

ON RETROSPECTIVE STUDY OF ^{14}C IN THE ATMOSPHERE

Buzinny M.G., Mikhailova L.L., Romanchenko M.A., Chyrkov V.S., Sakhno V.I.

ДО ПИТАННЯ РЕТРОСПЕКТИВНОГО ДОСЛІДЖЕННЯ

^{14}C В АТМОСФЕРІ



**БУЗИННИЙ М.Г.,
МИХАЙЛОВА Л.Л.,
РОМАНЧЕНКО М.О.,
ЧИРКОВ В.С., САХНО В.І.**
ДУ "Інститут гігієни
та медичної екології
ім. О.М. Марзєєва
НАМН України",
м. Київ

УДК 614.7:543.2:549.8

асвоєння CO_2 з атмосферного повітря під час формування щорічного приросту деревини протягом вегетаційного періоду призводить до формування відповідного інтегрального хронологічного сліду радіовуглецю в атмосфері. Інтенсивні коливання ^{14}C в атмосфері відбулися за останні 100 років [1, 2]. Їх спричинили техногенні процеси: широке використання викопного палива (вугілля, нафти і газу), випробування ядерних пристроїв у відкритому просторі та викиди об'єктів ядерного енергетичного комплексу. Зокрема, найбільші коливання вмісту ^{14}C сталися за час ядерної

ери — після 40-х років минулого сторіччя. Причому випробування ядерних пристроїв залишило глобальний слід на усій планеті з чіткими відмінностями для Північної та Південної півкуль, де були проведені випробування пристроїв різної потужності. Існуючі викиди об'єктів ядерно-енергетичного комплексу не такі потужні, а їхній слід помітний лише на відстані декількох кілометрів. Дослідження вмісту ^{14}C у пробах щорічного приросту деревини дозволяє визначати інтегровані за рік характеристики його вмісту та досліджувати причини їх змін.

Дослідження аварійних та

К ВОПРОСУ РЕТРОСПЕКТИВНОГО ИССЛЕДОВАНИЯ ^{14}C В АТМОСФЕРЕ

Бузинный М.Г., Михайлова Л.Л., Романченко М.А., Чирков В.С., Сахно В.И.
ГУ "Институт гигиены и медицинской экологии им. А.Н. Марзеева НАМН Украины", г. Киев

Целью работы было исследование колебаний содержания ^{14}C в атмосферном воздухе путем определения его удельной активности в ежегодном приросте деревьев для фоновых условий и в условиях воздействия объекта ядерно-энергетического комплекса, а также сравнение данных пространственного распределения ^{14}C вокруг объекта.

Материалы и методы. Проведены измерения содержания ^{14}C в ежегодном приросте древесины (годовых колец) сосны для исследований его колебаний в атмосферном воздухе с конца 1940-х годов — интервала времени, когда произошли наибольшие колебания уровня радиоуглерода. Объекты исследования — древесина сосны обыкновенной. Для исследования фоновых колебаний выбраны деревья, отобранные в Черниговской области, а для изучения влияния техногенного выброса ^{14}C — деревья вблизи источника выбросов ^{14}C — исследуемого нами ранее. Во втором случае мы рассматривали материал дерева, выросшего на расстоянии около 5 км от объекта, и сравнивали результаты с полученными ранее для дерева,

выросшего на расстоянии около 10 км. Измерения ^{14}C проводили при помощи традиционного метода на основе жидкостно-сцинтилляционного счета, причем для исследований использована обугленная древесина годичного прироста, из которой в аппарате Сокслета предварительно были экстрагированы смоляные вещества. Образцы бензола были измерены при помощи спектрометра Quantulus 1220™, произведенного фирмой Perkin Elmer Inc. **Результаты.** Используемая технология подготовки образцов позволяет при исследовании древесины получить результаты, близкие к результатам прямых измерений ^{14}C в воздухе. Исследования образцов, отобранных в зоне влияния ядерного объекта, показали согласованные результаты с результатами ранее выполненных исследований влияния этого объекта. Сопоставления рядов данных, соответствующих исследованиям выбросов одного объекта, показали, что в образцах годичного прироста в некоторые годы наблюдаются достоверные отличия, подтвержденные повторными исследованиями. Сами отличия можно объяснить неравномерностями пространственного распределения на близких расстояниях от объекта. Общая согласованность рядов данных говорит о том, что полученные ранее оценки годовых выбросов ^{14}C и выбросов за все время работы не требуют пересмотра.

