



М. А. Фролова, начальник службы ядерной и радиационной безопасности;
e-mail: frolova-85@mail.ru

Федеральное государственное автономное
учреждение высшего образования
«Севастопольский государственный университет»

П. А. Пономаренко, к.т.н., с.н.с.,
Федеральное государственное автономное учреждение
высшего образования «Севастопольский государственный
университет»

С. С. Безотосный, инженер 1 категории,
e-mail: 79787391497@ya.ru
ОАО «ВНИИ АЭС»

Из всех природных химических элементов таблицы Д. И. Менделеева углероду принадлежит особая роль: он составляет структурную основу всех органических соединений, в том числе и входящих в состав биологических тканей всех живых организмов. Радиоуглерод относится к числу глобальных радионуклидов – участвует в круговороте углерода в атмосфере. В природе встречаются три изотопа углерода: $^{12}_6\text{C}$ (98.89 %), $^{13}_6\text{C}$ (1.11 %) и $^{14}_6\text{C}$ (2·10⁻¹⁰ %). Последний образуется в атмосфере Земли под действием вторичных космических лучей и их активной составляющей – нейтронов. Образуется он как в естественных, так и в искусственных условиях в результате нескольких ядерных реакций. Повышение концентрации антропогенного $^{14}_6\text{C}$ во внешней среде представляет большую гигиеническую и экологическую проблему. Поэтому количественная оценка сгенерированного радиоуглерода позволит провести анализ уже сложившейся обстановки и прогноз на будущее. При этом масса радиоуглерода на Земле и скорость его образования подтверждаются законами сохранения вещества.

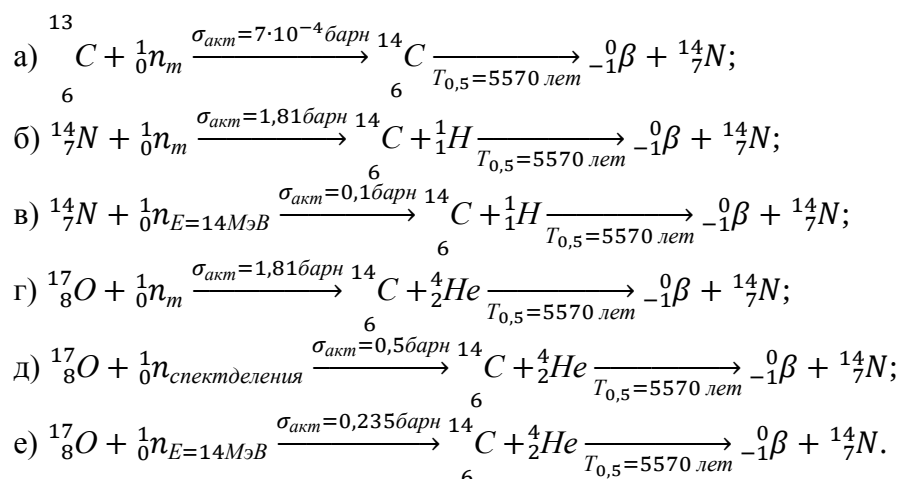
Ключевые слова: радионуклид, радиоуглерод, нейтрон, плотность потока нейтронов, энергия нейтронов, бета-частица, ядро, ядерная реакция

ВВЕДЕНИЕ

Изотоп углерода $^{14}_6\text{C}$ является радиоактивным со временем жизни 8040 лет [1]. Он является чистым бета-излучателем с максимальной энергией β^- частиц (электронов) 0.155 МэВ [2]. Эффективная энергия β^- частиц радиоуглерода, представляющая собой, в принципе, величину полной энергии, освобождаемой в ткани всеми видами ядерных излучений данного радионуклида (гамма, электронного, позитронного, альфа – и ядер отдачи) на один распад, и учитывающая относительную биологическую эффективность каждого из перечисленных видов излучения, равна 0.057 МэВ [3].

ОБЪЕКТ ИССЛЕДОВАНИЯ

Радиоуглерод образуется в атмосфере Земли в результате взаимодействия вторичных космических лучей (в основном нейтронов) с ядрами $^{14}_7\text{N}$, $^{13}_6\text{C}$ и $^{17}_8\text{O}$ по следующим схемам ядерных реакций:



Химия ядерных реакций - область науки, занимающаяся изучением ядерных реакций радиохимическими методами, объектами исследования являются: реакции деления атомных ядер, процессы взаимодействия атомных ядер с частицами высокой, средней и низкой энергии, ядерные превращения (альфа-распад, бета-распад, изомерные переходы и т.д.) [4-8].

