

О МЕТОДИКЕ РАСЧЕТА КОНЦЕНТРАЦИЙ RaA (Pb-214), RaB (Bi-214) и ТвB (Pb-212) В ПРИЗЕМНОЙ АТМОСФЕРЕ ПО ГАММА-СПЕКТРАМ

*Г.Ф. Батраков, А.Д. Земляной**

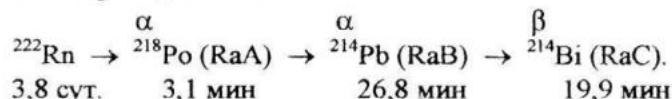
Морской гидрофизический институт
НАН Украины

г. Севастополь, ул. Капитанская, 2
E-mail: batrg@alpha.mhi.iuf.net

* Одесский национальный университет
им. И.И. Мечникова
г. Одесса, ул. Дворянская, 2
E-mail: zemela@te.net.ua

Предложены методы расчета концентраций радиоактивных изотопов Pb-214, Bi-214, Pb-212 в атмосфере по измеренным гамма-спектрам аэрозолей, собранных на фильтр. Расчет концентраций основан на решении уравнений, описывающих процесс накопления этих изотопов на фильтре при отборе пробы и распада этих изотопов при измерениях на гамма-спектрометре. Приведены расчетные формулы для различных временных интервалов между окончанием фильтрации пробы и началом измерений на гамма-спектрометре.

Введение. Имеется очень большое количество работ, посвященных измерениям концентрации различных радиоактивных изотопов в приземной и приводной атмосферах. В большей части этих работ представлены результаты измерений либо одного какого-то изотопа (Be-7, Rn-222 и т.д.), либо пары изотопов (Rn-222 и Pb-210, Be-7 и Pb-210, Be-7 и Be-10 и т.д.). В Севастопольском регионе нами проводятся из-



Процесс накопления ${}^{218}\text{Po}$ (RaA), ${}^{214}\text{Pb}$ (RaB) и ${}^{214}\text{Bi}$ (RaC) на фильтре при отборе пробы воздуха описывается следующими выражениями:

$$\frac{dN_a}{dt} = Vn_a - \lambda_a N_a, \quad (1)$$

$$\frac{dN_b}{dt} = Vn_b - \lambda_b N_b + \lambda_a N_a, \quad (2)$$

мерения четырех (Pb-214, Bi-214, Pb-212 и Be-7) изотопов одновременно [1]. Концентрации этих изотопов в приземной атмосфере существенно различны. Так, в нижней атмосфере концентрации Pb-214 и Bi-214 изменяются в пределах 0,001 – 30 Бк/м³, концентрации Pb-212 примерно в 10 раз ниже, а концентрации Be-7 изменяются в пределах 0,5 – 20 мБк/м³. Так как в используемой нами методике концентрации всех изотопов определяются в одной пробе, полученной путем прокачки воздуха через тонковолокнистый фильтр и измерением гамма-активности аэрозолей, собранных на фильтре, то необходимо рассмотреть особенности таких измерений и расчетов концентраций. Обычно при расчете концентрации делается ряд допущений, которые могут оказывать различное влияние на точность полученных результатов.

Все существующие методы расчетов целесообразно разделить на две группы. В первую группу входят большинство предложенных методов [2 – 5], которые для Po-218, Pb-214 и Bi-214 основаны на решении уравнений накопления и распада этих изотопов на фильтрах и определении площади фотопиков. Во второй группе [6] расчеты производятся значительно проще и основным параметром является максимальная скорость счета в каналах соответствующих фотопиков. Цель настоящей работы заключается в разработке методик расчета концентраций Pb-214, Bi-214 и Pb-212 для наших условий измерений.

Время отбора пробы. Схема распада радона-222 до висмута-214 имеет вид:

$$\frac{dN_c}{dt} = Vn_c - \lambda_c N_c + \lambda_b N_b, \quad (3)$$

где индексы a, b, c относятся соответственно к ${}^{218}\text{Po}$, ${}^{214}\text{Pb}$ и ${}^{214}\text{Bi}$;
 N_a, N_b, N_c – содержание изотопов на фильтре;

n_a, n_b, n_c – концентрация изотопов в атмосфере на момент отбора пробы, атом/м³;

V – объемная скорость прокачки воздуха через фильтр, м³/сек;

$\lambda_a, \lambda_b, \lambda_c$ – постоянные распада изотопов.

