

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ
НАУКИ

Институт физики атмосферы им. А.М. Обухова Российской академии наук
Отдел исследований состава атмосферы
Лаборатория газовых примесей атмосферы



На правах рукописи

УДК 551.510.4, 551.588.6, 551.588.74

Березина Елена Викторовна

**ПРИЗЕМНЫЕ КОНЦЕНТРАЦИИ И ПОТОКИ РАДОНА-222
НА ТЕРРИТОРИИ РОССИИ, И ОЦЕНКИ БИОГЕННЫХ
ЭМИССИЙ УГЛЕКИСЛОГО ГАЗА, МЕТАНА И СУХОГО
ОСАЖДЕНИЯ ОЗОНА**

Специальность 25.00.29 – Физика атмосферы и гидросферы

Диссертация на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:

член-корреспондент, профессор, д.ф.-м.н.

Н.Ф. Еланский

Москва 2014

Оглавление

Введение.....	4
Глава 1. Радон в атмосфере.....	23
1.1. Свойства ^{222}Rn , его источники и стоки в атмосфере.....	23
1.1.1. Радон и его свойства.....	23
1.1.2. Источники ^{222}Rn в атмосфере.....	24
1.1.2.1. Почва как основной источник ^{222}Rn	24
1.1.2.2. Содержание ^{222}Rn в природных водах.....	35
1.1.2.3. Антропогенные источники ^{222}Rn	36
1.1.3. Эмиссии ^{222}Rn из почвы в атмосферу.....	37
1.1.4. Вертикальное распределение радона в атмосфере.....	43
1.1.5. Сток ^{222}Rn в атмосфере.....	48
1.2. Измерения концентрации ^{222}Rn в атмосфере.....	49
1.3. Пространственные и временные вариации приземной концентрации ^{222}Rn	53
1.3.1. Пространственная изменчивость приземного ^{222}Rn	53
1.3.2. Суточные вариации концентрации ^{222}Rn	56
1.3.3. Сезонные вариации концентрации ^{222}Rn	57
1.4. Выводы к главе 1.....	58
Глава 2. Приземная концентрация ^{222}Rn над территорией России по измерениям в экспедициях TROICA.....	61
2.1. Измерения на передвижной лаборатории в экспедициях TROICA.....	61
2.2. Пространственные вариации приземной концентрации ^{222}Rn над территорией России.....	68
2.3. Временная изменчивость приземной концентрации ^{222}Rn	75
2.3.1. Суточные и сезонные вариации.....	75

2.3.2. Эффект сезонного протаивания почвы на изменение приземной концентрации ^{222}Rn	77
2.4. Выводы к главе 2.....	79
Глава 3. Количественная оценка потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу по измерениям в экспедициях TROICA.....	82
3.1. Метод оценки потока ^{222}Rn	82
3.2. Анализ пространственной и временной изменчивости потоков ^{222}Rn	89
3.3. Выводы к главе 3.....	95
Глава 4. Использование ^{222}Rn для оценки биогенных эмиссий CO_2 , CH_4 и сухого осаждения O_3 над территорией России.....	97
4.1. Метод оценки потоков CO_2 , CH_4 и O_3	97
4.1.1. Отбор данных для расчётов CH_4 , CO_2 , O_3	97
4.1.2. Расчёт потоков CH_4 , CO_2 и O_3	103
4.2. Региональные особенности потоков CH_4 , CO_2 и O_3 над территорией России.....	104
4.2.1. Биогенные эмиссии CH_4 и CO_2	104
4.2.2. Сухое осаждение O_3	106
4.3. Выводы к главе 4.....	111
Заключение.....	113
Литература.....	117

Введение

Газ радон-222 (^{222}Rn) является одним из членов радиоактивного распада урана-238 (^{238}U), рассеянного практически повсеместно в земной коре. Основным источником ^{222}Rn в атмосфере является почва, и его поток из почвы зависит от свойств и состояния почвы. На ^{222}Rn приходится примерно 50–55% дозы облучения, которую ежегодно получает каждый житель Земли, однако исследования показали, что в отдельных регионах радоновое облучение может превышать средние величины на несколько порядков [Радон, 2008]. Дочерние продукты распада (ДПР) ^{222}Rn представляют собой не газы, а твердые вещества, которые сами по себе являются мощными источниками альфа-излучения. При полном радиоактивном распаде (до ^{210}Pb) ^{222}Rn создаёт эффективную эквивалентную дозу облучения в 20 раз большую, чем его короткоживущий изотоп, β – излучатель, ^{220}Rn (торон, $T_{1/2} = 54,5$ сек.), поэтому ^{222}Rn считают примерно в 20 раз опаснее ^{220}Rn (Радон, 2008; Уткин, 2000). Из-за значительного влияния ^{222}Rn и его ДПР на здоровье человека мониторинг их содержания в приземном воздухе проводится почти во всех странах мира [UNSCEAR, 1982].

Преобладающий сток ^{222}Rn в атмосфере – радиоактивный распад. ^{222}Rn химически инертен, а время его жизни в атмосфере ($T_{1/2} = 3,8$ дней) сравнимо с временами жизни многих атмосферных газов (NO_x , SO_2 , CO , O_3), водяного пара и аэрозолей, а также во многих случаях с временными масштабами атмосферной динамики [Zahorowski et al., 2004]. Эти свойства делают радон полезным трассером для исследований различных атмосферных процессов: очага формирования и траектории

движения воздушных масс [Prospero et al., 1970; Wilkniss et al., 1974; Dörr et al., 1983; Lee and Larsen, 1997]; перемешивания в приземном слое [Jacobi and Andre, 1963; Cohen et al., 1972; Kataoka et al., 1998]; прогнозирования землетрясений [Fleischer et al., 1981; Magro-Campero et al., 1980; Planinic et al., 2004]; изучения физических характеристик и времени жизни аэрозолей в атмосфере [Junge, 1963; Martell and Sweder, 1984]; исследования атмосферного электричества [Roffman, 1972; Wilkening et al., 1966; Oberlander, 2002, Березина, 2010], а также для оценки эмиссий климатически активных газов: CH₄ и CO₂ [Dörr et al., 1983; Gaudry et al., 1990, Levin et al., 1999; Moriizumi et al., 1996; Schmidt et al., 1996; Duenas et al., 1999; Biraud et al., 2000; Hirsch, 2007], N₂O [Biraud et al., 2000; Conen et al., 2002; Messenger et al., 2008; Corazza et al., 2011], CO [Messenger et al., 2008], H₂ [Yver et al., 2009].