Ядерно-химическая реакция а) имеет место благодаря наличию в атмосфере вторичных нейтронов космического происхождения с энергией (0.005 ÷ 0.5) эВ и углекислого газа (CO₂ – 0.46 %). Реакции б) и в) имеют место благодаря наличию в атмосфере тех же космических нейтронов и нейтронов с энергией 14 МэВ, а также азота (75.5 % массовых). Природный азот состоит из ¹⁴₇N (99.63 %) и ¹⁵₇N (0.37 %). Ядерно-химические реакции г), д) и е) имеют место из-за наличия в атмосфере тех же вторичных космических нейтронов с энергиями (0.005 ÷ 0.5) эВ, (0.1 ÷ 18) МэВ и кислорода (231 % массовых), который состоит из изотопов ¹⁶₈O (99.76 %), ¹⁷₈O (0.037 %) и ¹⁸₈O (0.204 %). Образовавшийся радиоуглерод является чистым бета-излучателем, поэтому распадается с периодом полураспада 5570 лет и испусканием β⁻ частиц (электронов), образуя ядра атома азота ¹⁴₇N.

ЦЕЛЬ И ЗАДАЧИ ИССЛЕДОВАНИЯ

Радиоуглерод, образованный по ядерно-химическим реакциям б), в), г), д) и е) окисляется в атмосфере, образуя соединение ¹⁴₆CO₂. Этот углекислый газ проникает в тропосферу и в результате перемешивания воздушных масс беспрепятственно распространяется по всему Земному шару, включаясь в природный кругооборот углерода. На поверхности Земли радиоуглерод накапливается в растениях и их плодах за счет фотосинтеза, а затем по пищевым цепям поступает в организм животных и в составе продуктов питания – в организм человека. Участвуя в обменных процессах наравне и вместе со стабильным углеродом, которого в теле «стандартного» человека (массой 70 кг, ростом 170 см) 18 % массовых, радиоуглерод проникает во все органы, ткани, молекулярные структуры живого организма. В отдельных случаях радиоуглерод может быть в 10 – 20 раз более опасным в генетических и соматических поражениях, чем эквивалентное в дозовом отношении внешнее облучение. Это связано с тем, что радиоуглерод, оказавшись в составе радикалов молекулы ДНК, отвечающей за наследственные признаки клеток живого организма (одна ДНК в ядре каждой клетки) и за наследственные признаки грядущих поколений (ДНК в половых клетках), кроме чисто радиационного воздействия бета-частиц на биосистему (и ДНК в том числе), еще при распаде ядра ¹⁴₆C происходят трансмутационные повреждения радикала, приводящие к изменению радикалов молекулы ДНК. Вот почему так важно знать не только общую среднюю скорость образования ¹⁴₆C в условиях Земли, но и частные скорости образования радиоуглерода, например, на уровне поверхности Земли или в атмосфере в зависимости от высоты над уровнем моря [10, 11].

Научная новизна заключается в разработке метода исследований, позволяющей разделить два источника генерации космогенного радиоуглерода:

первый – образование $^{14}_6\text{C}$ через действие космических лучей на атмосферу Земли;

второй – попадание $^{14}_6\text{C}$, образованного в космосе, на Землю с космической пылью ($10^6 \text{ т} \cdot \text{год}^{-1}$) [12].

Авторы считают, что впервые разработана модель, позволяющая оценить количественные параметры одного из путей образования $^{14}_6\text{C}$ при действии нейтронов космического происхождения на атмосферу Земли. Результаты исследований дают возможность получить количественные данные второго пути генерации при условии наличия общей информации о поступлении радиоуглерода из космоса.

МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Анализ приведенных ядерно-химических реакций позволяет заключить, что исходный нуклид является материнским, а полученный радиоуглерод – дочерний радионуклид.

