приземном слое атмосферы (рис. 9 а), которая аппроксимируется уравнением:

$$y = -0,129 \cdot x + 101,0$$

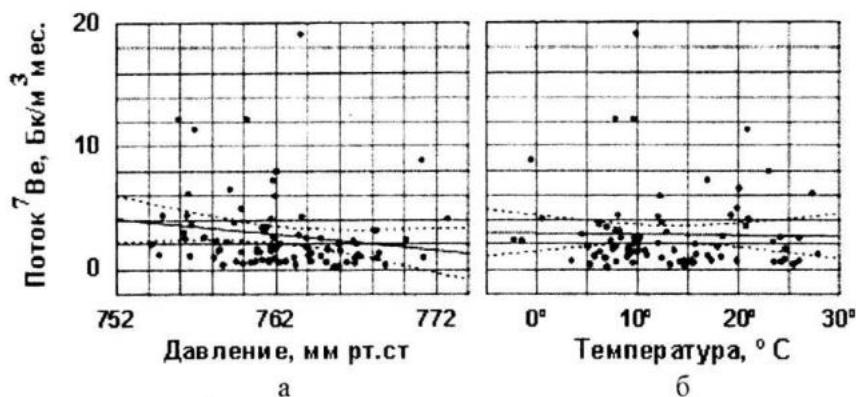


Рис. 9. Зависимость потока ${}^7\text{Be}$ от атмосферного давления (а) и температуры (б) приземного слоя воздуха в г. Севастополе

На поток сухих выпадений радиоактивного бериллия незначительно влияет количество осадков (рис. 10). Корреляционная зависимость между суммарными за месяц потоком ${}^7\text{Be}$ и количеством осадков незначительна – на уровне -0,13 при доверительной вероятности 0,95.

Зависимость влажных выпадений ${}^7\text{Be}$ от количества осадков рассматривалась выше (рис. 6). Следует заметить, что большинство исследователей считают, что эта зависимость имеет линейный характер [20]. На рис. 11 приведено распределение полного потока ${}^7\text{Be}$ в зависимости от месячного количества осадков, построенное по результатам, приведенным в работе [21]. Уравнение аппроксимации может быть записано в виде:

$$y = 12,223 \cdot f + 39,636,$$

где f – суммарное за месяц количество осадков, мм.

Хотя ${}^7\text{Be}$ преимущественно образуется в стратосфере, Даткевич и Хусейн [21] показали, что в приземном слое воз-

духа только 25 % ${}^7\text{Be}$ имеют стратосферное происхождение. Обусловлено это тем, что время нахождения аэрозолей в стратосфере составляет около года, тогда как период полураспада ${}^7\text{Be}$ равен 53 дням. Стратосферный источник, однако, может становиться более значительным весной, когда среднеширотное сжатие тропопаузы приводит к увеличению обмена между стратосферой и тропосферой, а также во время грозы, когда происходит разрыв тропопаузы [8]. Тропосферное продуцирование и вымывание ${}^7\text{Be}$ приводит к достаточно однородному его распределению в приземном слое воздуха.

Концентрации изотопа изменяются от $1,85 \cdot 10^{-3}$ Бк/м³ в арктических и экваториальных областях с высокой стабильностью атмосферы до $5,55 \cdot 10^{-3}$ Бк/м³ в областях средних широт в весенний период [8].

Космогенные радионуклиды, и ${}^7\text{Be}$ в том числе, быстро ассоциируются с аэрозолями, и их поступление на земную поверхность определяется количеством осадков и сухим выпадением частиц.

Доля ^{7}Be , поступающего с сухими выпадениями, в суммарном потоке радионуклида колеблется в довольно широких пределах.

Анализ литературных источников показал, что от 40 до 45 % суммарного годового потока ^{7}Be приходится на три

весенних месяца. Такой сезонный ход выпадений обусловлен не только более интенсивным обменом между стратосферой и тропосферой в этот период года, но и тем, что в средних широтах на этот сезон приходится от 30 до 35 % годового количества осадков.