²²²Rn часто используется для валидации атмосферного транспорта в климатических моделях [Rasch, 2000; Szegvary et al., 2007]. Однако из-за недостатка данных о пространственных и временных вариациях потока ²²²Rn, предполагается его равномерное пространственное распределение со средним континентальным значением ≈ 1 атом см² с⁻¹ (0.021 Бк м⁻² с⁻¹) с поверхности непокрытой снегом или льдом и ≈ 0 с поверхности океана [Hirao et al., 2010; Conen and Robertson, 2002]. Тем не менее, поток ²²²Rn широко варьирует в пространстве и во времени [Turekian et al., 1977; UNSCEAR, 1982]. Данных о приземной концентрации и потоке ²²²Rn над территорией России [Milin et al., 1967; Kirichenko, 1970; Yakovleva, 2003; Тарасов, 2008] не достаточно для определения пространственной и временной изменчивости над обширной территорией России с

различными геологическими и климатическими особенностями. Поэтому, получение таких данных является весьма актуальным.

Широкое распространение за рубежом получил радоновый трассерный метод (radon-calibrated flux technique), который используется для количественной оценки эмиссий парниковых газов, таких как CO₂, CH₄ и O₃ [Dörr et al., 1983; Levin, 1987; Gaudry et al., 1990, Levin et al., 1999; Moriizumi et al., 1996; Schmidt et al., 1996; Biraud et al., 2000; Messenger et al., 2008; Laan et al., 2009], характеризующихся сложным распределением источников и стоков в атмосфере. Оценка баланса этих климатически активных газов в атмосфере, играющих большую роль в химии атмосферы и глобальных климатических процессах, необходима не только для понимания процессов взаимодействия атмосферы с экосистемами, но и для калибровки и верификации климатических и транспортно-химических атмосферных моделей. Трудности получения надежных оценок потоков CH₄, CO₂ и O₃ связаны со сложным распределением их источников и стоков в атмосфере.

Существуют различные методики определения потоков парниковых газов по данным прямых измерений их приземных концентраций. Широкое распространение получили камерный метод, основанный на изоляции обмена с атмосферой пробной площадки и регистрации изменений концентрации исследуемого газа в камере [Whalen и Reeburgh, 1990; Wickland et al., 2006; Glagolev et al., 2010] и метод турбулентной ковариации [Wesely et al., 1982; Замолодчиков и др., 2005]. Сухое осаждение O₃ получают также градиентным методом (по измерениям вертикальных профилей концентрации озона и метеорологических параметров [Droppo, 1985; Padro, 1996; Wesely and

Hicks, 2000]. Однако, обобщение одиночных измерений в масштабах отдельных регионов и экосистем в целом, представляет собой большую проблему, поскольку величины потоков обнаруживают сильную зависимость от конкретных свойств приповерхностного слоя почвы и метеорологических условий [*Takakai et al., 2008; Денисов и др., 2010; Денисов и др., 2011, Zahorowski et al., 2004*]. В России биогенные эмиссии CH_4 измерялись над болотами и увлажненными почвами Западной Сибири [*Tohjima et al., 1994; Panikov and Dedysh, 2000; Glagolev et al., 2011*], над тундрой на севере Центральной Сибири [*Wille et al., 2008; Sachs et al., 2010*]. Измерения биогенных эмиссий CO_2 проводились в экосистемах лиственных [*Masyagina et al., 2006; Sawamoto et al., 2001*] и сосновых лесов [*Shibistova et al., 2002*] Западной и Центральной Сибири, в степных экосистемах Южного Забайкалья [*Чимитдоржиева и др., 2010*]. Измерения и моделирование сухого осаждения O_3 проводились в Европе и США [*Wesely et al., 1982; Rannik et al., 2009; Tang, 2009; Wu et al., 2011*], в том числе ночью [*Pio et al., 2000; Zhang et al., 2002; Tuzet et al., 2011*]. Измерения сухого осаждения O_3 над территорией России представлены в [*Шумский и Беликов, 2012; Маркова, 2003; Еланский и др., 1995*]. В целом, однако, измерения потоков парниковых газов на территории России носят эпизодический характер, что сильно затрудняет регионализацию получаемых на их основе оценок. Радоновый трассерный метод стал альтернативным методом, позволяющим получать региональные и глобальные количественные оценки потоков парниковых газов, связанные с подстилающей поверхностью.

Радоновый трассерный метод заключается в сравнении одновременно измеряемых концентраций двух газов: газа-трассера (^{222}Rn) с известными источниками и стоками, и газа, поток которого требуется определить. Благодаря своим свойствам ^{222}Rn является особенно удобным атмосферным трассером, когда требуется выделить вклад локальных эмиссий и стоков на подстилающую поверхность на фоне адвективного переноса. Зная поток ^{222}Rn из почвы, можно оценить потоки исследуемых газов, выделив коррелированную с радоном составляющую по результатам одновременного измерения их приземных концентраций [Moriizumi *u др.*, 1996; Schmidt *u др.*, 1996; Martens *et al.*, 2004; Hirish, 2007; Oberlander *et al.*, 2002]. В данной диссертационной работе представлено использование радонового трассерного метода для оценки биогенных эмиссий CO_2 и CH_4 из наземных экосистем (далее биогенные эмиссии) и сухого осаждения O_3 на подстилающую поверхность (далее сухое осаждение O_3) во время ночных приземных инверсий температуры. Под биогенными эмиссиями CO_2 понимается его выделение в атмосферу из почвы в процессе жизнедеятельности почвенных микроорганизмов и животных, наземных частей растений и корневой системы, а также при разложении органического вещества микроорганизмами и в результате химических реакций неорганических веществ [Kudeyarov, 2010]. Биогенные эмиссии CH_4 в основном связаны с выделением CH_4 из увлажненных почв (болот, тундры, зоны вечной мерзлоты), где он образуется при разложении органического вещества анаэробными микроорганизмами [WMO, 2010].

