

УДК 551.577.7

## ВЛИЯНИЕ КОРОТКОЖИВУЩИХ РАДИОАКТИВНЫХ ИЗОТОПОВ НА ИЗМЕНЕНИЕ ГАММА-ФОНА ВО ВРЕМЯ ОСАДКОВ НА ЕВРОПЕЙСКОМ СЕВЕРЕ РОССИИ

<sup>1</sup>Яковлев Е.Ю., <sup>1</sup>Дружинин С.В., <sup>2</sup>Быков В.М.

<sup>1</sup>Федеральный исследовательский центр комплексного изучения Арктики имени академика Н.П. Лаверова Российской академии наук, Архангельск, e-mail: yakovlev\_eu@inbox.ru;

<sup>2</sup>Северный (Арктический) федеральный университет имени М.В. Ломоносова, Архангельск, e-mail: v.m.bykov@narfu.ru

Атмосферные осадки являются для человека одним из потенциальных источников опасного ионизирующего излучения. Атмосферные аэрозоли являются носителем ряда радиоактивных изотопов земного и космического происхождения, попадают в органы человека и оказывают негативное влияние на здоровье. Считается наиболее опасным среди естественных радионуклидов в атмосфере инертный быстрораспадающийся газ радон, который и составляет основную дозу облучения человека совместно с продуктами его распада. Серия короткоживущих продуктов распада радона, представленная радиоактивными изотопами полония, свинца и висмута, связанная с аэрозолями, играет большую роль в формировании радиационного фона атмосферы. Соответственно, от количества аэрозольных частиц, содержащих эти радиоактивные металлы, будет зависеть состояние радиационного фона атмосферы. Основной путь поступления аэрозолей на поверхность земли – это влажные выпадения в виде дождя и снега и сухие выпадения в виде мелкодисперсных твердых частиц. Поэтому важным является исследование вариаций гамма-фона на поверхности земли во время осадков и определения активности быстро распадающихся радиоактивных изотопов в самих осадках. В настоящей работе, приводятся оригинальные результаты измерения гамма-фона во время выпадения осадков и гамма-активные спектры влажных и сухих аэрозолей на территории Архангельской области. Выявлено, что значения гамма-фона во время выпадения осадков увеличиваются более чем в три раза. Восстановление нормального фона происходит через полтора часа после прекращения выпадений. Установлено, что атмосферные осадки содержат в аэрозолях радиогенные короткоживущие изотопы, являющиеся продуктами распада радона. Полученные результаты находятся в согласии с другими исследованиями и известными фактами.

**Ключевые слова:** гамма-спектрометрия, атмосферные осадки, гамма-доза, свинец-214, висмут-214

## IMPACT OF THE SHORT-LIVED RADON DECAY PRODUCTS ON CHANGE OF GAMMA BACKGROUND DURING PRECIPITATION ON THE EUROPEAN NORTH OF RUSSIA

<sup>1</sup>Yakovlev E.Yu., <sup>1</sup>Druzhinin S.V., <sup>2</sup>Bykov V.M.

<sup>1</sup>Federal Centre for Integrated Arctic Research, Arkhangelsk, e-mail: yakovlev\_eu@inbox.ru;

<sup>2</sup>Northern (Arctic) Federal University, Arkhangelsk, e-mail: v.m.bykov@narfu.ru

Precipitation for people is one of the most hazards of ionizing radiation. Tiny particles of air aerosols containing radionuclides adsorbed various origins, can enter into human inhalation and have a negative impact on health. The most dangerous among the natural radionuclides is rapidly decaying inert gas radon, which is a basic human dose. A series of short-lived radon decay products related to aerosols and provided by radioactive isotopes of polonium, lead and bismuth, plays an important role in the formation of the background radiation of the atmosphere. Accordingly, the amount of particulate matter containing these radioactive metals will depend on the state of the background radiation of the atmosphere. The main route of exposure of aerosols on the surface of the earth – it precipitates as rain or snow, so important is the study of the variations of gamma background on the surface during rainfall. In this regard, relevant is the study of what influence the change isotopes gamma dose during precipitation. In the present study, we have carried out the study of changes the gamma background during precipitation. It was revealed that the value of gamma background during precipitation increasing more than three times. Restoration of the background occurs normally a half hours after the cessation of precipitation. It was found that the precipitation in the form of aerosols contain radiogenic short-lived isotopes, which are products of decay of radon. Collection of data on the surface of the earth isotopes of precipitation leads to a short-term increase in the gamma-ray background. The results are in agreement with other studies and known facts.