Скорость убыли материнского нуклида определяется выражением:

$$-\sigma_{\text{акт}}^{\text{мат}} \cdot N^{\text{мат}} \cdot \varphi,$$

где $\sigma_{\text{акт}}^{\text{мат}}$ – микроскопическое сечение активации материнского нуклида, см^2 ; $N^{\text{мат}}$ – число ядер материнского нуклида в 1 см^3 среды, или чистого материнского нуклида, $\text{ядер} \cdot \text{см}^{-3}$; φ – плотность потока нейтронов ($\text{н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$), которыми характеризуется нейтронное поле, где облучается материнский нуклид.

Значит,

$$\frac{dN^{\text{мат}}}{dt} = -\sigma_{\text{акт}}^{\text{мат}} \cdot N^{\text{мат}} \cdot \varphi.$$

Согласно закону сохранения вещества и представленных моделей каждое видоизмененное материнское ядро превращается в дочернее. Следовательно, скорость убыли материнских ядер равна по модулю скорости образования дочерних. Применяя закон сохранения вещества к числу дочерних ядер, скорость изменения их числа выразится

$$\frac{dN^{\text{доч}}}{dt} = +\sigma_{\text{акт}}^{\text{мат}} \cdot N^{\text{мат}} \cdot \varphi - \lambda^{\text{доч}} \cdot N^{\text{доч}} - \sigma_{\text{акт}}^{\text{доч}} \cdot N^{\text{доч}} \cdot \varphi.$$

Таким образом, математическая модель, выражающая количественные соотношения материнских и дочерних ядер во времени, согласно моделям а), б), в), г), д) и е) будет определяться двумя дифференциальными уравнениями для каждой ядерно-химической модели:

$$\begin{cases} \frac{dN_i^{\text{мат}}}{dt} = -\sigma_{\text{акт } i}^{\text{мат}} \cdot N_i^{\text{мат}} \cdot \varphi \\ \frac{dN_i^{\text{доч}}}{dt} = +\sigma_{\text{акт } i}^{\text{мат}} \cdot N_i^{\text{мат}} \cdot \varphi - \lambda_i^{\text{доч}} \cdot N_i^{\text{доч}} - \sigma_{\text{акт } i}^{\text{доч}} \cdot N_i^{\text{доч}} \cdot \varphi \end{cases}$$

Решением этой системы будут два выражения:

$$\begin{cases} N_i^{\text{мат}}(t) = N_{0i}^{\text{мат}} \cdot e^{-\sigma_{\text{акт } i}^{\text{мат}} \cdot \varphi \cdot t_{\text{обл}}} \\ N_i^{\text{доч}}(t) = \frac{\varphi \cdot \sigma_{\text{акт } i}^{\text{мат}} \cdot N_{0i}^{\text{мат}}}{\lambda_i^{\text{доч}} + \varphi \cdot \sigma_{\text{акт } i}^{\text{доч}} - \varphi \cdot \sigma_{\text{акт } i}^{\text{мат}}} \cdot \left[e^{-\varphi \cdot \sigma_{\text{акт } i}^{\text{мат}} \cdot t_{\text{обл}}} - e^{-(\lambda_i^{\text{доч}} + \varphi \cdot \sigma_{\text{акт } i}^{\text{доч}}) \cdot t_{\text{обл}}} \right] \end{cases}$$

После обоснованного упрощения второго уравнения система будет иметь вид:

$$\begin{cases} N_i^{mat}(t) = N_{0i}^{mat} \cdot e^{-\sigma_{акт\ i}^{mat} \cdot \varphi \cdot t_{обл}} \\ N_i^{доуч}(t) = \frac{\varphi \cdot \sigma_{акт\ i}^{mat} \cdot N_{0i}^{mat}}{\lambda_i^{доуч}} \cdot [1 - e^{-\lambda_i^{доуч} \cdot t_{обл}}] \end{cases}$$

Так как во всех моделях радиоуглерода $^{14}_6\text{C}$ выступает дочерним нуклидом, а время облучения вторичными космическими нейтронами является бесконечно большим, второе уравнение в системе примет вид:

$$A_{(C-14)_i} = \varphi \cdot \sigma_{акт\ i}^{mat} \cdot N_{0i}^{mat}, \quad (a),$$

где i обозначает источник образования радиоуглерода согласно приведенным моделям.

Анализ образования радиоуглерода $^{14}_6\text{C}$ по указанной зависимости по различным моделям на уровне Земли представлен в табл. 1.

