

Академик А. П. ВИНОГРАДОВ, А. Л. ДЕВИРЦ, Э. И. ДОБКИНА,
Б. И. ОГОРОДНИКОВ, академик И. В. ПЕТРЯНОВ

СТРАТОСФЕРНЫЕ КОНЦЕНТРАЦИИ C^{14} В 1967—1969 гг.

Изучение изменений концентрации радиоуглерода в атмосфере, океане и биосфере после ядерных испытаний 1961—1962 гг. дает ценную информацию о динамике углеродного цикла. О радиоактивности тропосферной CO_2 за период с 1953 г. по 1971 г. сообщалось ранее ⁽¹⁾. Не меньший интерес представляют сведения о концентрациях C^{14} в стратосфере и изменениях искусственной радиоактивности углерода во времени.

В 1967—1969 гг. над средней частью Европейской территории СССР были выполнены полеты аэростатов на высоты от 12,5 до 31 км, во время которых на заданной высоте, путем вымораживания CO_2 в течение около одного часа в теплообменнике — ловушке, охлаждаемой жидким азотом, производился отбор проб на радиоуглеродный анализ. Подготовка ловушки и проведение полетов осуществлялись так же, как было описано в ⁽²⁾. После приземления аппаратуры двуокись углерода размораживалась и направлялась в барбатеры с 20% раствором КОН. Поглощение CO_2 было практически полным в первом барбатере, так как во втором последовательно установленном барбатере CO_2 обнаруживался лишь в редких случаях. С помощью свежеприготовленного 25% раствора $BaCl_2$ высаживался $BaCO_3$, который затем отфильтровывался, промывался и после сушки взвешивался для определения (с учетом загрязнения щелочи карбонатом) количества CO_2 , отобранного за полет. Приготовленные таким путем образцы хранились в герметичных полиэтиленовых пакетах до радиометрического анализа.

В зависимости от количества выделенного $BaCO_3$ анализ по C^{14} проводился газовым, либо сцинтилляционным вариантами счета. В первом случае, когда $BaCO_3$ было мало, образец превращался в CO_2 и счет велся в пропорциональном счетчике ⁽³⁾, во втором — из больших навесок образца (более 100 г) готовился бензол. Счет бензола велся на одноканальной сцинтилляционной установке, описанной в работе ⁽⁴⁾ и используемой для возрастных определений. Приводимые результаты измерения β^- -частиц C^{14} получены с ошибкой в пределах от 1% до $\pm 2\%$.

Данные по измерению радиоактивной двуокиси углерода, собранной на разных высотах, представлены в табл. 1 и на рис. 1. В предпоследней колонке таблицы даются значения избытка количества атомов C^{14} в 1 г воздуха по сравнению с равновесным содержанием радиоуглерода до начала ядерных испытаний. Последняя величина или естественный «фон» атмосферы принимался равным $74 \cdot 10^5$ атомов C^{14} на 1 г воздуха ⁽⁵⁾.

Вертикальные профили, представленные на рис. 1 для высот от 19,5 км до ~31 км, относятся ко времени сбора образцов март — июль 1968 г. и март — октябрь 1969 г.; в 1967 г. отбор проб проводился только в октябре. Для наглядности точки каждого года на рисунке соединены между собой. Можно считать, что намечаются слабо выраженные пики на высоте около 25 км в 1968 и 1969 гг. и возможно значительный пик в 1967 г.

Наиболее полные сведения представлены в работе для высот около 24 и 31 км, где было взято большее число образцов за исследуемый период времени. Несмотря на первоначально резкое различие в количестве атомов C^{14} в 1 г воздуха в 1967 г. для высоты ~25 км, примерно через

Результаты экспериментов по определению концентраций C^{14} в стратосфере Северного полушария

Лабораторный номер пробы	Дата отбора	Средняя высота полета, км	Избыток количества атомов C^{14} в 1 г воздуха, 10^{-5}	Счетное вещество	Лабораторный номер пробы	Дата отбора	Средняя высота полета, км	Избыток количества атомов C^{14} в 1 г воздуха, 10^{-5}	Счетное вещество
Mo-742	07.10.67	30,7	235	CO_2	Mo-736	30.07.68	31,2	183	CO_2
Mo-512	25.10.67	23,3	371	C_6H_6	Mo-547	27.03.69	12,5	119	C_6H_6
Mo-514	06.03.68	25,4	197	C_6H_6	Mo-549	29.05.69	30,7	166	C_6H_6
Mo-738	06.03.68	25,4	195	CO_2	Mo-531	01.07.69	24,8	165	C_6H_6
Mo-517	23.03.68	19,5	150	C_6H_6	Mo-740	04.07.69	20,9	155	CO_2
Mo-515	12.04.68	19,8	187	C_6H_6	Mo-532	23.08.69	31,0	157	C_6H_6
Mo-739	23.05.68	13,0	93	CO_2	Mo-526	05.09.69	13,0	38	C_6H_6
Mo-516	11.06.68	12,9	108	C_6H_6	Mo-530	21.10.69	22,4	156	C_6H_6
Mo-518	22.06.68	13,0	78	C_6H_6	Mo-741	21.10.69	22,4	159	CO_2

4 месяца наблюдалось выравнивание концентрации C^{14} на высотах около 24 и 31 км, и впоследствии почти синхронно во времени продолжалось непрерывное уменьшение активности. В 1968 и 1969 гг. подобная картина имела место и на высотах от 19,5 до 22,4 км.