**Keywords:** gamma-spectrometry, precipitation, gamma dose, lead-214, bismuth-214

Природные источники ионизирующего излучения создают около 70% суммарной дозы облучения, получаемой человеком от всех источников радиации. Наибольший вклад в дозу, создаваемую естественными радионуклидами, вносит радиоактивный газ радон и дочерние продукты его распада, в том числе и короткоживущие. В многочисленных исследованиях последних десятилетий под-

робно описываются пути поступления радона и механизмы его воздействия на организм человека. Однако информации об активности продуктов распада радона, в особенности короткоживущих, концентрации которых на поверхности земли после выпадения атмосферных осадков могут оказаться значительными, в настоящее время недостаточно, что определяет актуальность настоящего исследования.

Цепочка распадов короткоживущих изотопов в ряду родоначальника семейства – природно-го урана-238, которые могут влиять на изменение гамма-фона, выглядит следующим образом:

Радионуклид	$^{222}\text{Rn} \rightarrow$	$^{218}\text{Po} \rightarrow$	$^{214}\text{Pb} \rightarrow$	$^{214}\text{Bi}$
Период полураспада	3,82 дня	3,11 мин	26,8 мин	19,8 мин
Тип распада	$\alpha$	$\alpha$	$\beta, \gamma$	$\beta, \gamma$

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 [1]. Поведение этих изотопов носит региональный характер, т.е. метеопараметры и другие факторы могут оказывать существенное влияние на их абсолютные концентрации, отношение концентраций, взаимодействие с аэрозольными частицами и т.д. [1]. Вероятно, изменение активности данных короткоживущих изотопов в зависимости от метеоусловий будет определять вариации гамма-поля в приземном слое атмосферы, которые могут быть существенными. Однако на это явление существуют различные взгляды.

Зависимость возрастания гамма-фона от метеоусловий обнаружена в низких широтах тропической зоны [2, 3]. Увеличение фона во время грозы объясняется сильными электрическими полями между грозовыми облаками, доускоряющими заряженные частицы вторичных космических лучей [3].

Мониторинговые наблюдения фона гамма-излучения в приземном слое атмосферы Арктических областей также обнаруживают, что почти всякий сильный дождь или снегопад вызывает возрастание гамма-фона [4–6]. Причиной возрастания гамма-фона в приземном слое атмосферы данных областей во время осадков предполагается тормозное рентгеновское излучение энергичных электронов, ускоренных электрическими полями внутри дождевых (снеговых) облаков [6]. Этот вывод был сделан на основе того, что авторами работ [7] в гамма-фоне в период возрастных не обнаружено характерных линий каких-либо радионуклидов. В дождевой воде радионуклиды также не были обнаружены [7]. Согласно работам [4–7] наблюдаемые возрастания гамма-фона во время осадков являются следствием изменения условий взаимодействия космического излучения с атмосферой и не связаны с какими-либо антропогенными либо природными радионуклидами. Вероятно, определенная связь возрастания