© Бузинний М.Г., Михайлова Л.Л., Романченко М.О., Чирков В.С., Сахно В.І. СТАТТЯ, 2014.

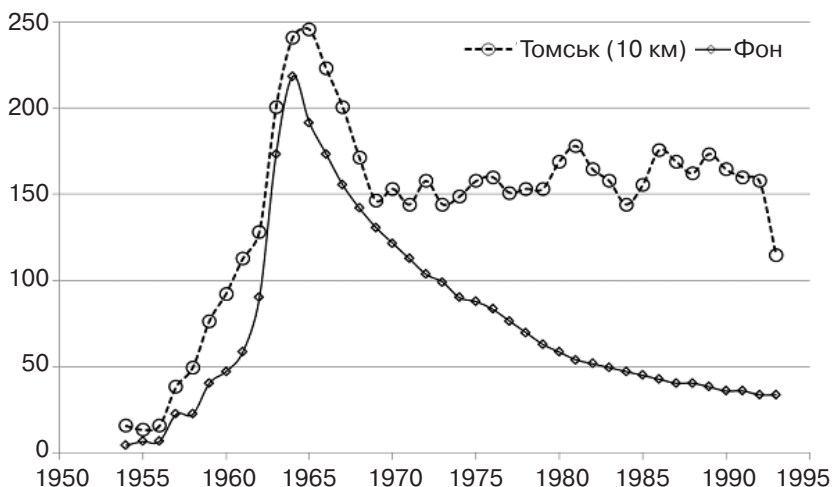
штатних викидів об'єктів ядерно-енергетичного комплексу ми проводили раніше [3-5]. Результати показали, що штатні викиди у формі $^{14}\text{CO}_2$ Чорнобильської АЕС сягали 2-3 ТБк на рік, у той

та дерево із зони впливу техногенного джерела викидів ^{14}C , досліджуваного нами раніше [4, 5]. У цій роботі ми вивчали матеріал дерева, що виросло на відстані близько 5 км від об'єкта, та порівнювали ці результати з отриманими раніше (рис. 1) (для дерева, що виросло на відстані близько 10 км). У всіх випадках зразки деревини було взято від сосни звичайної.

Методи. Вимірювання вмісту ^{14}C проводили традиційним методом на основі рідинно-сцинтиляційного підрахунку за допомогою спектрометрів Quantulus

1220™ виробництва Perkin Elmer Inc. та спеціальних тефлонових флаконів. Для досліджень використовували деревину щорічного приросту (річні кільця) сосни звичайної. Проби деревини відбирали гострим ножом із сегмента деревини стовбура, відокремлюючи рік за роком та порівнюючи залишок з контрольним сегментом. Для запобігання впливу смол, які мігрують у матеріалі деревини після її формування, проводили попередню обробку проб, при цьому маса сухого матеріалу становила 20-25 грамів. Смоли вимивали в екстракторі Сокслета протягом 5-6 годин, екстрагентом була суміш (1:1) етилацетату з етиловим спиртом. Очищену деревину обвуглювали у металевому стакані за температури 500°C з обмеженим доступом повітря. Бензол отримували у вакуумній бензолній лінії у результаті хімічних перетворень: вугілля + літій \rightarrow карбід літій \rightarrow ацетилен \rightarrow бензол [7]. Домішки у бензолі (зокрема воду) концентрували додаванням сірчаної кислоти, яку потім видаляли. Остаточне очищення бензолу проводили сублімаційною перегонкою. Сцинтиляційні добавки вносили у пляшечку з розрахунку $4,0 \text{ г}\cdot\text{л}^{-1}$ для PPO та $0,1 \text{ г}\cdot\text{л}^{-1}$ для POPOP [3-5].