Таким образом, информация о пространственных и временных вариациях концентрации и потока ^{222}Rn полезна не только для оценки

риска его радиационного влияния на здоровье населения России, но и для исследования различных атмосферных процессов, в том числе для валидации моделей атмосферного переноса и корректной оценки пространственного распределения и мощности природных и антропогенных источников и стоков климатически активных газов.

Целью данной работы является количественная оценка потоков ^{222}Rn из почвы в атмосферу над континентальной территорией России по данным прямых измерений приземной концентрации ^{222}Rn в экспедициях TROICA, и использование полученных данных о концентрациях и потоках ^{222}Rn для количественной оценки биогенных эмиссий CO_2 , CH_4 и сухого осаждения O_3 для различных регионов России, в различные сезоны измерений.

Основные задачи исследования:

1. Анализ пространственных и временных вариаций концентрации ^{222}Rn в приземном слое атмосферы по данным измерений с передвижной лаборатории вдоль Транссибирской магистрали (Москва – Владивосток – Москва).

2. Определение потоков ^{222}Rn из почвы в атмосферу для различных регионов России по данным измерений его приземной концентрации и температурной стратификации пограничного слоя атмосферы.

3. Количественные оценки биогенных эмиссий CO_2 , CH_4 и сухого осаждения O_3 для различных регионов России в различные сезоны с использованием радонового метода.

Методы исследования.

Для измерения концентрации примесей в приземном воздухе и метеорологических параметров использовались приборы, удовлетворяющие требованиям Глобальной службы атмосферы (GAW WMO). Калибровка газоанализаторов проводилась регулярно с использованием эталонных смесей Института химии Макса Планка (Германия) и ВНИИМ им. Д.И. Менделеева (Россия).

Анализ данных одновременных измерений приземных концентраций ^{222}Rn , CO_2 , CH_4 , O_3 , вертикальных профилей температуры и других данных, необходимых для решения поставленных задач (приземные концентрации CO и NO , метеорологические характеристики, дневниковые записи условий наблюдений) проводился с помощью программного обеспечения Microsoft Excel, Visual Basic, C#, Origin Pro, Statistica, Arc View.

Поток ^{222}Rn рассчитывался с помощью специально разработанной математической модели, основанной на уравнении диффузии.

Научная новизна работы.

- Впервые проанализированы и систематизированы данные измерений приземной концентрации ^{222}Rn над обширными континентальными районами России вдоль Транссибирской магистрали от Москвы до Владивостока.
- Выявлены локальные и мезомасштабные особенности пространственного распределения концентрации ^{222}Rn , ее сезонные и суточные изменения.
- Предложен метод расчёта потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу, основанный на накоплении ^{222}Rn в толще пограничного слоя атмосферы в условиях приземной инверсии температуры по данным

измерений на передвижной лаборатории.

- Впервые представлены потоки ^{222}Rn из почвы в атмосферу для обширной континентальной территории России с различными геологическими и климатическими особенностями и для разных сезонов.

- Впервые получены количественные оценки биогенных эмиссий CO_2 , CH_4 и сухого осаждения O_3 для континентальных районов России с различными ландшафтными и климатическими условиями в разные сезоны наблюдений.

Научная и практическая значимость.

Выполнены исследования детальной структуры распределения концентрации ^{222}Rn и его потоков из почвы на обширной территории. Изучены механизмы ее временной изменчивости и связи с температурной стратификацией пограничного слоя атмосферы.

Показана возможность применения радонового метода для оценки потоков климатически активных газов на основе данных непрерывных одновременных измерений, полученных в экспедициях на передвижной лаборатории. Это позволило впервые выполнить количественные оценки CH_4 и CO_2 из наземных экосистем, а также сухого осаждения O_3 для континентальных регионов России с различными ландшафтными и климатическими условиями в различные сезоны.

Представленные данные о концентрациях и потоках ^{222}Rn из почвы в атмосферу могут быть использованы для решения различных задач в области физики и химии атмосферы, экологии, геологии и здравоохранения. Полученные значения потоков ^{222}Rn , парниковых газов и стока O_3 могут быть полезны для верификации региональных и

глобальных климатических моделей, а также для валидации параметров атмосферного переноса в транспортно-химических моделях. Результаты работы в значительной мере восполняют дефицит информации о пространственных и сезонных вариациях потоков парниковых газов в континентальном масштабе.

Защищаемые положения.

1. Характеристики пространственной и временной изменчивости приземной концентрации ^{222}Rn вдоль Транссибирской магистрали от Москвы до Владивостока, полученные по данным измерений в экспедициях TROICA в 1999 - 2008 гг.

2. Метод определения потоков ^{222}Rn из почвы в атмосферу, основанный на накоплении ^{222}Rn в толще пограничного слоя атмосферы в условиях приземной инверсии температуры.

3. Значения потоков ^{222}Rn из почвы в атмосферу для различных регионов России в различные сезоны.

4. Количественные оценки биогенных эмиссий CO_2 , CH_4 и сухого осаждения O_3 для обширных континентальных районов России с различными ландшафтными и климатическими условиями в различные сезоны, полученные с использованием радонового метода.

Личный вклад автора.

Автор принимал активное участие в анализе и интерпретации данных наблюдений, полученных в экспедициях TROICA, в разработке метода оценки потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу, постановке и проведении численных экспериментов, интерпретации полученных результатов. Расчёт потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу, а также биогенных эмиссий CO_2 , CH_4 и сухого осаждения O_3 проводился

непосредственно автором.

Апробация работы.

Результаты работы докладывались автором на Всероссийской школе - конференции молодых ученых: "Состав атмосферы. Атмосферное электричество. Климатические эффекты" (Нижний Новгород, 2007, 2010 гг.; Борок, 2008 г.; Звенигород, 2009 г.); на Всероссийской конференции "Развитие системы мониторинга состава атмосферы (РСМСА)" (Москва, 2007 г.); на 2-м международном симпозиуме ACCENT "Изменение состава атмосферы" (Урбино, Италия, 2007 г.); на международной конференции по радиозэкологии и радиоактивности окружающей среды (Берген, Норвегия, 2008 г.); на Генеральной Ассамблее Европейского геофизического общества (European Geophysical Union, EGU, Вена, Австрия, 2009 г.); на научной международной конференции РЕТГА "Загрязнение окружающей среды – очистка воздуха" (Прага, Чехия, 2011 г.).