гамма-фона во время осадков с воздействием космического излучения существует, что нельзя отрицать, однако с утверждениями об отсутствии в осадках радионуклидов, которые могут влиять на кратковременное увеличение общего гамма-фона, нельзя согласиться. Многолетние исследования аэрозолей воздуха и атмосферных осадков демонстрируют постоянное присутствие космогенных ( $^7\text{Be}$ ) и радиогенных радионуклидов ( $^{210}\text{Po}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ) в нижних слоях атмосферы, которые адсорбируются на аэрозолях субмикронного размера, формируя естественный радиационный фон атмосферы [8, 9]. В частности, изучены механизмы поступления  $^7\text{Be}$  (период полураспада 53,29 сут) на земную поверхность [9]. В основном  $^7\text{Be}$  попадает на поверхность земли в виде «сухих» (с аэрозолями воздуха) и «мокрых» (с атмосферными осадками) выпадений [10–15]. Наблюдаемые изменения гамма-фона во время осадков, отмеченные авторами [7], вероятно, также связаны с возрастанием интенсивности поступления аэрозолей на поверхность земли, содержащих короткоживущие радиогенные изотопы, поскольку отмеченные возрастания гамма-фона носят непродолжительный характер, совпадающий со временем выпадения осадков. Однако обнаружить в осадках присутствие этих радионуклидов достаточно сложно, поскольку концентрации их ультрамалы, а за время пробоподготовки, направленной на концентрирование изотопов из больших объемов, короткоживущие изотопы способны значительно распасться.

Указанные предпосылки определили необходимость проведения серии натурных наблюдений связанных с изучением вариаций естественного гамма-фона при выпадении осадков и установления вклада короткоживущих радионуклидов уранового ряда, содержащихся в виде аэрозолей в нижних слоях атмосферы, в увеличение гамма-дозы. Для выполнения указанной цели было необходимо изучить изменение интенсивности гамма-излучения во время выпадения осадков и определить энергетический диапазон, в котором происходят вариации; изучить радиоактивность аэрозолей воздуха и атмосфер-

ных осадков для установления присутствия в них короткоживущих продуктов распада радона. Указанные задачи решены с использованием комплекса современной радиометрической аппаратуры на базе лаборатории экологической радиологии Федерального исследовательского центра комплексного изучения Арктики имени академика Н.П. Лаверова Российской академии наук.

### Материалы и методы исследования

Подход при определении концентраций короткоживущих продуктов распада радона ( $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$ ) в приземной атмосфере заключался в фильтрации воздуха через фильтр, подготовке фильтра с собранными аэрозолями к измерению, измерение отобранной пробы на гамма-спектрометре. Воздухо-фильтрационная установка включала в себя электровентилятор и фильтродержатель, на который помещается тонковолокнистый фильтр ФПП-15. Накопление аэрозолей воздуха осуществлялось в течение 20 суток.

Отбор проб дождя и снега осуществлялся непосредственно в момент выпадения осадков в объеме 1 л. Осадки без предварительной пробоподготовки сразу же отправлялись на измерения. Для измерений активности аэрозолей, собранных на фильтре, а также проб дождевых и снеговых осадков использовали стационарный программно-аппаратурный комплекс «Прогресс-гамма» (Россия). Комплекс включает в себя сцинтилляционный блок детектирования гамма-излучения на основе кристалла йодистого натрия NaI (Т1), блок питания и усиления импульсов, плата аналогово-цифрового преобразователя, свинцовая защита блока детектирования от фонового излучения. Активность  $^{214}\text{Pb}$  в пробах определялась по линиям 609,3, 1120 и 1765 кэВ.

Регистрация естественного гамма-фона осуществлялась в полевых условиях с использованием высокоточного мобильного сцинтилляционного гамма-спектрометрического комплекса RS-701 (Канада). Комплекс RS-701 имеет усовершенствованный цифровой спектрометр (ADS) с высоким разрешением (1024 канала), позволяющий в режиме реального времени выполнять измерения общей радиоактивности местности в нГр/ч, а также отдельного измерения концентрации суммарного урана (ppm), тория (ppm) и калия (мас. %). Обработка гамма-спектров осуществлялась в программе RAD Assist. Запись гамма-спектров велась в одной точке на уровне земли в течение

124 мин с интервалом 1 сек, в результате чего было получено более 7400 значений параметров естественного гамма-поля. Указанный временной интервал охватывал время до дождя, период интенсивного ливня и время после прекращения выпадений до полного восстановления нормального гамма-фона.