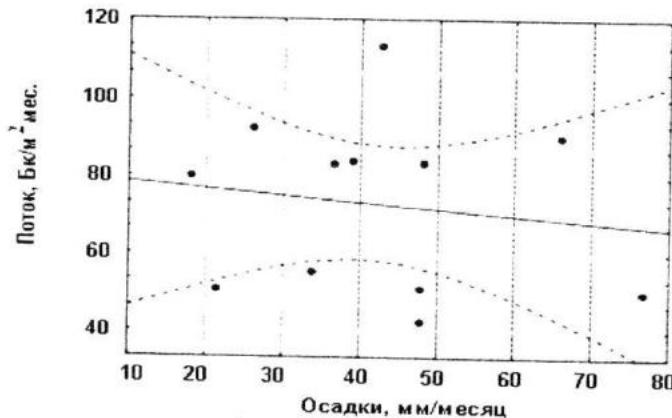


Рис. 10. Зависимость сухих выпадений ^{7}Be от количества осадков в Севастопольском регионе

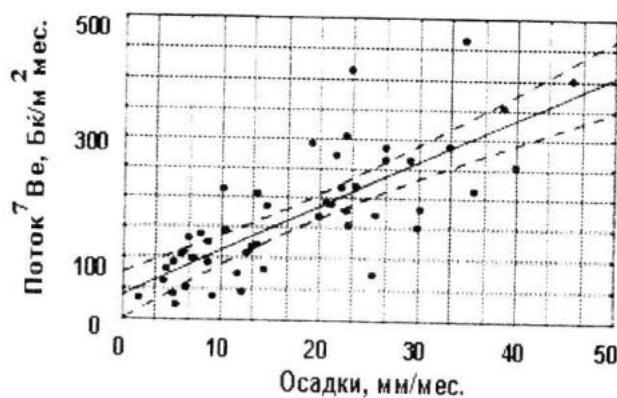


Рис. 11. Зависимость полного потока ^{7}Be от среднемесячного количества осадков (штрихованной линией отмечен доверительный интервал на уровне 0,95)

В Севастопольском регионе максимум полного потока смешен на осенний сезон.

Заключение. Данные анализа атмосферной циркуляции в периоды исследования активности атмосферных выпадений в г. Севастополе, подтверждают научные выводы других исследователей, отмечающих связь резких всплесков приземной радиоактивности с формированием и прохождением через район узкопрофильных глубоких ложбин.

Таким образом, с большой долей уверенности можно говорить о стратосферном происхождении ^{7}Be в периоды его высокой активности в пробах атмосферных выпадений г. Севастополя. Можно предположить, что как минимум

во всем Черноморском регионе в эти периоды также отмечалось увеличение концентрации радионуклидов в приземном воздухе, что могло сказаться на увеличении общего гамма-фона у Земли.