Решения (1 – 3) имеют вид:

$$N_a(t) = Vn_a [1 - \exp(-\lambda_a t)] / \lambda_a, \quad (4)$$

$$N_b(t) = Vn_a [\lambda_a (1 - \exp(-\lambda_b t)) - \lambda_b (1 - \exp(-\lambda_a t))] / \lambda_b (\lambda_a - \lambda_b) + Vn_b [1 - \exp(-\lambda_b t)] / \lambda_b, \quad (5)$$

$$N_c(t) = Vn_a \left\{ \begin{aligned} & [\lambda_b \lambda_c (1 - \exp(-\lambda_a t))] / [(\lambda_a - \lambda_b)(\lambda_a - \lambda_c)] + \\ & + [\lambda_a \lambda_c (1 - \exp(-\lambda_b t))] / [(\lambda_a - \lambda_b)(\lambda_c - \lambda_b)] - \\ & - [\lambda_a \lambda_b (1 - \exp(-\lambda_c t))] / [(\lambda_a - \lambda_b)(\lambda_c - \lambda_b)] \end{aligned} \right\} / \lambda_c + \\ + Vn_b \{ [\lambda_c (1 - \exp(-\lambda_b t)) / (\lambda_c - \lambda_b)] - [\lambda_b (1 - \exp(-\lambda_c t)) / (\lambda_c - \lambda_b)] \} / \lambda_c + \\ + Vn_c [1 - \exp(-\lambda_c t)] / \lambda_c. \quad (6) \end{math>$$

На рисунке 1 эти кривые накопления представлены графически. Видно, что процесс накопления RaA на фильтре завершается на 95% уже к 10–й минуте отбора пробы, в то время как нарастание активностей

RaB и RaC на этом временном промежутке происходит практически линейно. По истечении 60 минут отбора пробы полнота накопления RaB и RaC составляет 78 % и 69 % от их предельных значений, в то вре-

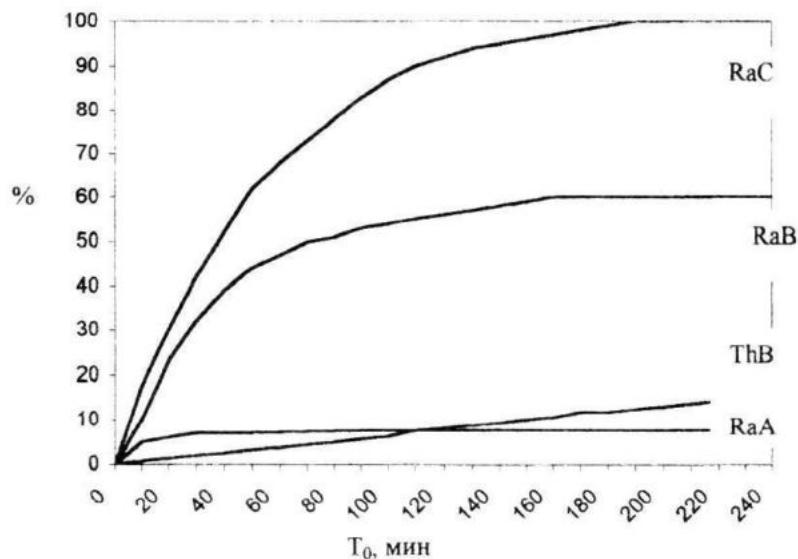


Рисунок 1 – Накопление короткоживущих продуктов распада на фильтре в зависимости от продолжительности отбора пробы

мя как увеличение продолжительности прокачки вдвое (до 120 мин) обеспечивает нарастание их уровня активности на фильтре

до 95 % и 91 % соответственно. Эта особенность накопления КПРР на фильтре демонстрирует нецелесообразность использо-

вания продолжительных экспозиций при отборе пробы. На этом же рисунке представлена кривая накопления ^{212}Pb (ThB), уровень активности которого в нижней атмосфере составляет 2 – 5 % от соответствующего показателя для КПРР. Этот радионуклид имеет наиболее интенсивную линию в γ -спектре с энергией 239 Кэв, которая может накладываться на суммарный пик ППЭ от трех линий RaB, особенно в тех случаях, когда их активности соизмеримы. Однако, как видно из представленного рисунка, отношение накопленных активно-

стей $A_{\text{ThB}}/A_{\text{RaB}}$ на фильтре для обычного их соотношения даже в приземной атмосфере не превышает 6%, что позволяет пренебречь этим вкладом при обработке спектра RaB.