### Результаты исследования и их обсуждение

В период проведения полевых радиометрических исследований нами неоднократно отмечалось, что во время интенсивного выпадения атмосферных осадков в несколько раз увеличивается значение определяемого суммарного гамма-излучения и соответственно гамма-дозы. Зная об этом явлении, в очередной раз при выпадении атмосферных осадков в виде дождя (летний ливень с грозой 16.08.2016; N 65.335914°, E 41.034781°) были выполнены стационарные измерения с записью данных. Результаты записи гамма-спектров во время ливня представлены в виде графиков на рис. 1.

Естественный гамма-фон в точке наблюдений составляет около 0,03 мкЗв/ч. График изменения интенсивности гамма-излучения (рис. 1, А) демонстрирует резкое увеличение значений, приуроченных ко времени выпадения дождя (~34 мин). Эквивалентная доза гамма-излучения возрастает до более 0,09 мкЗв/ч. Затем наблюдается постепенное снижение значений в течение полутора часов после выпадения осадков до первоначального уровня. Расшифровка полученных при измерении гамма-спектров данных показала, что увеличение значений гамма-излучения происходит за счет урана, определяемого прибором по каналам и энергиям радионуклидов, входящих в его радиоактивный ряд (в основном – радий и продукты его распада). Это отчетливо видно из сравнения графиков эквивалентной дозы (рис. 1, А) и концентрации урана (рис. 1, Б). Концентрация урана возрастает более чем в четыре раза по сравнению с истинными значениями в точке измерений. В каналах, соответствующих торию и калию (рис. 1, В, Г) изменений не наблюдается. В определяемый диапазон энергий измерения урана входят энергии короткоживущих гамма-излучающих продуктов распада радона –  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$ . Резкое повышение активности этих изотопов, вероятно, приводит к значительному завышению концентрации урана и соответственно эквивалентной дозы гамма-излучения. Это

обстоятельство необходимо учитывать при проведении площадных гамма-спектрометрических исследований во время дождя, поскольку влияние короткоживущих изотопов будет искажать реальную картину гамма-поля исследуемой территории.

Наиболее вероятным механизмом поступления изотопов, приводящих к изменению гамма-спектра в канале урана, является вымывание короткоживущих продуктов распада радона (и других радионуклидов совместно с аэрозолями воздуха) дождевыми осадками из атмосферы. В свою очередь выпадение данных изотопов на поверхность земли вместе с осадками приводит к их концентрированию. Радионуклиды совместно с аэрозолями воздуха в атмосфере находились в рассеянном состоянии, при выпадении атмосферные осадки вымыли аэрозоли из атмосферы и сконцентрировали их на поверхности земли. Вероятнее всего, с этим и связано кратковременное увеличение интенсивности гамма-излучения. Поскольку предполагаемые изотопы имеют маленький период полураспада, то через 1,5 часа после прекращения дождя гамма-спектр в канале урана выравнивается до фоновых значений.

В результате исследований активности радионуклидов в аэрозолях воздуха автoрами было обнаружено, что при измерении

фильтрующего материала сразу после отбора проб наблюдается спектр с многочисленными пиками, а при следующем измерении через полтора часа спектр пробы сглаживается, остаются незначительные следы пиков в диапазоне тех же энергий, а также пик более долгоживущего радионуклида бериллия-7. Измеренные гамма-спектры проб аэрозолей воздуха представлены на рис. 2.

Как правило, при измерении проб атмосферных осадков необходимо проводить длительную пробоподготовку, заключающуюся в выпаривании больших объемов осадков и концентрировании радионуклидов в объеме измерительной емкости. Нами для определения короткоживущих продуктов распада в атмосферных осадках было решено провести измерение непосредственно после их отбора без дополнительной подготовки проб.

При таком измерении спектры проб содержали пики короткоживущих продуктов распада радона – гамма-активных  $^{214}\text{Pb}$  (энергии 241,9, 295,2 и 351,9 кэВ) и  $^{214}\text{Bi}$  (энергии 609,3, 1120 и 1765 кэВ). При последующих измерениях проб через час значение активности изотопов падало, спектр выравнивался. Измеренные спектры проб атмосферных осадков, представленных дождевой и талой снеговой водами, показаны на рис. 3 и рис. 4.