Основные результаты диссертации опубликованы в 19 работах, из которых 5 вышли в отечественных и зарубежных рецензируемых журналах, рекомендованных ВАК.

Структура и объём диссертации. Диссертационная работа состоит из введения, четырёх глав, заключения и списка литературы. Рукопись содержит 136 страниц, 10 рисунков и 11 таблиц, список литературы из 146 наименований.

Содержание диссертации.

Во **введении** приводится краткий обзор известных по теме диссертации работ, обосновывается актуальность исследований пространственных и временных вариаций приземной концентрации ^{222}Rn

и его потоков из почвы в атмосферу и его использования для получения количественных оценок региональных потоков парниковых газов над обширной территорией России. Сформулированы цель и задачи и перечислены основные результаты работы. Отмечается новизна и значимость полученных результатов, а также личный вклад автора.

В главе 1 приводится литературный обзор основных свойств ^{222}Rn , его источников и стоков в атмосфере, методов измерения концентрации ^{222}Rn в атмосферном воздухе, пространственных и временных вариациях ^{222}Rn в приземном слое атмосферы. **В разделе 1.2** подробно описаны механизмы образования, распределения и миграции ^{222}Rn в почве, являющейся основным источником ^{222}Rn в атмосфере, и факторы, влияющие на эти процессы. Представлена информация о содержании ^{222}Rn в природных водах и его антропогенных источниках в атмосфере. Описаны основные факторы, влияющие на поток ^{222}Rn из почвы в атмосферу (геологические особенности территории, свойства и состояние приповерхностного слоя почвы, влияние метеорологических параметров атмосферы (температуры, атмосферного давления, осадков). Приведены данные о концентрациях и потоках ^{222}Rn в различных регионах мира. Описаны факторы, влияющие на вертикальное распределение ^{222}Rn в атмосфере. **В разделе 1.2** приведены методы измерения приземной концентрации ^{222}Rn , подробно описан метод фильтрования, используемый при измерении приземной концентрации ^{222}Rn в экспедициях TROICA. **В разделе 1.3** приводится анализ литературы о пространственных и временных вариациях ^{222}Rn в приземном слое и факторах, обуславливающих эти вариации. Суточный ход приземной концентрации ^{222}Rn обусловлен, прежде всего, суточной

изменчивостью атмосферного турбулентного перемешивания. Устойчивая атмосферная стратификация (инверсии температуры) способствует накоплению ^{222}Rn в приземном воздухе и росту его приземной концентрации. Сезонная изменчивость приземной концентрации ^{222}Rn определяется изменчивостью метеорологических параметров атмосферы (температурной стратификацией атмосферы, атмосферными осадками) и состоянием почвы (температурой, промерзанием и оттаиванием).

В главе 2 анализируются данные измерений приземной концентрации ^{222}Rn в экспедициях TROICA на передвижной лаборатории вдоль Транссибирской магистрали по маршруту Москва-Владивосток-Москва в различные сезоны 1999 - 2008 гг. **В разделе 2.1** представлена информация об экспедициях TROICA, описаны маршруты и периоды измерений, а также приборы, которые использовались для измерения приземных концентраций исследуемых газов, метеорологических параметров и сопутствующих данных, необходимых для решения поставленных в работе задач. **В разделах 2.2 и 2.3** анализируется пространственная и временная изменчивость приземной концентрации ^{222}Rn по данным экспедиций TROICA.

Существенные вариации приземной концентрации ^{222}Rn вдоль Транссибирской железнодорожной магистрали обусловлены суточной изменчивостью атмосферной устойчивости. Наиболее высокие концентрации ^{222}Rn в приземном слое (до 75 Бк/м^3) в экспедициях TROICA обычно наблюдались ночью во время продолжительных и устойчивых инверсий температуры в горных регионах России и регионах с крупными тектоническими разломами, Центральной и Восточной

Сибири, на Дальнем Востоке. Полученные в экспедициях TROICA данные хорошо согласуются с данными карты радоноопасности России [Maximovsky et. al., 1996]. Наиболее высокие средние дневные концентрации ^{222}Rn , отражающие, главным образом, влияние геологических особенностей исследуемой территории и локальных антропогенных источников ^{222}Rn , получены на Дальнем Востоке ($7,0 \pm 1,7$ и $7,3 \pm 5,8$ Бк/м³ весной и летом, соответственно) и в Центральной Сибири ($5,9 \pm 4,3$ и $6,8 \pm 5,2$ Бк/м³ весной и летом, соответственно). Однако, осенью 2005 г. высокие концентрации ^{222}Rn отмечались также на ЕТР и в Западной Сибири ($13,3 \pm 6,4$ и $17,9 \pm 10,6$, соответственно). Причина такого нетипичного для данных регионов роста концентрации ^{222}Rn связана с двумя факторами: устойчивыми антициклональными условиями с мощными и продолжительными (до 16 часов) инверсиями температуры, имевшими место во время наблюдений осенью 2005 г. в данных регионах (что подтверждают средние суточные значения концентрации ^{222}Rn) и влиянием локальных антропогенных источников ^{222}Rn . В целом, осенью концентрация ^{222}Rn выше, чем летом и весной для всех регионов России во все сезоны наблюдений.

Отмечен существенный рост приземной концентрации ^{222}Rn (примерно в 3 раза) с ростом глубины сезонного протаивания почвы с лета 1999 г. по осень 2005 г. в регионе Восточной Сибири, где распространена зона вечной мерзлоты, за счёт интенсивной миграции накопившегося в замёрзших грунтах ^{222}Rn в приповерхностный слой почвы и его последующей эксхалации в атмосферу.