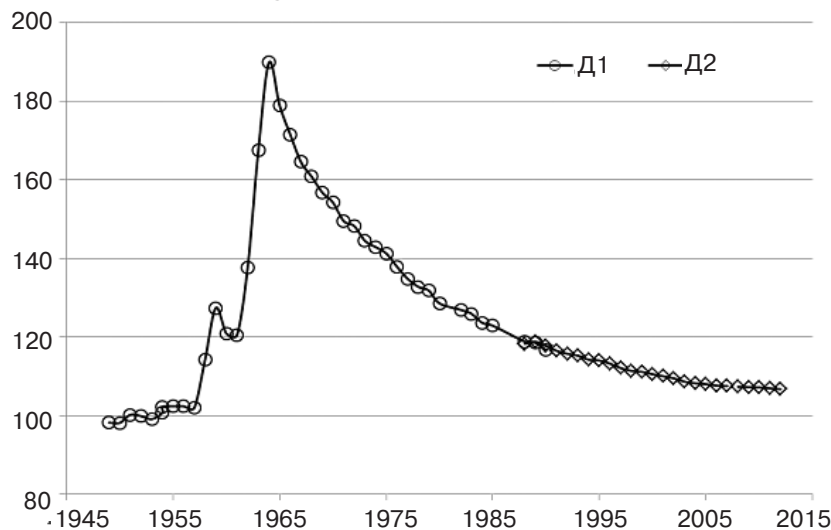
Рисунок 1
Коливання вмісту надлишкового ^{14}C ($\text{Бк} \cdot \text{кг}^{-1}$) в атмосфері поблизу техногенного джерела викиду ^{14}C (м. Томськ, Росія) [4, 5] на фоні глобальної зміни ^{14}C у повітрі Північної півкулі [6] за даними досліджень щорічного приросту деревини



час аварійні — до 50 ТБк; штатні викиди заводу з переробки ядерного палива сягали 30-45 ТБк на рік, або 450-620 ТБк за увесь час роботи.

Мета дослідження. Метою роботи було вивчення хронологічних коливань вмісту ^{14}C в атмосферному повітрі шляхом вимірювання його питомої активності у щорічному прирості дерев за фонових умов та за умов впливу об'єкта ядерно-енергетичного комплексу, а також порівняння даних просторового розподілу ^{14}C навколо об'єкта. Об'єкти дослідження — дерева, відібрані у Чернігівській області для відновлення фонових коливань

Рисунок 2
Рівні ^{14}C (рМС) у деревині річного приросту сосни звичайної (фонові рівні, обидва дерева Д1 і Д2 відібрані у Чернігівській області)



ON RETROSPECTIVE STUDY OF ^{14}C
IN THE ATMOSPHERE

**Buzinny M.G., Mikhailova L.L.,
Romanchenko M.A. Chyrkov V.S., Sakhno V.I.**
State Institution "O.M. Marzeiev Institute
for hygiene and medical ecology NAMSU"

The objective. To study ^{14}C content variation in the atmosphere by measuring the specific ^{14}C activity in the annual growth of trees for background conditions and under the effect of the nuclear-energy complex site as well as the comparison of the ^{14}C spatial distribution around the object.

Materials and methods. ^{14}C content measurements in the annual growth (tree rings) of pine wood for ^{14}C variation studies in the air for the time interval since the end of 40-th of the last century — the period when there have been the greatest fluctuations in radiocarbon. Research objects — annual pine wood growth. Trees for the study of background oscillations were selected in Chernigiv region and for the influence of anthropogenic emissions ^{14}C study were selected trees near the source of emissions ^{14}C , studied earlier. In the second case, we examined the wood material of tree that grew at a distance

of about 5 km from the site, and compared the results with those obtained previously for a tree that grew at a distance of about 10 km. Measurements were carried out at ^{14}C using a traditional method based on a liquid-scintillation counting. For this study used the charred wood annual increment, of which have been previously extracted resin material in a Soxhlet apparatus. Samples of benzene were measured using a Quantulus 1220TM LS spectrometer made by Perkin Elmer Inc.

Results. Technology used in the preparation of baseline studies of samples allows to obtain results similar to the direct measurements of ^{14}C in the air. Studies of samples taken in the area of nuclear facility influence showed the results concerted with previous studies of the impact of the object. Comparing the relevant research showed that the samples of the annual increment in some years have significant differences, confirmed by repeated studies. The differences can be explained by inappropriate spatial distribution at close distances from the object. Overall consistency of the data sets suggests that the earlier estimate of annual emissions and ^{14}C emissions for the time of work does not require the re-evaluation.