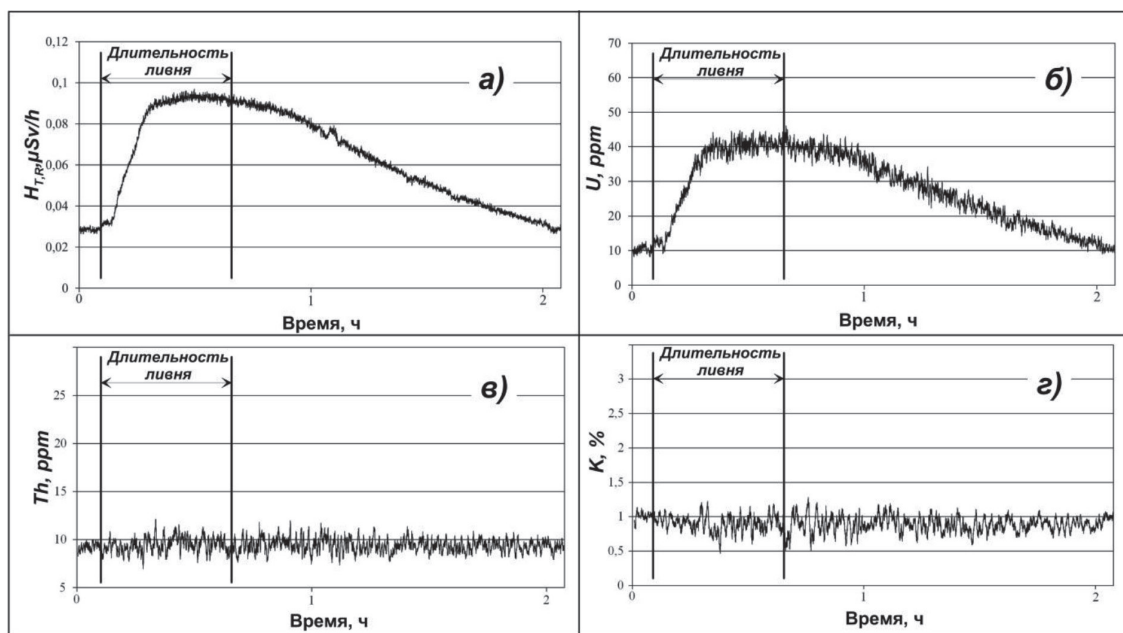


Рис. 1. Графики изменения гамма-спектрометрических параметров во время ливня в точке наблюдений  $N 65.335914^\circ$ ,  $E 41.034781^\circ$ : а – эквивалентная доза гамма-излучения ( $\text{мкЗв/ч}$ ); б – концентрация урана ( $\text{ppt}$ ); в – концентрация тория ( $\text{ppt}$ ); г – содержание калия ( $\text{мас. \%}$ )