В главе 3 проводится расчёт потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу над различными обширными регионами России по данным прямых

измерений на передвижной лаборатории в экспедициях TROICA. В разделе 3.1 описывается предложенный автором метод оценки потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу, основанного на накоплении ^{222}Rn в толще пограничного слоя атмосферы в условиях приземной инверсии температуры. Для расчётов использовалась математическая модель, основанная на нестационарном уравнении диффузии с переменным по высоте коэффициентом турбулентной диффузии. В разделе 3.2 проводится анализ полученных расчётов потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу. Отмечены значительные вариации полученных потоков ^{222}Rn над территорией России, от 29 ± 8 мБк м⁻² с⁻¹ до 95 ± 51 мБк м⁻² с⁻¹, в зависимости от геологических особенностей исследуемых регионов, а также времени года. Наиболее высокие потоки ^{222}Rn получены в горных регионах Центральной и Восточной Сибири и на Дальнем Востоке. В этих регионах почвенные эмиссии ^{222}Rn в 1,5 – 3 раза выше, чем на равнине.

Полученные оценки потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу хорошо согласуются с известными данными прямых измерений потока ^{222}Rn в различных регионах России и в 3-7 раз выше модельных оценок, представленных в литературе [*Schery and Wasiolek, 1998; Hirao et al, 2010; Szegvary et al., 2007*].

В главе 4 представлен расчёт биогенных эмиссий CO₂, CH₄ и сухого осаждения O₃ над обширными континентальными регионами России с помощью радонового трассерного метода по одновременным и непрерывным измерениям на передвижной лаборатории. В разделе 4.1 приводится описание радонового трассерного метода (radon-calibrated flux technique). Отмечена синхронность суточных вариаций приземных

концентраций всех исследуемых газов, обусловленное накоплением CH_4 , CO_2 и ^{222}Rn и, наоборот, сухим осаждением O_3 во время ночных приземных инверсий температуры. Для ночных эпизодов с инверсиями температуры при отсутствии антропогенных загрязнений (фоновые эпизоды) рассчитывались биогенные эмиссии CH_4 , CO_2 и сухое осаждение O_3 (сток и скорость сухого осаждения), а также соответствующие погрешности оценки.

В разделе 4.2 представлены полученные оценки потоков исследуемых парниковых газов для различных регионов России в различные сезоны измерений. Полученные биогенные эмиссии CH_4 максимальны летом в Западной Сибири ($0,77 \pm 0,60$ $\text{мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$) и на Дальнем Востоке ($0,87 \pm 0,52$ $\text{мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$), где расположены источники CH_4 : болота и увлажненные почвы, а CO_2 – в Восточной Сибири ($1,20 \pm 0,41$ $\text{мг м}^{-2}\text{с}^{-1}$), где расположены горные лиственничные леса (даурская лиственница). Активная вырубка леса в Восточном Забайкалье, а также рост температуры почвы, обусловленный потеплением климата в 2007 году, могли привести к росту биогенных эмиссий CO_2 в данном регионе. Весной и осенью эмиссий CH_4 и CO_2 в среднем в 4-8 раз меньше, чем летом, что, вероятно, связано с низкой температурой почвы, наличием снежного покрова и замедлением процессов дыхания растений весной и осенью.

Ночной сток O_3 максимален весной на Урале: $0,19 \pm 0,17$ $\text{мг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ и в районе Красноярска: $0,08 \pm 0,05$ $\text{мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ и летом в Центральной Сибири (участок Тайшет – Иркутск) - $0,07 \pm 0,01$ $\text{мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$, а скорость его сухого осаждения максимальна летом в Восточной Сибири - $0,33 \pm 0,21$ см/с^{-1} и на Дальнем Востоке - $0,32 \pm 0,25$ см/с^{-1} . В целом, сухое осаждение O_3 над обширной территорией России летом выше, чем весной и осенью.

Полученные оценки биогенных эмиссий CH_4 и сухого осаждения O_3 согласуются с опубликованными в литературе данными для ландшафтных и сезонных условий, подобных тем, что наблюдались в экспедициях TROICA. Полученные биогенные эмиссии CO_2 находятся на верхней границе или на 30-40% выше значений, представленных в литературе. Для лиственных лесов Восточного Забайкалья полученные эмиссии CO_2 в среднем в 2,5 раза превышают литературные значения. Это может быть связано с тем, что полученные оценки приходятся на ночное время суток и обусловлены дыханием лесной растительности, а также с активной вырубкой леса в Восточном Забайкалье.

В заключении приводятся основные результаты диссертационной работы:

1. Существенные вариации приземной концентрации ^{222}Rn вдоль Транссибирской железнодорожной магистрали от Москвы до Владивостока обусловлены суточной изменчивостью устойчивости пограничного слоя атмосферы. Наиболее высокие приземные концентрации ^{222}Rn (до 75 Бк/м³) в экспедициях TROICA обычно наблюдались ночью во время мощных и продолжительных инверсий температуры. Вследствие слабого турбулентного перемешивания (при устойчивой температурной стратификации), ^{222}Rn накапливается в приземном слое атмосферы, и его концентрация увеличивается в 3-5 раз по сравнению с его приземной концентрацией при неустойчивой температурной стратификации. Высокие концентрации ^{222}Rn (45-75 Бк/м³) характерны для горных регионов России (Центральная и

Восточная Сибирь, Дальний Восток). Наибольшие средние суточные концентрации ^{222}Rn наблюдались осенью ($12,6 \pm 10,9$ Бк/м³) в следствие наиболее устойчивых (градиент температуры – $2,5 \pm 1,3$ °С) и продолжительных (6 ± 5 ч) инверсий температуры в этот период наблюдений, а наименьшие ($6,7 \pm 6,7$ Бк/м³) в весенний период наблюдений, когда наличие на поверхности снежного и ледяного покрова препятствует потоку ^{222}Rn из почвы. Полученные в экспедициях TROICA данные о пространственных и временных вариациях приземной концентрации ^{222}Rn согласуются с данными карты радоноопасности России [Maximovsky et. al., 1996], что позволяет использовать данные TROICA для региональных оценок потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу над территорией России.