Результати. На рисунку 2 наведено результати, які показують хід змін вмісту ^{14}C у повітрі ($100 \text{ pMC} = 226 \text{ Бк} \cdot \text{кг}^{-1} \text{ C}$) за результатами досліджень деревини (Д1 і Д2) сосен, що виростили у Чернігівській області. Піки кривої відповідають особливостям змін вмісту ^{14}C в атмосферному повітрі, а виражений мінімум 1960-1961 років свідчить про високу якість очистки деревини.

На рисунках 3 та 4 наведено результати досліджень радіовуглецю у пробах річного приросту дерева в околицях антропогенного джерела викидів (на відстані близько 5 км), причому ці результати подано разом з результатами, які ми отримали раніше при дослідженні дерева на відстані близько 10 км [4, 5]. Як видно, особливо на рисунку 4, загальний хід динаміки зміни вмісту радіовуглецю повторюється, проте при дослідженні проб дерева на відстані 5 км від джерела за 1961-1968 рр., а також у 1977, 1980, 1989 роках проявилися певні особливості просторового розподілу ("роза вітрів"). Такі досить істотні коливання відносно інших років достовірно підтверджені повторним дослідженням відповідних

Рисунок 3
Надлишкові рівні ^{14}C (Бк \cdot кг $^{-1}$ C) у деревині річного приросту сосни звичайної, відібраної поблизу м. Томськ (Росія) (5 км та 10 км) [3, 4]

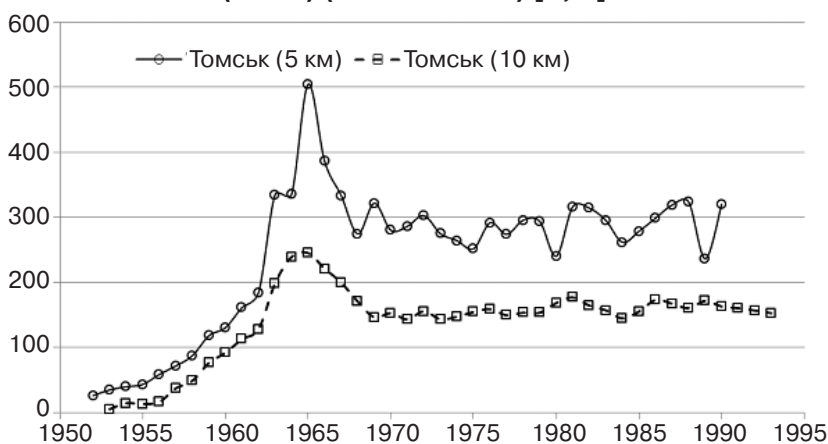
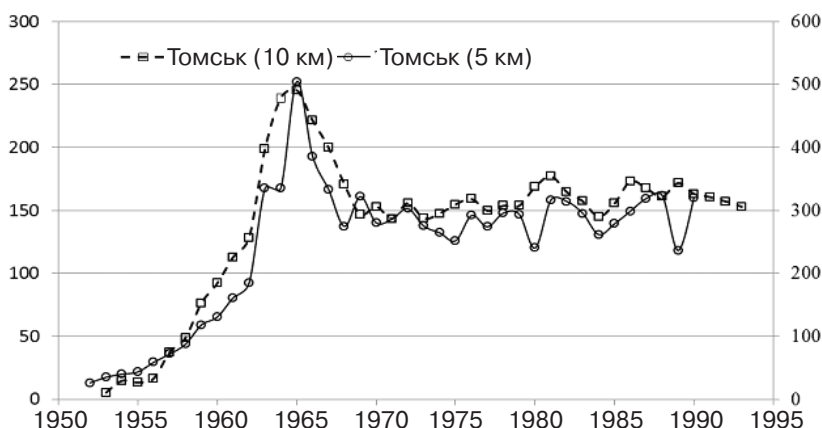


Рисунок 4
Надлишкові рівні ^{14}C (Бк \cdot кг $^{-1}$ C) у деревині річного приросту сосни, відібраної поблизу м. Томськ (Росія) (5 км та 10 км) [4, 5]. Дані для 5 км для зручності наведено за додатковою шкалою



проб. Для оцінки усередненого співвідношення активності щорічного приросту було побудовано частотний розподіл співвідношення активності ^{14}C щорічного приросту (рис. 5). Максимум розподілу відповідає умові однакової інтенсивності спаду активності на відстані від джерела, середнє значення становить $2,30 \pm 0,49$. Інші дані розподілу вказують на нерівномірності просторового розподілу та переносу газових викидів ^{14}C поблизу джерела.