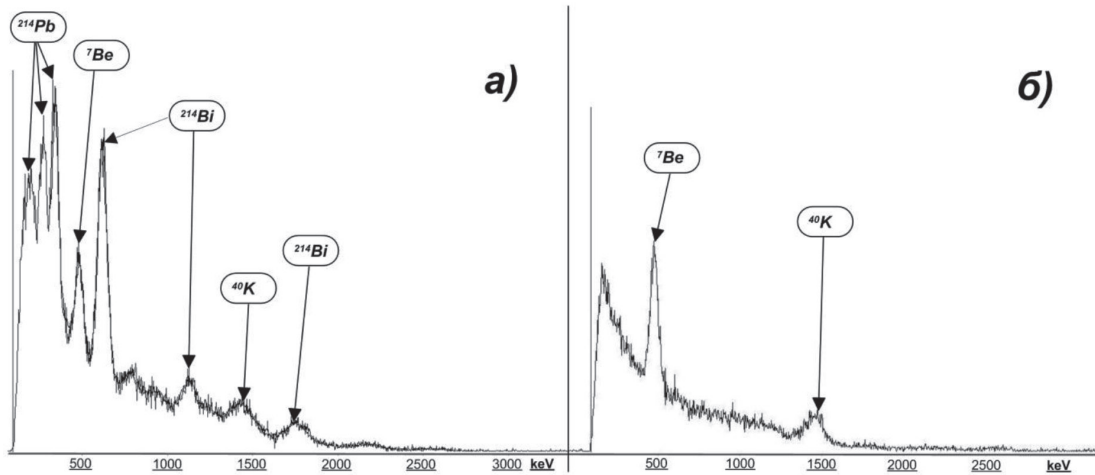


Рис. 2. Спектры проб «сухих» аэрозолей воздуха: а – спектр пробы «сухих» аэрозолей воздуха при измерении непосредственно после отбора; б – спектр пробы «сухих» аэрозолей воздуха при измерении через 1,5 часа после отбора (02.09 – 21.09.2016; N 64.550519, E 40.515314)

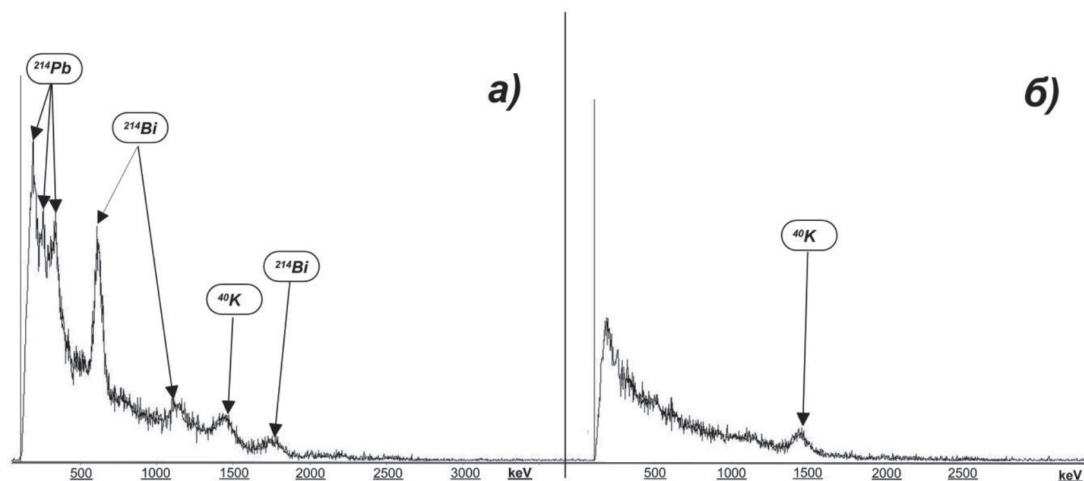


Рис. 3. Гамма-спектры проб дождевой воды: а – спектр пробы дождевой воды при измерении непосредственно после отбора; б – спектр пробы дождевой воды при измерении через 1 час после отбора (12.09.2016; N 64.550519, E 40.515314)

Однако количественно оценить содержание в осадках  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  оказалось проблематично из-за малого объема проб, но качественно эта задача решается путем расшифровки радионуклидов в общем энергетическом диапазоне получаемого гамма-спектра. Изотопы  $^{214}\text{Pb}$  были идентифицированы по энергиям 241,9, 295,2 и 351,9 кэВ, а изотопы  $^{214}\text{Bi}$  – по энергиям 609,3, 1120 и 1765 кэВ.

Гамма-спектры, полученные нами при измерении активности радионуклидов

в пробах атмосферных аэрозолей, дождевой воды и талой снеговой воды, идентичны, что свидетельствует о том, что радионуклиды, определяемые в «сухих» аэрозолях атмосферного воздуха и атмосферных осадков, одни и те же и представляют собой изотопы  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$ .

### Выводы

Таким образом, проведенные исследования позволяют сделать следующие выводы, касающиеся существа работы.