2. Отмечено, что рост глубины сезонного протаивания почвы в регионах России (Восточная Сибирь), где распространена вечная мерзлота, может приводить к росту приземной концентрации ^{222}Rn , обусловленному увеличением потока ^{222}Rn из почвы за счёт интенсивной миграции накопившегося в замёрзших грунтах ^{222}Rn в приповерхностный слой почвы и его интенсивной эксхалации в атмосферу.

3. Поток ^{222}Rn из почвы в атмосферу, полученный по измерениям его приземной концентрации в условиях устойчивой атмосферной стратификации в экспедициях TROICA и рассчитанный с помощью модели, основанной на нестационарном уравнении турбулентной диффузии, изменяется над континентальной территорией России в широких пределах, от 29 ± 8 до 95 ± 51 мБк м⁻² с⁻¹, в зависимости от геологических особенностей исследуемого региона и от сезона

наблюдений. Наибольший поток ^{222}Rn из почвы получен для горных регионов Центральной и Восточной Сибири, а также Дальнего Востока. В целом, летом (июнь-август) поток ^{222}Rn из почвы выше, чем весной (март). Высокие значения потока ^{222}Rn весной в некоторых регионах России (Урал, Центральная Сибирь, Дальний Восток) предположительно связаны с ранним протаиванием снежного покрова в этих регионах во время весенней экспедиции TROICA или/и с локальным или удалённым переносом воздуха, обогащенного радоном. Сезонная изменчивость концентрации приземного ^{222}Rn при отсутствии влияния атмосферной устойчивости определяется состоянием почвы и характеризуется осенним максимумом (сезонное протаивание почвы) и весенним минимумом (промерзание почвы, снежный покров на поверхности почвы).

Полученные оценки потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу хорошо согласуются с известными данными прямых измерений потока ^{222}Rn в различных регионах России и в 3-7 раз выше модельных оценок, представленных в литературе.

4. Полученные с помощью радонового трассерного метода по данным прямых измерений в экспедициях TROICA, биогенные эмиссии CH_4 над территорией России максимальны летом в Западной Сибири ($0,77 \pm 0,60$ $\text{мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$) и на Дальнем Востоке ($0,87 \pm 0,52$ $\text{мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$), где расположены источники CH_4 : болота и увлажненные почвы, а CO_2 – в Восточной Сибири ($1,20 \pm 0,41$ $\text{мг м}^{-2}\text{с}^{-1}$), где расположены горные лиственничные леса (даурская лиственница). Активная вырубка леса в Восточном Забайкалье, наличие спелых и перестойных насаждений в структуре леса, а также рост температуры почвы, обусловленный потеплением климата в 2007 году, могли привести к уменьшению депонирования CO_2 и, соответственно, росту биогенных эмиссий в

данном регионе. Весной и осенью эмиссий CH_4 и CO_2 в среднем в 4-8 раз меньше, чем летом, что, вероятно, связано с низкой температурой почвы, наличием снежного покрова и замедлением процессов дыхания растений весной и осенью.

Ночной сток O_3 максимален весной на Урале: $0,19 \pm 0,17 \text{ мг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ и в районе Красноярска: $0,08 \pm 0,05 \text{ мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ и летом в Центральной Сибири (участок Тайшет – Иркутск) - $0,07 \pm 0,01 \text{ мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$, а скорость его сухого осаждения максимальна летом в Восточной Сибири - $0,33 \pm 0,21 \text{ см/с}^{-1}$ и на Дальнем Востоке - $0,32 \pm 0,25 \text{ см/с}^{-1}$. В целом, сухое осаждение O_3 над обширной территорией России летом выше, чем весной и осенью.

Полученные оценки биогенных эмиссий CH_4 и ночного сухого осаждения O_3 хорошо согласуются с опубликованными в литературе данными для ландшафтных и сезонных условий, подобных тем, что наблюдались в экспедициях TROICA. Полученные оценки биогенных эмиссий CO_2 , как правило, находятся на верхней границе или на 30-40% выше значений, представленных в литературе, а для лиственничных лесов Восточного Забайкалья – в среднем в 2,5 раза превышают литературные значения. Это может быть связано с тем, что полученные оценки приходятся на ночное время суток и обусловлены дыханием лесной растительности, а также с активной вырубкой леса в Восточном Забайкалье.

Глава 1. Радон в атмосфере

1.1 Свойства ^{222}Rn , его источники и стоки в атмосфере

1.1.1. Радон и его свойства

Радон (Radon) - один из первых открытых человеком радионуклидов. Еще в 1899 г. М. Кюри обнаружила, что воздух, в контакте с которым находятся соединения радия (^{226}Ra), становится радиоактивным. Этот благородный газ был обнаружен, изучен и получил место в периодической системе элементов в 1900 - 1904 гг. благодаря независимым исследованиям Э. Резерфорда, Р.Б. Оуэнса, Ф. Дорна, Ф. Дебьерна. В 1908 Р.У. Рамзай и Ф. Содди выделили радон в чистом виде. В 1923 эманация была названа радоном. Радон, наиболее редкий и самый тяжелый из благородных (инертных) газов, не имеет запаха и вкуса, прозрачен и бесцветен, имеет плотность при $0\text{ }^{\circ}\text{C} \approx 9,81\text{ кг/м}^3$, т. е. в 7,5 раза больше плотности воздуха. Радон химически инертен и реагирует только с сильными фторирующими реагентами. Радон хорошо растворим в воде и других жидкостях, в том числе, нефти, а также поглощается различными твердыми телами, особенно хорошо древесным углем, каучуком, воском, парафином. Растворимость радона в органических жидкостях больше, чем в воде. Из воды радон полностью удаляется при кипячении. В природе радон встречается в виде трех изотопов: радона-222 (^{222}Rn), члена радиоактивного ряда урана-238 (^{238}U), торона (^{220}Rn), образуемого продуктами распада тория-232 (^{232}Th) и актинона (^{210}Rn), образующегося при распаде актиния – 227 (^{227}Ac). Самый устойчивый изотоп радона, ^{222}Rn , имеет период полураспада ($T_{1/2}$)

3,8 сут, второй по устойчивости – ^{220}Rn – 55,6 сек, а третий – ^{219}Rn – 3, 96 сек. Изотопы радона существуют в атмосфере в виде свободных атомов, а их дочерние продукты распада (ДПР) – в виде ионов, образующих аэрозольные частицы в воздухе. ^{222}Rn встречается в природе в 20 раз чаще, чем ^{220}Rn , а содержание в природе ^{210}Rn ничтожно, поэтому, когда речь идет о радоне, подразумевают, прежде всего ^{222}Rn . Исследованиями последних лет установлено, что более 50% дозы ионизирующего излучения среди естественных радионуклидов приходится на ^{222}Rn и его ДПР, которые являются, главным образом, α – излучателями. Известно, что α – излучение создает эффективную эквивалентную дозу облучения в 20 раз больше, чем β – излучение и γ – излучение, поэтому отмечается, что ^{222}Rn примерно в 20 раз опаснее, чем ^{220}Rn [Радон, 2008; Уткин, 2000].