Таблица 1 - Изменение активности радиоуглерода $^{14}_6\text{C}$

Формула	$\sigma_{акт\ i}^{mat}, \text{см}^2$	$N_{0i}^{mat}, \text{ядер} \cdot \text{см}^{-3}$	$A_{(C-14)_i}, \text{Бк} \cdot \text{см}^{-3}$
$A^a)_{C-14},$	$7 \cdot 10^{-28}$	$9.0 \cdot 10^{14}$	$6.3 \cdot 10^{-13} \cdot \varphi_{космич}$
$A^b)_{C-14},$	$1.8 \cdot 10^{-24}$	$4.2 \cdot 10^{19}$	$7.5 \cdot 10^{-5} \cdot \varphi_{космич}$
$A^в)_{C-14},$	10^{-25}	$4.2 \cdot 10^{19}$	$4.2 \cdot 10^{-6} \cdot \varphi_{космич}$
$A^г)_{C-14},$	$4 \cdot 10^{-25}$	$3.9 \cdot 10^{15}$	$1.56 \cdot 10^{-9} \cdot \varphi_{космич}$
$A^д)_{C-14},$	$5 \cdot 10^{-25}$	$3.9 \cdot 10^{15}$	$2 \cdot 10^{-9} \cdot \varphi_{космич}$
$A^е)_{C-14},$	$2.35 \cdot 10^{-25}$	$3.9 \cdot 10^{15}$	$9.2 \cdot 10^{-10} \cdot \varphi_{космич}$

Следовательно, основными источниками образования космогенного радиоуглерода являются модели б) и в). Источниками образования радиоуглерода а), г), д) и е) можно пренебречь.

Возвращаясь к зависимости а) образования космогенного радиоуглерода $^{14}_6\text{C}$, следует заметить, что эта зависимость может быть реализована в числах при известных зависимостях $N_0^{N-14}(H)$ и $\varphi_{косм}(H)$, где H – высота над поверхностью Земли.

РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Оценка скорости образования космогенного радиоуглерода в зависимости от высоты выполнялась с помощью данных $\varphi_{косм}(H)$ авторов Красноярского НЦСОРАН В. М. Владимирова, Л. В. Границкого, Н. Н. Гурова, А. В. Сагалаева и Р. Г. Хлебопрос, а количество ядер азота $^{14}_7\text{N}$ в см^3 вычислялось через плотность воздуха в зависимости от высоты над уровнем моря, допуская соотношение между N_0 и N_N постоянным по всей высоте (табл. 2).

Таблица 2 – Значения скорости образования космогенного радиоуглерода над уровнем Земли

$H, \text{км}$	0	4	5	6,4	6,82	7,73
$\varphi \cdot \sigma_{акт} \cdot N$	$3 \cdot 10^{-6}$	$8.43 \cdot 10^{-7}$	$1.7 \cdot 10^{-6}$	$2.12 \cdot 10^{-6}$	$2.72 \cdot 10^{-6}$	$3.1 \cdot 10^{-6}$
$H, \text{км}$	8.64	9.55	10.45	11.82	13.2	15.91
$\varphi \cdot \sigma_{акт} \cdot N$	$3.34 \cdot 10^{-6}$	$3.5 \cdot 10^{-6}$	$3.5 \cdot 10^{-6}$	$3.24 \cdot 10^{-6}$	$2.93 \cdot 10^{-6}$	$1.76 \cdot 10^{-6}$

H, км	17.73	18.64	20	21	-	-
$\varphi \cdot \sigma_{акт} \cdot N$	$1.37 \cdot 10^{-6}$	$1.02 \cdot 10^{-6}$	$6.15 \cdot 10^{-7}$	$2.37 \cdot 10^{-7}$	-	-

Плотность потока космических нейтронов на уровне Земли вычислена по рекомендациям МКРЗ [9]. Увеличение удельной активности радиоуглерода $^{14}_6C$ у поверхности Земли связано с увеличением плотности потока нейтронов. Причина увеличения плотности потока у поверхности Земли заключается в следующем: поверхность Земли является отражателем космогенных нейтронов и породы поверхности Земли служат дополнительным источником нейтронов за счет спонтанного деления ядер урана и тория в них.