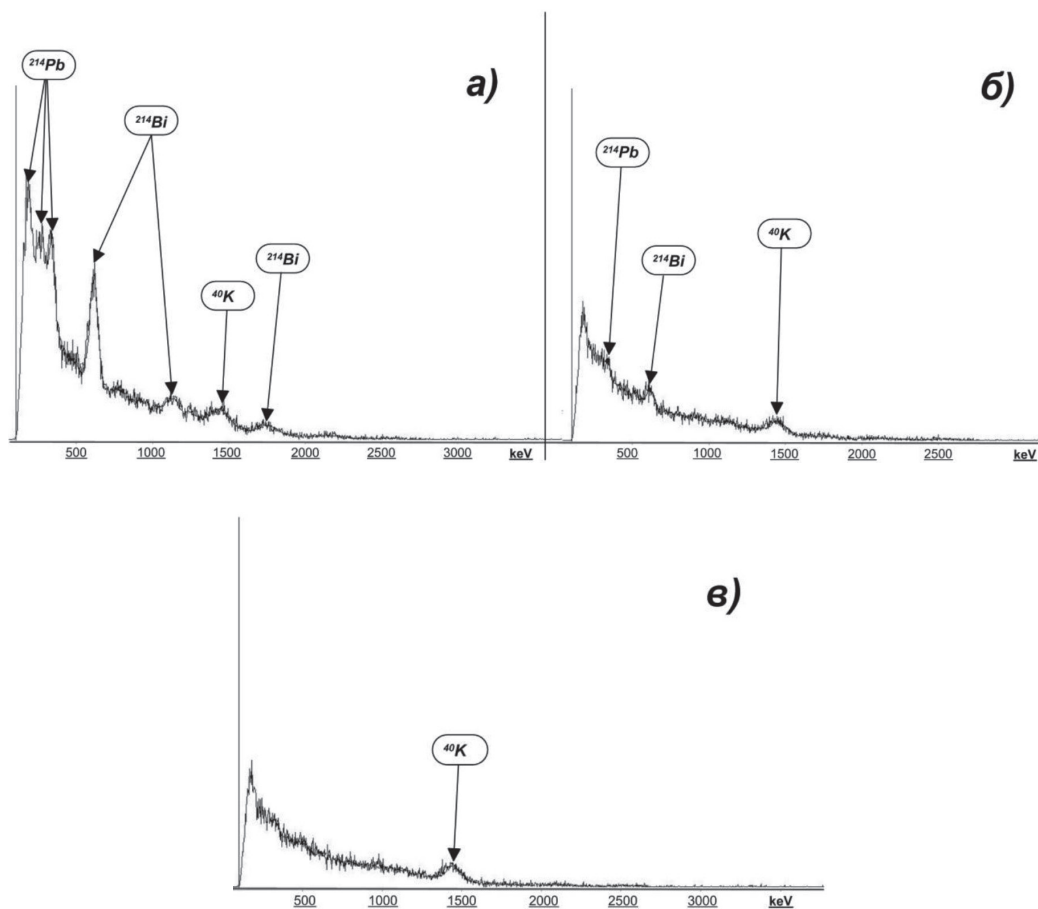


Рис. 4. Гамма-спектры проб талой снеговой воды: а – спектр пробы талой снеговой воды при измерении непосредственно после отбора; б – спектр пробы талой снеговой воды при измерении через 1 час после отбора; в – спектр пробы талой снеговой воды при измерении через 2 часа после отбора (26.10.2016; N 64.550519, E 40.515314)

Интенсивное выпадение осадков приводит к увеличению гамма-фона на поверхности земли более чем в три раза. Увеличение гамма-фона происходит не во всем измеряемом энергетическом диапазоне, а лишь в канале определения урана, который формируется как сумма входящих в его цепочку распада изотопов. Восстановление нормального гамма-фона происходит примерно через полтора часа после прекращения выпадений, что свидетельствует о том, что основной вклад в изменение гамма-фона вносят короткоживущие продукты распада радона.

Радиогенные короткоживущие изотопы содержатся в «сухих» и «жидких» атмосферных осадках в аэрозолях. Основным механизмом поступления радионуклидов на поверхность земли является вымывание атмосферными осадками аэрозольных

частиц, содержащих радиоактивные элементы. Установлено, что локальное кратковременное увеличение гамма-дозы при интенсивном выпадении атмосферных осадков вызывают изотопы  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  с периодами полураспада 26,8 и 19,8 мин соответственно.