Приводимые данные для средних широт Северного полушария позволяют сделать только грубые оценки по среднему времени пребывания CO_2 в верхней стратосфере. Это связано с тем, что времена полувыведения по данным 1967—1968 гг. получаются значительно короче для высот 24 и 31 км, чем по результатам 1968—1969 гг. Вероятнее всего различие обусловлено дополнительными поступлениями C^{14} в стратосферу в 1967 г.

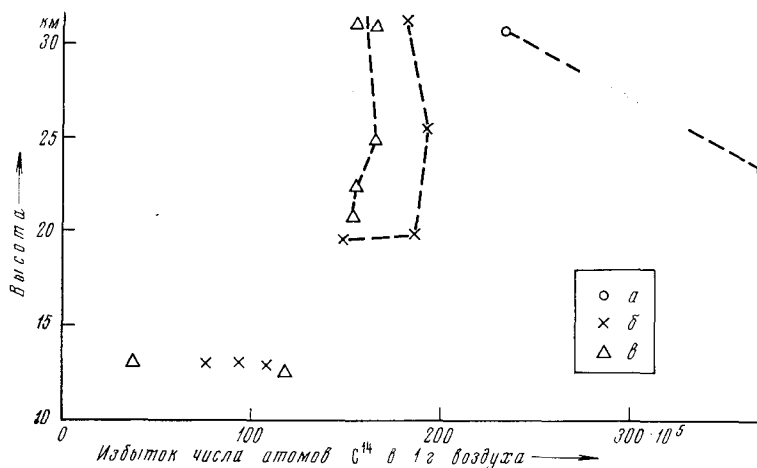


Рис. 1. Распределение C^{14} в стратосфере на разных высотах в 1967—1969 гг. а — 1967 г., б — 1968 г., в — 1969 г.

(⁶), что затрудняет провести вычисления точнее. На основании данных по избытку радиоуглерода в 1968 и 1969 гг. среднее время пребывания CO_2 в Северном полушарии для верхней стратосферы составляет около 7 лет. Среднее время пребывания CO_2 в тропосфере до перехода в океан больше и по более точным подсчетам составляет $9,9 \pm 0,3$ лет (¹). Ряд исследователей получили экспериментальные значения для среднего времени пребывания молекулы CO_2 в стратосфере в интервале от 2 (⁷) до 5—6 лет

(⁸). При анализе «ящичной» модели обменного бассейна углерода установлена величина $2 \pm 0,5$ лет (⁹). Таким образом, наша оценка среднего времени пребывания близка к значению (⁸).

Самостоятельный интерес представляют данные 1968—1969 гг., относящиеся к сборам CO_2 на высотах от 12,5 до 13 км. Здесь концентрации C^{14} характеризуют обмен воздушных масс между нижней стратосферой и тропосферой в зависимости от времени года и соответствующего колебания высоты границы тропосфера — тропопауза — стратосфера. В рассматриваемой серии сборов образец Мо-526 имеет самую низкую активность. Если ее сравнить с нашими результатами по C^{14} в приземной тропосфере в те же годы, то δC^{14} оказываются примерно одинаковыми. Вследствие колебаний высоты тропопаузы тропосферные концентрации радиоуглерода оказываются в нижних слоях стратосферы.

Рассмотрение экспериментальных результатов по концентрациям C^{14} в верхней и нижней стратосфере позволяет сделать заключение о систематическом убывании радиоактивности атмосферной CO_2 после ядерных испытаний 1961—1962 гг., несмотря на продолжающиеся поступления C^{14} в верхние слои. Если в сентябре — октябре 1963 г. в стратосфере северного полушария избыток количества атомов C^{14} в 1 г воздуха составлял около 10^8 (⁷) на высоте около 25 км, то в 1968 и 1969 гг. уровень концентрации радиоуглерода на той же высоте снизился соответственно в 4,8 и 5,7 раз.

На основании полученных данных период полувыведения CO_2 из верхней стратосферы равен около 5 лет. Последняя величина больше, чем сообщалась другими авторами (⁹), но не противоречит наличию в стратосфере в исследуемые годы значительного количества C^{14} за счет ядерных испытаний прошлых лет по сравнению с космическим уровнем активности радиоуглерода.

Авторы выражают благодарность В. И. Кожевину, В. И. Корпусову, В. И. Скитовичу, Г. Т. Рассомахину, Л. К. Гандуриной, Н. А. Соколову, Н. П. Петухову, Н. И. Прокофьевой за помощь при проведении экспериментов.

Институт геохимии и аналитической химии
им. В. И. Вернадского
Академии наук СССР

Поступило
11 V 1972

Физико-химический институт
им. Л. Я. Карпова
Москва

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

- ¹ А. П. Виноградов, А. Л. Девирц, Э. И. Добкина, Геохимия, № 2 (1972). ² Б. И. Огородников, В. И. Кожевин, И. В. Петрянов, ДАН, 200, № 6, 1333 (1971). ³ А. П. Виноградов, А. Л. Девирц, Э. И. Добкина, ДАН, 168, 900 (1966). ⁴ А. Л. Девирц, Э. И. Добкина и др., Геохимия, № 6 (1972). ⁵ HASL-166, Carbon-14 Measurements in the Atmosphere, U.S. At. Energy Commission, 1966. ⁶ K. Telegadas, J. Geophys. Res., 76, № 21, 5018 (1971). ⁷ H. W. Feely, H. Seitz et al., Tellus, 18, № 2, 316 (1966). ⁸ F. Hagemann, J. Gray et al., Science, 130, № 337, 542 (1959). ⁹ R. Nydal, J. Geophys. Res., 73, № 12, 3617 (1968).