Как видно из табл. 2 максимальная удельная активность космогенного радиоуглерода имеет место примерно на высоте 10 км и эта удельная активность на $0,5 \cdot 10^{-6}$ больше удельной активности космогенного радиоуглерода на уровне Земли, примерно на 17 %.

Графическое изображение зависимости скорости образования космогенного радиоуглерода в атмосфере представлено на рисунке, а ее аппроксимационная зависимость при достоверности аппроксимации (R^2) = 0,9488 имеет вид:

$$\varphi \cdot N = -9 \cdot 10^{+13} h^5 + 5 \cdot 10^{+15} h^4 - 9 \cdot 10^{+16} h^3 + 8 \cdot 10^{+17} h^2 - 2 \cdot 10^{+18} h + 3 \cdot 10^{+18}$$

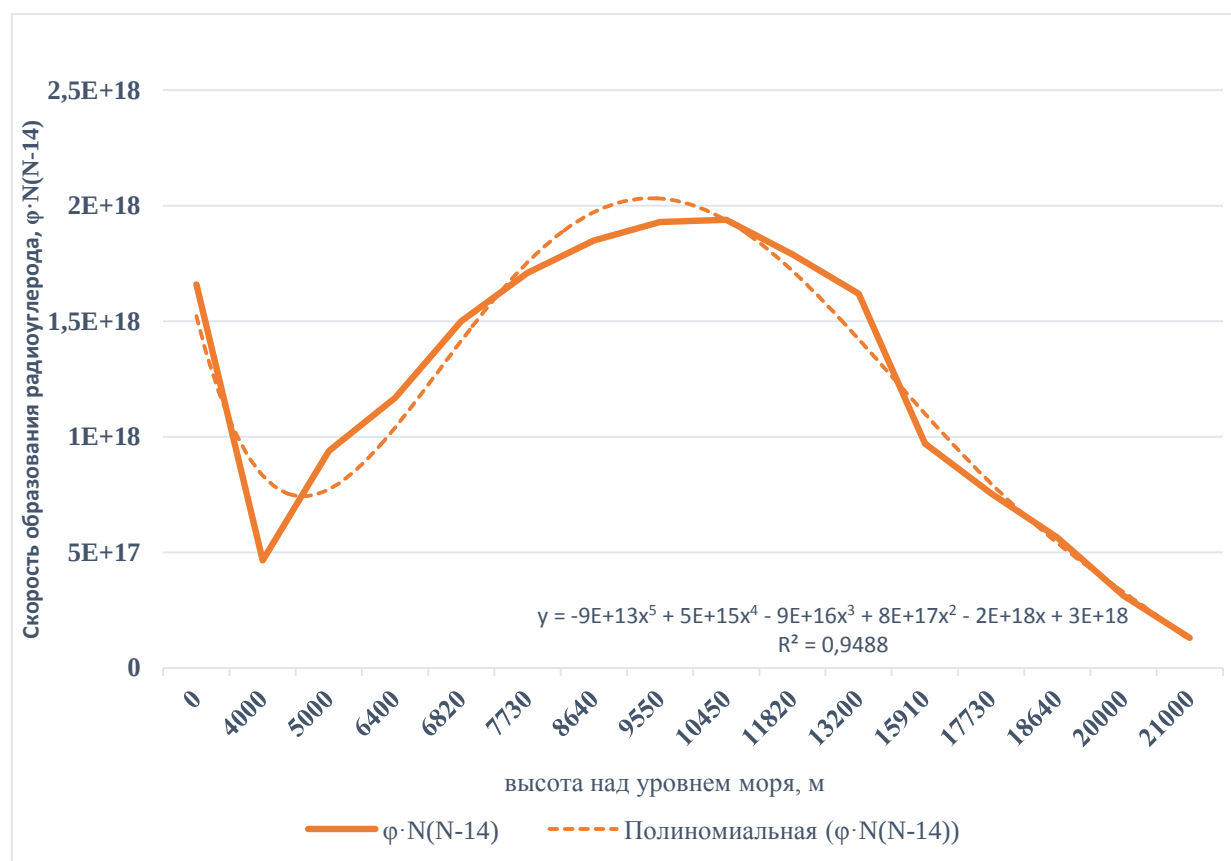


Рисунок – Зависимость скорости образования космогенного радиоуглерода в атмосфере

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В связи с тем, что микроскопическое сечение активации является постоянной величиной, определяющими параметрами генерации радиоуглерода выступают плотность потока нейтронов и число ядер азота-14 — исходного материала. Тогда максимальное значение сгенерированных ядер радиоактивного углерода приходится на высоту 10 км.