Расчет концентрации Pb-214 и Bi-214. На гамма-спектрах, которые используются для расчетов концентраций, выделяется ряд пиков (рисунок 2). Для расчета свинца-214 и висмута-214 целесообразно использовать пики с энергиями 352 Кэв и 609 Кэв

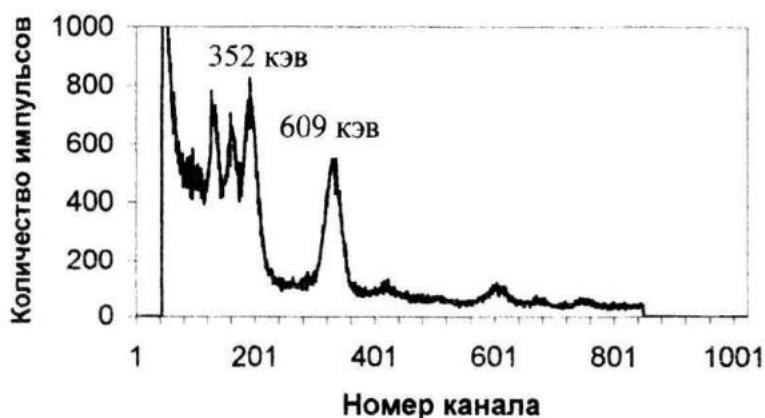


Рисунок 2 – Гамма-спектр пробы аэрозолей через 5 минут после окончания фильтрации

соответственно. После выдержки пробы в течение 3 часов свинец-214 ($T=27$ мин) и висмут-214 ($T=19,7$ мин) распадаются и на

спектре выделяется пик с энергией 239 Кэв (рисунок 3), принадлежащий свинцу-212 ($T=10,64$ ч.).

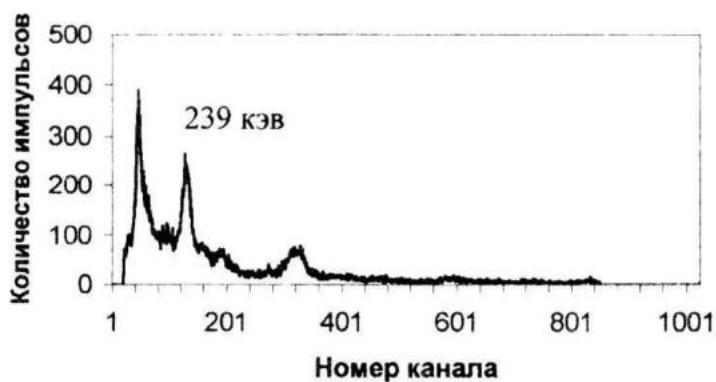


Рисунок 3 – Гамма-спектр пробы аэрозолей через 3 часа после окончания фильтрации

После окончания прокачки воздуха накопленные на фильтре КПРР начинают распадаться в соответствии со скоростями их

собственного распада и генетической связи между этими радионуклидами.

В момент выключения фильтрации T_0
на фильтрах накопились следующие коли-

чества атомов:

$$N_a(T_0) = N_a^0 \quad N_b(T_0) = N_b^0 \quad N_c(T_0) = N_c^0.$$

Распад их описывается системой уравнений (вводя время распада $t' = t - T_0$, $t \geq T_0$):

$$\frac{dN_a'}{dt'} = -\lambda_a N_a', \quad (7)$$

$$\frac{dN_c'}{dt'} = -\lambda_c N_c' + \lambda_b N_b'. \quad (9)$$

$$\frac{dN_b'}{dt'} = -\lambda_b N_b' + \lambda_a N_a', \quad (8)$$

При начальном условии

$t' = 0 \quad N_a' = N_a^0, \quad N_b' = N_b^0, \quad N_c' = N_c^0$ решение имеет вид:

$$N_a' = \frac{v}{\lambda_a} (1 - e^{-\lambda_a T_0}) n_a, \quad (10)$$

$$N_b' = \frac{v}{\lambda_b} \left[\frac{\lambda_a (1 - e^{-\lambda_b T_0})}{\lambda_a - \lambda_b} e^{-\lambda_b t'} - \frac{\lambda_b (1 - e^{-\lambda_a T_0})}{\lambda_a - \lambda_b} e^{-\lambda_a t'} \right] n_a + \frac{v}{\lambda_b} (1 - e^{-\lambda_b T_0}) e^{-\lambda_b t'} n_b, \quad (11)$$

$$N_c' = \frac{v}{\lambda_c} \left[\frac{\lambda_b \lambda_c (1 - e^{-\lambda_a T_0})}{(\lambda_a - \lambda_b)(\lambda_a - \lambda_c)} e^{-\lambda_a t'} + \frac{\lambda_a \lambda_c (1 - e^{-\lambda_b T_0})}{(\lambda_a - \lambda_b)(\lambda_c - \lambda_b)} e^{-\lambda_b t'} - \frac{\lambda_a \lambda_b (1 - e^{-\lambda_c T_0})}{(\lambda_a - \lambda_c)(\lambda_c - \lambda_b)} e^{-\lambda_c t'} \right] n_a + \frac{v}{\lambda_c} \left[\frac{\lambda_c (1 - e^{-\lambda_b T_0})}{\lambda_c - \lambda_b} e^{-\lambda_b t'} - \frac{\lambda_b (1 - e^{-\lambda_c T_0})}{\lambda_c - \lambda_b} e^{-\lambda_c t'} \right] n_b + \frac{v}{\lambda_c} (1 - e^{-\lambda_c T_0}) e^{-\lambda_c t'} n_c. \quad (12)$$

Время измерения γ -спектра τ , начало измерения t_1' , конец измерения $t_2' = t_1' + \tau$.

Измеряемые величины есть:

$\int_{t_1'}^{t_2'} \lambda_b N_b' dt'$ и $\int_{t_1'}^{t_2'} \lambda_c N_c' dt'$ – это количество распадов соответствующего нуклида за время $(t_2' - t_1')$. Эти величины связаны с измеренным количеством импульсов от γ -квантов с энергиями 352 и 609 кэВ соответственно на γ -спектрометре следующими соотношениями:

$$\int_{t_1'}^{t_2'} \lambda_b N_b' dt' = \frac{N_{352}^{t_2' - t_1'}}{\eta_{352} k_{352}},$$

$$A_{352} = \frac{\lambda_a (1 - e^{-\lambda_b T_0})}{\lambda_b (\lambda_a - \lambda_b)} (e^{-\lambda_b t_1'} - e^{-\lambda_b t_2'}) - \frac{\lambda_b (1 - e^{-\lambda_a T_0})}{\lambda_a (\lambda_a - \lambda_b)} (e^{-\lambda_a t_1'} - e^{-\lambda_a t_2'}),$$

$$B_{352} = \frac{1 - e^{-\lambda_b T_0}}{\lambda_b} (e^{-\lambda_b t_1'} - e^{-\lambda_b t_2'}),$$

$$\int_{t_1'}^{t_2'} \lambda_c N_c' dt' = \frac{N_{609}^{t_2' - t_1'}}{\eta_{609} k_{609}}.$$

Их можно представить в виде:

$$\frac{1}{V} \int_{t_1'}^{t_2'} \lambda_b N_b' dt' = A_{352} n_a + B_{352} n_b,$$

$$\frac{1}{V} \int_{t_1'}^{t_2'} \lambda_c N_c' dt' = A_{609} n_a + B_{609} n_b + C_{609} n_c,$$