*Работа выполнена в рамках ФНИР «Радиоизотопные исследования природных и техногенных процессов трансформации окружающей среды Европейского Севера» № АААА-А16-116052710106-8.*

#### Список литературы

1. Особенности изменчивости гидрологических и биооптических характеристик на поверхности Черного моря по данным спутниковых и контактных измерений / Ю.В. Артамонов, В.Н. Белокопытов, Е.А. Скрипалева [и др.] / под ред. В.Н. Еремеева, С.К. Коновалова. – Севастополь: Морской гидрофизический институт НАН Украины. – 2012. – 357 с.
2. Mendonca de R.R.S., Raulin J.P., Bertoni F.C.P., Echer E., Makhmutov V.S., Fernandez G. Long-term and

transient time variation of cosmic ray fluxes detected in Argentina by CARPET cosmic ray detector // *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics*. – 2011. – Vol. 73. – P. 1410–1416.

3. Лидванский А.С. Вариации интенсивности мюонов космических лучей вызванные грозовыми электрическими полями // А.С. Лидванский, В.Б. Петков, Н.С. Хаердинов // *Известия РАН, серия физическая*. – 2004. – № 11. – С. 1605–1607.

4. Вариации естественного рентгеновского фона в полярной атмосфере / Ю.В. Балабин [и др.] // *Геоматематизм и аэрономия*. – 2014. – № 3. – С. 376–386.

5. Germanenko A.V., Balabin Yu.V., Gvozdevsky B.B., Vashenyuk E.V., Melnik N.A. Study of radiation related with atmospheric precipitations. *Physics of Auroral phenomena, 34th annual seminar: материалы международной науч. конференции*. – Апатиты: Изд-во Кольского научного центра РАН, 2011. – С. 185–188.

6. Балабин Ю.В., Германенко А.В., Гвоздевский Б.Б., Вашенюк Э.В. Особенности вариаций гамма-излучения во время осадков // *Physics of Auroral phenomena, 35th annual seminar: материалы международной науч. Конференции*. – Апатиты: Изд-во Кольского научного центра РАН, 2011. – С. 143–146.

7. Вариации естественного гамма-фона во время выпадения атмосферных осадков / А.В. Германенко [и др.] // *Вестник Кольского научного центра РАН*. – 2010. – № 3. – С. 104–109.

8. Дружинин С.В. Изотопы бериллий-7, полоний-210, свинец-210 в атмосферных осадках и аэрозолях г. Архан-

гельска / С.В. Дружинин, Г.П. Киселев // *Вестник Поморского университета. Серия «Естественные науки»*. – 2010. – № 4. – С. 15–19.

9. Киселев Г.П. Особенности распределения бериллия-7 в атмосферных выпадениях и растениях Европейского Севера России / Г.П. Киселев, С.В. Дружинин // *Проблемы биогеохимии и геохимической экологии*. – 2013. – № 2. – С. 46–51.

10. Сапожников Ю.А. Радиоактивность окружающей среды / Ю.А. Сапожников. – М.: Теория и практика, 2006. – 286 с.

11. Баженов В.А. Вредные химические вещества. Радиоактивные вещества / В.А. Баженов, Л.А. Булдаков, И.Я. Василенко. – Л.: Химия, 1990. – 464 с.

12. Ферронский В.А. Космогенные изотопы гидросферы / В.И. Ферронский, В.В. Поляков, В.В. Романов. – М.: Наука, 1984. – 268 с.

13. Koch D., Mann M. Spational and temporal variability of <sup>7</sup>Be surface concentrations // *Tellus*. – 1996. – № 48. – P. 387–396.

14. Yamamoto M., Sakaguchi A., Sasaki K., Hirose K., Igarashi Y., Ki C.K. Seasonal and spatial variation of atmospheric <sup>210</sup>Pb and <sup>7</sup>Be deposition: features of the Japan Sea side of Japan // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2006. – vol. 86. – P. 110–131.

15. Содержание космогенного Ве-7 в приземном слое воздуха умеренных широт / Е.А. Бураева [и др.] // *Атомная энергия*. – 2007. – № 6. – С. 370–374.