Следовательно, на этой высоте можно ожидать максимума образования $^{14}_6\text{CO}$. Этот углекислый газ в значительной степени будет выпадать на поверхность Земли с осадками. А значительное время жизни радиоуглерода дает возможность более надежно изучить состав почвенных вод и путей их миграции и в целом иметь более точные и надежные данные о кругообороте воды в земной коре. Последнее даст возможность получить новые данные в области науки о Земле.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов, требующего раскрытия в данной статье.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Гордеев, И. В. Справочник по ядерно-физическим константам для расчета реакторов / И. В. Гордеев, Д. А. Кардашев, А. В. Малышев. – Москва: Изд. Гос.комитета СМ СССР по использованию атомной энергии, 1960. – 280 с.
2. Справочник по ядерной физике / под редакцией академика Л. А. Арцимовича. - Москва: Госиздат физ-мат литературы, 1963. – 632 с.
3. Закутинский, Д. И. Справочник по токсикологии радиоактивных изотопов / Д. И. Закутинский, Ю. Д. Парфенов, Л. Н. Селиванова. – Москва: Гос. Издательство медицинской аппаратуры, 1962. – 116 с.
4. Атомная энергия. Краткая энциклопедия / под ред. В. С. Емельянова. – Москва: Большая Советская Энциклопедия, 1958. – 628 с.
5. Советский энциклопедический словарь / под ред. А. М. Прохорова. - Москва: Советская Энциклопедия. – 3 изд., 1984/1985. – 1600 с.
6. Малая советская энциклопедия / под редакцией Б. А. Введенского. - Москва: Большая Советская Энциклопедия, 1958. – 628 с.
7. Фридлендер, Г. Ядерная химия и радиохимия / Г. Фридлендер, Дж. Кеннеди, Дж. Миллер. – Москва: Мир, 1967. – 568 с.
8. Краткая химическая энциклопедия. Том 5 / Под ред. И. Л. Кнунянца. – Москва: Советская энциклопедия, 1967. – 1184 с.
9. Природные изотопы гидросферы / Под общ. ред. д-ра техн наук, проф. В. И. Ферронского. – Москва: Недра, 1975. – 277 с.
10. Атлас нейтронных ядерных сечений для актинидов / А. И. Блохин, Е. Ф. Митенкова, Д. А. Блохин, Н. Н. Булеева [и др.]. – Москва: Ин-т проблем безопасн. развития атом. энергетики РАН, 2008, № IBRAE-2008-04. - 20 с.
11. Мурзин, В. С. Астрофизика космических лучей: Учебное пособие для вузов / В. С. Мурзин. - Москва: Университетская книга; Логос, 2007. - 488 с.
12. Козлов, В. Ф. Справочник по радиационной безопасности / В. Ф. Козлов. – Москва: Энергоатомиздат, 1991. – 352 с.

TO THE ISSUE OF RADIOCARBON GENERATION IN THE ATMOSPHERE

P. A. Ponomarenko

FGAOU VO "Sevastopol State University", Sevastopol, the Russian Federation

M. A. Frolova

FGAOU VO "Sevastopol State University", Sevastopol, the Russian Federation

Bezotosniy S.S

OAO «VNII AES» Rossiya, Sevastopol, the Russian Federation

Of all the natural chemical elements of the DI table. Mendeleev's carbon has a special role: it forms the structural basis of all organic compounds, including those that are part of the biological tissues of all living organisms. In nature, there are three carbon isotopes: $^{12}_6\text{C}$ (98.89%), $^{13}_6\text{C}$ (1.11%) and $^{14}_6\text{C}$ (2.10-10) [1]. The latter is formed in the Earth's atmosphere under the action of secondary cosmic rays and their active constituent of neutrons. The mass of radiocarbon on the Earth and the rate of its formation are confirmed by the laws of conservation of matter.

Key words: *carbon, radionuclide, radiocarbon, neutron, neutron flux density, neutron energy.*