где коэффициенты имеют вид:

$$A_{609} = \frac{\lambda_b \lambda_c (1 - e^{-\lambda_a T_0})}{\lambda_a (\lambda_a - \lambda_b) (\lambda_a - \lambda_c)} (e^{-\lambda_a t_1^{'}} - e^{-\lambda_a t_2^{'}}) + \frac{\lambda_a \lambda_c (1 - e^{-\lambda_b T_0})}{\lambda_b (\lambda_a - \lambda_b) (\lambda_c - \lambda_b)} (e^{-\lambda_b t_1^{'}} - e^{-\lambda_b t_2^{'}}) -$$

$$-\frac{\lambda_a \lambda_b (1 - e^{-\lambda_c T_0})}{\lambda_c (\lambda_a - \lambda_c) (\lambda_c - \lambda_b)} (e^{-\lambda_c t_1^{'}} - e^{-\lambda_c t_2^{'}}),$$

$$B_{609} = \frac{\lambda_c (1 - e^{-\lambda_b T_0})}{\lambda_b (\lambda_c - \lambda_b)} (e^{-\lambda_b t_1^{'}} - e^{-\lambda_b t_2^{'}}) - \frac{\lambda_b (1 - e^{-\lambda_a T_0})}{\lambda_c (\lambda_c - \lambda_b)} (e^{-\lambda_c t_1^{'}} - e^{-\lambda_c t_2^{'}}),$$

$$C_{609} = \frac{1}{\lambda_c} (1 - e^{-\lambda_c T_0}) (e^{-\lambda_c t_1^{'}} - e^{-\lambda_c t_2^{'}}).$$

При вычислении коэффициентов следует заменить λ_i на $\frac{\ln 2}{T_i}$, где T_i – период полураспада нуклида (T_a, T_b, T_c).

В результате вычислительные формулы для различных $t_1^{'}$ имеют вид:

При $T_0 = 120$ мин, $\tau = 30$ мин, $t_1^{'} = 2$ мин, $t_2^{'} = 32$ мин (13)

$$\frac{N_{352}^{32-2}}{V\eta_{352}k_{352}} = 21,028n_a + 19,926n_b = 94,045A_a + 731,759A_b,$$

$$\frac{N_{609}^{32-2}}{V\eta_{609}K_{609}} = 24,798n_a + 24,210n_b + 17,094n_c =$$

$$110,905A_a + 936,061A_b + 490,762A_c.$$

При $T_0 = 120$ мин, $\tau = 30$ мин, $t_1^{'} = 3$ мин, $t_2^{'} = 33$ мин (14)

$$\frac{N_{352}^{33-3}}{V\eta_{352}k_{352}} = 20,557n_a + 18,443n_b = 91,938A_a + 713,084A_b,$$

$$\frac{N_{609}^{33-3}}{V\eta_{609}k_{609}} = 24,661n_a + 24,021n_b + 16,509n_c = 110,293A_a + 928,753A_b + 473,967A_c.$$

При $T_0 = 120$ мин, $\tau = 30$ мин, $t_1^{'} = 4$ мин, $t_2^{'} = 34$ мин (15)

$$\frac{N_{352}^{34-4}}{V\eta_{352}k_{352}} = 20,084n_a + 17,972n_b = 89,823A_a + 694,879A_b,$$

$$\frac{N_{609}^{34-4}}{V\eta_{609}k_{609}} = 24,512n_a + 23,822n_b + 15,944n_c = 109,626A_a + 921,059A_b + 457,746A_c.$$

При $T_0 = 120$ мин, $\tau = 30$ мин, $t_1^{'} = 5$ мин, $t_2^{'} = 35$ мин (16)

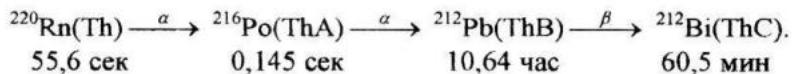
$$\frac{N_{352}^{35-5}}{V\eta_{352}k_{352}} = 19,613n_a + 17,513n_b = 87,716A_a + 677,127A_b,$$

$$\frac{N_{609}^{35-5}}{V\eta_{609}k_{609}} = 24,352n_a + 23,613n_b + 15,398n_c = 108,911A_a + 912,978A_b + 442,070A_c.$$

Из этих выражений следует, что расчет активности всех трех компонентов КПРР требует проведения по крайней мере двух последовательных наборов спектра, так как однократная регистрация не позволяет решить систему их двух уравнений с тремя неизвестными. Однако, из этих же выражений видно, что вклад со стороны атомов

RaA в интенсивности пиков RaB и RaC при выбранных условиях составляет менее 15 % и 10 % соответственно. Большинство исследователей в такой ситуации ограничиваются однократной регистрацией спектра излучения.