Висновки

1. Результати дослідження проб щорічного приросту деревини показують, що досягнута якість попередньої підготовки проб деревини, яка включає очищення від смол в екстракторі Сокслета та обвуглювання, є прийнятною як для фонових проб, так і для проб у межах впливу джерела викидів ^{14}C .

2. Порівняння вмісту ^{14}C у пробах щорічного приросту деревини у зоні впливу джерела техногенних викидів ^{14}C на відстані 5 км та 10 км від джерела показує його узгодженість, тобто немає підстав проводити перегляд величини викидів ^{14}C за час роботи об'єкта [4, 5].

3. Відхилення, які спостерігаються в окремі роки, свідчать про нерівномірність просторового розподілу та переносу газових викидів ^{14}C на близькій відстані від джерела.

ЛІТЕРАТУРА

1. Stuiver M. A High-precision Calibration of the AD Radiocarbon Timescale / M. Stuiver // Radiocarbon. — 1982. — Vol. 24, № 1. — P. 1-26.

2. $\delta^{14}\text{CO}_2$ record from Vermont [Електронний ресурс] / I. Levin, H. Kromer, M. Schoch-Fischer et al. // A Compendium of Data on Global Change: OakRidge, Tenn., U.S.A; Carbon Dioxide Information Analysis Center; OakRidge National Laboratory, U.S.; Department of Energy, 1994. — Режим доступу: <http://cdiac.esd.ornl.gov/trends/co2/cent-verm.html>.

3. Бузынный М.Г. Уровни выбросов радиоуглерода объектов ядерного топливно-энергетического комплекса на территории бывшего СССР / М.Г. Бузынный // Зб. наук. праць Інституту ядерних досліджень. — 2003.

— № 1 (9). — С.110-119.

4. ^{14}C Analysis of Annual Tree Rings from The Vicinity of the Chernobyl NPP / M. Buzinny, I. Likhtarev, I. Los et al. // Radiocarbon. — 1998. — Vol. 40, № 1 — P. 373-379.

5. Ecological Chronology of Nuclear Fuel Cycle Sites / M. Buzinny, N. Kovaliukh, I. Likhtariov et al. // Radiocarbon. — 1995. — Vol. 37, № 2. — P. 469-473.

6. Kaimei D. Bomb-produced ^{14}C in Tree Rings / D. Kaimei, O. Youneng, C.Y. Fan // Radiocarbon. — 1992. — Vol. 34, № 3. — P. 753-756.

7. Skripkin V. Recent Developments in the Procedures Used at the SSCER Laboratory for the Routine Preparation of Lithium Carbide / V. Skripkin, N. Kovaliukh // Radiocarbon. — 1998. — Vol. 40, № 1. — P. 211-214.

REFERENCES

1. Stuiver M. Radiocarbon. 198; 24(1) : 1-26.

2. Levin I., Kromer H., Schoch-Fischer M. et al. $\delta^{14}\text{CO}_2$ Record from Vermont. In : A Compendium of Data on Global Change: OakRidge, Tenn., U.S.A: Carbon Dioxide Information Analysis Center, OakRidge National Laboratory, U.S. Department of Energy; 1994. Available at: <http://cdiac.esd.ornl.gov/trends/co2/cent-verm.html>.

3. Buzynny M.G. Scientific Papers of the Institute for Nuclear Research. 2003; 1 (9) : 110-119. (in Russian)

4. Buzinny M., Likhtarev I., Los I. et al. Radiocarbon. 1998; 40 (1) : 373-379.

5. Buzinny M., Kovaliukh N., Likhtariov I. et al. Radiocarbon. 1995; 37 (2) : 469-473.

6. Kaimei D., Youneng O., Fan C.Y. Radiocarbon. 1992; 34 (3) : 753-756.

7. Skripkin V., Kovaliukh N. Radiocarbon. 1998; 40 (1) : 211-214.

Надійшла до редакції 12.01.2014.

Автори вдячні за відбір проб нині покійному Валерію Дмитровичу Несвітайлу, який був ініціатором та спів-автором досліджень, присвячених вивченню радіовуглецевих викидів на Томському спецкомбінаті.

Рисунок 5
Частотний розподіл (N=34) співвідношення активності ^{14}C (за роками) щорічного приросту деревини для двох місць відбору проб