1.1.2. Источники ^{222}Rn в атмосфере

1.1.2.1. Почва как основной источник ^{222}Rn

Так как ^{222}Rn образуется в процессе распада радиоактивных элементов уранового ряда (^{238}U), рассеянного в земной коре, его основным источником в атмосфере является почва. Из-за присутствия материнских радионуклидов (^{238}U , ^{226}Ra) в геологических объектах (горных породах, месторождениях радиоактивных руд, подземных водах), его концентрация в почвенном воздухе достигает высоких значений. Концентрация ^{222}Rn в атмосферном воздухе зависит от содержания ^{238}U и ^{226}Ra в горных породах, почвах и подземных водах, наличия зон и площадей с ураново-рудной минерализацией, наличия разломов в горных породах и кор выветривания, от коэффициента

эманирования ^{222}Rn из почвы, от свойств и состояния почвы [Максимовский и др., 1996].

Радиоактивность почв связана непосредственно с радиоактивностью подстилающих (материнских) пород, т.е. с содержанием в них ^{238}U и ^{226}Ra (из-за процессов выветривания, выщелачивания, растворения и т.д.). В целом, радиоактивность магматических пород выше, чем осадочных. Больше всего радионуклидов содержится в сиенитах, фonoлитах, гранитах, гнейсах и риолитах [Радиоэкология, 1999]. Среди осадочных пород наибольшей радиоактивностью обладают глины, глинистые сланцы, фосфориты и калийные соли. Часто повышенной радиоактивностью обладают каменные угли и битумы, иногда и чистые пески, песчаники и известняки, если они обогащены монацитовыми, глауконитовыми фракциями. Иногда повышенная радиоактивность осадочных пород связана с пластовыми водами хлоркальциевого и, особенно, сульфидно-кальциевого типа. Наличие ураново-рудных месторождений способствует увеличению концентрации ^{222}Rn в приземном слое атмосферы. Урановые аномалии, кроме урановых месторождений, могут быть связаны с месторождением углей, торфа, нефти и газа [Радиоэкология, 1999].

Геохимически специализированные на уран горные породы, месторождения и рудопроявления урана обычно выходят на поверхность или перекрыты маломощными элювиально-делювиальными современными отложениями на складчатых геологических структурах. Складчатые геологические структуры характеризуются сложным, часто наклонным до вертикального, залеганием пород и отсутствием мощных

перекрывающих отложений, препятствующих поступлению ^{222}Rn на поверхность. В целом в складчатых областях наблюдается более высокая насыщенность месторождениями и рудопроявлениями урана, чем на платформах. Таким образом, складчатые области и особенно границы их сочленения с платформами являются наиболее проницаемыми для радона структурами. На платформах обычно хорошо развиты рыхлые образования, часто представленные глинистыми образованиями и ледниковыми отложениями, экранирующими поступление радона на поверхность. В пределах платформ геохимически специализированные на уран геологические образования занимают обширные площади и обычно не выходят на поверхность, залегая на глубинах первые десятки и сотни метров и более. Миграция радона в горных породах обычно происходит по зонам трещиноватости совместно с другими газами или в растворенном состоянии совместно с различными водами [Максимовский и др., 1996].

Таким образом, особенности формирования радоновых аномалий связаны со следующими факторами:

1. Геохимические, связанные с наличием под покровом рыхлых отложений пород с различным содержанием урана и тория и, в связи с этим, формированием в рыхлых отложениях дифференцированного поля радона. При этом могут образоваться достаточно контрастные локальные аномалии радона над зонами с повышенным содержанием урана и радия. Таким образом, условием формирования радоновых аномалий является наличие под покровом рыхлых отложений геологических формаций с урановой специализацией (горных пород с повышенным содержанием

урана, проявлений минерализации и рудопроявлений урана, урановых месторождений).

2. Структурно-тектонические. В процессе тектонической деятельности повышается пористость горных пород, образуются системы разнонаправленных трещин, полостей. Поэтому тектонические зоны приобретают хорошие коллекторские свойства, в них происходит накопление радона, повышается коэффициент эманирования. Как результат – большая часть тектонических нарушений превращается в радононосные подводящие структуры. Радоновые аномалии могут появляться в зонах активизации глубинных разломов тектонических структур (разрывных нарушений, зон трещиноватости и дробления, тектонически ослабленных блоков, участков сейсмической активности), их нахождения в стадии растяжения. Если над такими структурами располагаются постройки, вероятность накопления в них высоких концентраций радона резко повышается.

3. Геохимические. Среди процессов, способствующих концентрированию ^{226}Ra (и, следовательно, усиленной эксхалации ^{222}Rn), следует указать, в первую очередь, формирование на небольших глубинах геохимических барьеров, в которых концентрируется ^{226}Ra . Такими барьерами могут быть, например, сульфатные барьеры в зоне окисления. Поднимающиеся снизу хлоридные сероводородные радийсодержащие воды в зоне окисления становятся сульфатными, радий осаждается с BaSO_4 и CaSO_4 и становится практически нерастворимым постоянным источником радона [Максимовский и др., 1996; Уткин, 2000; Радон, 2008].