Расчет концентрации Pb-212. Схема распада Rn(Th) и его дочерних продуктов



Будем пользоваться теми же обозначениями, что и для ${}^{222}\text{Rn}$. Расчет концентрации ${}^{212}\text{Pb}$ производится следующим образом. Накопление ${}^{216}\text{Po(ThA)}$ и ${}^{212}\text{Pb(ThB)}$ на фильтре при отборе пробы воздуха описывается выражениями, аналогичными (1) и (2). После окончания фильтрации распад этих изотопов описывается системой урав-

нений, аналогичных (7) и (8). Число зарегистрированных импульсов ($N_{239}^{t_2-t_1}$) в интервале времени ($t_1 - t_2$) от гамма-квантов с энергией 239 кэВ связано с содержанием изотопа на фильтре (N_b) следующим соотношением:

$$\begin{aligned} \int_{t_1}^{t_2} \lambda_b N_b dt = \frac{N_{239}^{t_2-t_1}}{\eta_{239} k_{239}}, \text{ где } \frac{N_{239}^{t_2-t_1}}{V \eta_{239} k_{239}} = A_{239} n_a + B_{239} n_b, \\ A_{239} = \frac{T_b^2}{\ln^2(T_b - T_a)} (1 - 2^{-\frac{T_0}{T_b}})(2^{-\frac{t_1}{T_b}} - 2^{-\frac{t_2}{T_b}}) - \frac{T_a^2}{\ln 2(T_b - T_a)} (1 - 2^{-\frac{T_0}{T_a}})(2^{-\frac{t_1}{T_a}} - 2^{-\frac{t_2}{T_a}}), \\ B_{239} = \frac{1}{\lambda_b} (1 - e^{-\lambda_b T_0}) (e^{-\lambda_b t_1} - e^{-\lambda_b t_2}) = \frac{T_b}{\ln 2} (1 - 2^{-\frac{T_0}{T_b}})(2^{-\frac{t_1}{T_b}} - 2^{-\frac{t_2}{T_b}}). \end{aligned}$$

В результате вычислительные формулы для разных t_1 имеют вид:

При $T_0 = 120$ мин, $\tau = 30$ мин, $t_1 = 2$ мин, $t_2 = 32$ мин.

Поскольку $T_b > T_a$, то разность $T_b - T_a \approx T_b$. Тогда

$$\begin{aligned} A_{239} &= \frac{T_b}{\ln 2} (1 - 2^{-\frac{T_0}{T_b}})(2^{-\frac{t_1}{T_b}} - 2^{-\frac{t_2}{T_b}}) - \frac{T_a^2}{\ln 2 \cdot T_b} (1 - 2^{-\frac{T_0}{T_a}})(2^{-\frac{t_1}{T_a}} - 2^{-\frac{t_2}{T_a}}), \\ B_{239} &= \frac{T_b}{\ln 2} (1 - 2^{-\frac{T_0}{T_b}})(2^{-\frac{t_1}{T_b}} - 2^{-\frac{t_2}{T_b}}). \end{aligned}$$

Членом в A_{239} , содержащим T_a , можно пренебречь ввиду его малости.

Перейдя к активности в единице объема A_a и A_b ($n_a = \frac{0,00263}{\ln 2} A_a$, $n_b = \frac{638,4}{\ln 2} A_b$), получим:

$$\frac{N_{239}^{t_2-t_1}}{V \eta_{239} k_{239}} = 3,597932(n_a + n_b) = 0,0136516 A_a + 3313,75 A_b. \quad (17)$$

Поскольку между ThA и ThB быстро устанавливается радиоактивное равновесие (ввиду большой разницы периодов полураспада), то членом с A_a можно пренебречь. И, окончательно,

$\frac{N_{239}^{t_2-t_1}}{V \eta_{239} k_{239}} \approx 3313,75 A_b$. При больших t_1 (3 – 5 минут) примерное равенство A_{239} и B_{239} только усиливается.