Плотность сухих выпадений ^{7}Be в приземном слое атмосферы изменяется в широком диапазоне – от 0 до 19 Бк/м² сутки. Наблюдается корреляционная зависимость между потоком ^{7}Be и давлением в приземном слое атмосферы. Между суммарным поступлением ^{7}Be на поверхность и количеством осадков наблюдается зависимость, близкая к линейной. Прохождение высоких циклонов приводит к резкому увеличению потока ^{7}Be на земную поверхность.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Froehlich K.. Environmental Radionuclides: Tracers and Timers of Terrestrial Processes / Radioactivity in the Environment. – Vol. 16. – Amsterdam: Elsevier. – 2010. – 443 pp.
2. Bondietti E.A., Hoffmann F.O., Larsen I.L. Air-to-vegetation Transfer Rates of Natural Submicron Aerosols // J. Environ. Radioact. – 1984. – V. 1. – P. 5 – 27.
3. Юнгэ X. Химический состав и радиоактивность атмосферы. – М.: изд-во «Мир». – 1965. – 424 с.
4. Young J.A., Silker W.B. Aerosol deposition velocities on the Pacific and Atlantic oceans calculated from Be measurements // Earth and Planetary Science Letters. – 1980. – V.50. – P. 92 – 104.
5. Papastefanou C. Radioactive aerosols / Radioactivity in the Environment. – Vol. 12. – Amsterdam: Elsevier. – 2008. – 187 pp.
6. Lan D.. An overview of five decades of studies of cosmic ray produced nuclides in oceans // The Science of the Total Environment. – 1999. – V. 238. – P. 3 – 13.
7. Brost R.A., Feichter J., Heimann M. Three-dimensional simulation of ^{7}Be in a global climate model // Journal of Geophysical Research. – 1991. – V. 96 – No. D12. – P. 22423 – 22445.
8. Baskaran M., Coleman C.H., Santschi P.H. Atmospheric depositional fluxes of ^{7}Be and ^{210}Pb at Galveston and College Station Texas // Journal of Geophysical Research. – 1993. – V. 98 – No. D11. – P. 20555 – 20571.
9. Bleichrodt J.F. Mean tropospheric residence time of cosmic-ray-produced beryllium-7 at north temperate latitudes // Journal of Geophysical Research. – 1978. – V. 83 – No. C6. – P. 3058 – 3062.
10. Rangarajan C., Eapen C.D. The use of natural radioactive tracers in a study of atmospheric residence times // Tellus. – 1990. – V. 42B. – P. 142 – 147.
11. Raisbeck G.M., Yiou F., Fruneau M., Loiseaux J.M., Lieuvin M., Ravel J.C. Cosmogenic ^{10}Be / ^{7}Be as a probe of atmospheric transport processes // Geophysical Research Letters. – 1981. – V. 8 – No. 9. – P. 1015 – 1018.
12. Tanaka N., Turekian K.K. Determination of the dry deposition flux of SO_2 using cosmogenic ^{35}S and ^{7}Be measurements // Journal of Geophysical Research. – 1995. – Vol. 100 – No. D2. – P. 2841 – 2848.
13. Gustafson P.F., Kerrigan M.A., Brar S.S. Comparison of beryllium-7 and caesium-137 radioactivity in ground-level air // Nature. – 1961. – V. 191. – P. 454 – 456.
14. Kadko D. and Olson D. Beryllium-7 as a tracer of surface water subduction and mixed-layer history // Deep-Sea Research. – 1996. – Vol. 43 – No. 2. – P. 89 – 116.
15. Carroll J. and Lerche I. Sedimentary Processes: Quantification Using Radionuclides / Radioactivity in the Environment, Vol 5. – Amsterdam: Elsevier. – 2003. – 272 pp.
16. Шакина Н.П., Кузнецова И.Н., Иванова А.Р. Анализ случаев атмосферных вторжений, сопровождаемых повышением радиоактивности в приземном воздухе // Метеорология и гидрология. – 2000. – №2. – С. 53 – 59.
17. Duenas C. and Fernandez M.C.. Atmospheric deposition of ^{7}Be at a coastal Mediterranean station // Journal of Geophysical Research. – 2002. – Vol. 106 – No. D24. – P. 34,059 – 34,065.
18. Baskaran M. A search for the seasonal variability on the depositional fluxes of ^{7}Be and ^{210}Pb // Journal of Geophysical Research. – 2000. – Vol. 100 – No. D2. – P. 2833 – 2840.
19. Che Doering, Raiz Akber. Beryllium-7 in near-surface air and deposition at Brisbane, Australia // J. of Environmental Radioactivity. – 2008. – Vol. 99. – P. 461 – 467.
20. Olsen C.R., Larsen I.L., Lowry P.D. Atmospheric Fluxes and Marsh-Soil Inventories of ^{7}Be and ^{210}Pb // J. of Geophys. Res. – 1985. – V. 90, No D6. – P. 10487 – 10495
21. Dutkiewicz V.A., Husain L. Stratospheric and tropospheric components of ^{7}Be in surface air // J. of Geophys. Res. – 1985. – V. 90 – P. 5783 – 578.