При $t_1 = 3$ мин, $\tau = 30$ мин, $t_2 = 33$ мин,

$$\frac{N_{239}^{t_2-\eta}}{V\eta_{239}k_{239}} = 3,594028(n_a + n_b) = 3,594028 \frac{638,4}{\ln 2} A_b = 3310,16 A_b \quad (18)$$

При $t_1 = 4$ мин, $\tau = 30$ мин, $t_2 = 34$ мин

$$\frac{N_{239}^{t_2-\eta}}{V\eta_{239}k_{239}} = 3,590128(n_a + n_b) = 3,590128 \frac{638,4}{\ln 2} A_b = 3306,57 A_b. \quad (19)$$

При $t_1 = 5$ мин, $\tau = 30$ мин, $t_2 = 35$ мин

$$\frac{N_{239}^{t_2-\eta}}{V\eta_{239}k_{239}} = 3,586232(n_a + n_b) = 3,586232 \frac{638,4}{\ln 2} A_b = 3302,98 A_b. \quad (20)$$

В вышеприведенных формулах η – эффективность регистрации гамма-квантов спектрометром, k – выход гамма-квантов при распаде изотопа.

Следует отметить, что все эти расчеты проводились при условии постоянства концентраций рассматриваемых радионуклидов в течение всего периода отбора пробы аэрозолей.

Заключение. На основании вышеизложенного можно сделать следующие выводы.

1. Время прокачки воздуха через фильтр при измерениях Pb-214, Bi-214 и Pb-212 должно составлять не менее 60 минут. Отбор пробы в течение 120 минут обеспечивает уровень активности более 90 %.

2. Промежуток времени между окончанием фильтрации и началом измерений на гамма-спектрометре необходимо свести к минимуму, т.е. 2 – 5 минут.

3. Расчет концентрации для Pb-214, Bi-214 следует производить по формулам (13–16) в зависимости от времени между окончанием фильтрации и началом измерений на гамма-спектрометре.

4. Расчет концентрации Pb-212 следует производить по формулам (17–20) также в зависимости от временных интервалов

4. Концентрация Be-7 в приземной атмосфере значительно ниже концентраций продуктов распада Rn-222 и Th-220. В связи с этим измерение Be-7 и Pb-214, Bi-214 и Pb-212 в одной отобранный пробе связано с большими трудностями. Для более достоверных и точных измерений Be-7 необходимо производить либо отдельный отбор пробы, либо значительно увеличивать производительность фильтрационной установки. Расчет концентрации Be-7 по измерен-

ным гамма-спектрам проводится по общепринятым методикам.

Л и т е р а т у р а

- Батраков Г.Ф., Семенов В.В. Комплекс аппаратуры для измерений концентрации радиоактивных изотопов в приземной атмосфере / Системы контроля окружающей среды / Сб. науч. трудов МГИ НАНУ. – Севастополь, 2006. – С. 324–326.
- Малахов С.Г., Чернышева П.Г. О сезонных изменениях концентрации радона и торона в приземном слое атмосферы. Радиоактивные изотопы в атмосфере и их использование в метеорологии / Сб. науч. трудов. – Москва: Атомиздат, 1965. – С. 81–92.
- Shapiro M.H. and Forbes-Resha J.L. $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$ Ratios in Air at Height of 20 m. Journal of Geophysical Research, vol.80, №12. 1975. – P. 1605–1613.
- Сапожников Ю.А., Синьков С.И. Короткоживущие продукты распада радона в приводной атмосфере. Рукопись депонирована в ВИНИТИ. – Москва, 1984. N 3283 – Деп. – 12 с.
- Turekian V.C., Graustein W.C. and Turekian K.K. The ^{214}Bi to ^{214}Pb ratio in lower boundary layer aerosols and aerosol residence times at New Haven, Connecticut. Journal of Geophysical Research, vol.104, №D9. 1999. – P. 11593–11598.
- Константинов С.В., Лысак А.В., Рябушанко А.Г., Стукин Е.Д., Цыбиков Н.А. Гамма – и бета – спектрометрические методы анализа атмосферного аэрозоля / Ядерно-физические методы анализа в контроле окружающей среды. – Ленинград: Гидрометеоиздат. 1980. – С. 154–168.