Радиоактивность почвы определяется также коэффициентом эманирования горных пород, равным доле атомов эманации (радионуклида), выделившихся из вещества (горной породы) за единицу времени, от всего количества эманации, образующейся в веществе за этот же промежуток времени [Геологический словарь, 1978]. Коэффициент эманирования определяет долю ^{222}Rn , выделившегося из материнской породы в поровое или трещинное пространство. Коэффициент эманирования зависит от структуры породы, её влажности, степени разрушенности. Чем меньше зерна породы, чем больше внешняя поверхность зерен, тем активнее идет процесс эманирования. Слаборадиоактивные породы могут иметь высокий коэффициент эманирования и способствовать большему увеличению концентрации ^{222}Rn в почве, чем более радиоактивные, особенно если они рассечены тектоническими нарушениями, накапливающими ^{222}Rn [Уткин, 2000].

По содержанию естественных радионуклидов (ЕРН) в почвах и уровню обусловленной этим радиации территорию России можно разделить на три зоны. Зона пониженной радиации – равнинная часть севера России – тундровый и таежный ландшафты. Содержание ЕРН в подстилающих горных породах низкое, и низкое содержание ЕРН в глеевых, болотно-подзолистых и болотных почвах (~ 14% территории России). Зона умеренной радиации – лесостепные, таежные и горно-таежные ландшафты. Содержание ЕРН в осадочных и магматических породах соответствует средним, а содержание ЕРН в дерново-подзолистых и подзолистых почвах несколько выше, чем в северной зоне (~ 65% территории России). Зона повышенной радиации – степные и горно-степные ландшафты. Содержание ЕРН повышено в подстилающих

кислых магматических породах и почвах степной зоны (лугово-черноземные, каштановые) и горно-таежной зоны (дерново-подзолистые и подзолистые) (~ 17% территории России) [*Радиоэкология, 1999*].

Миграция ^{222}Rn в почве зависит от физических свойств почвы (размера частиц почвы, её пористости, проницаемости и влажности). Разрыхление земли корнями растений, появление каналов на месте перегнивших корней, деятельность землеройных организмов, почвенных и дождевых червей в совокупности приводит к полной перестройке материнской породы, изменению ее структурных особенностей и проницаемости. Для почвенного слоя характерно широкое развитие макропор – крупных вторичных пустот и каналов, размерами более 1 мм, появление которых обусловлено, перечисленными выше процессами, а также трещинами, возникающими при изменении влажности, температуры и при механических (техногенных) воздействиях. Мощность слоя почвы, содержащего макропоры и трещины, определяется типом почв, климатическими и другими условиями и составляет, как правило, 25-50 см, крайне редко достигает 1 м. Уплотнение почвы (например, за счет вытаптывания) приводит к схлопыванию макропор и, соответственно, затруднению почвенной аэрации, что способствует накоплению радона в почвенном воздухе. Радоновые аномалии, связанные с переуплотнением почвенного слоя, хорошо известны в урановой поисковой геологии и называются «эффектом тропы» [*Микляев, 2001*].

Проницаемость почвы определяет способ миграции ^{222}Rn в почве: диффузия при низкой проницаемости и конвективный перенос при высокой. Проницаемость почвы для воздуха в значительной мере

зависит от ее влажности. С увеличением влажности увеличивается степень заполнения пор водой (влагонасыщенность) и, соответственно, снижается газопроницаемость. При насыщенности более 70% движение воздуха в поровых каналах почв практически отсутствует. Выход газов в атмосферу в данном случае возможен только за счет диффузии с поверхности слабопроницаемых блоков. При незначительном уменьшении влажности макропоры осушаются, и газопроницаемость значительно увеличивается. Максимальных значений она достигает при степени заполнения пор водой менее 15-20% [Микляев, 2001; Шестаков, 1982]. Влажность и, соответственно, газопроницаемость почв и пород в зоне неполного водонасыщения (от поверхности земли до уровня грунтовых вод) подвержены значительным временным колебаниям, причем, характер и амплитуда колебаний изменяются с глубиной. В верхнем слое почвы, содержащем макропоры, наблюдаются наибольшие по амплитуде и не выдержанные по периоду колебания влажности, связанные с изменением метеоусловий, режимом выпадения осадков, расходом влаги на испарение и транспирацию (потребление влаги корнями растений). С глубиной колебания влажности принимают сезонный характер, а амплитуда затухает. Глубина, на которой колебания влажности затухают полностью, составляет от 2-3 м для глинистых почв до 5-10 м для песков и супесей [Шестаков, 1982].

В водонасыщенных породах, залегающих ниже уровня грунтовых вод, преобладает миграция ^{222}Rn с потоком подземных вод в растворенном виде. В связи с чем породы, залегающие ниже уровня грунтовых вод, можно назвать зоной водной миграции радона. В пределах зоны неполного водонасыщения (от поверхности земли до

уровня грунтовых вод), преобладает миграция радона в газовой фазе в составе почвенного воздуха, т.е. это зона воздушной миграции радона. Миграция радона в этих двух зонах происходит, скорее всего, совершенно независимо. В зоне водной миграции преобладает горизонтальный перенос радона, в то время как в области воздушной миграции, перемещение радона происходит преимущественно в вертикальном направлении. Поступление радона из водонасыщенных пород в зону воздушной миграции и обратно пренебрежимо мало. В общем случае в зоне воздушной миграции радона сверху вниз можно выделить три области [Микляев, 2001]:

I. Область диффузионно-конвективного газообмена с атмосферой. Область представляет собой приповерхностный слой почв с развитой системой макропор и трещин, являющихся преимущественными путями переноса радона. Мощность области определяется глубиной распространения макропор и, в зависимости от типа почв, состава почвообразующих пород, климата и др. условий, изменяется от 30 до 50 см, крайне редко до 1 м. Характерная черта области – широкое развитие процессов конвективного воздухообмена с атмосферой, а также значительная пространственно-временная изменчивость проницаемости почв, что обуславливает невыдержанные во времени и весьма значительные по амплитуде флуктуации содержания ^{222}Rn . Процессы, протекающие в области диффузионно-конвективного газообмена, определяют поступление ^{222}Rn из почв в атмосферу.

II. Область диффузионного переноса ^{222}Rn . В эту область не проникают конвективные потоки воздуха из атмосферы. Здесь преобладает диффузионный вынос ^{222}Rn в вышележащий макропористый

слой, поровая концентрация ^{222}Rn с глубиной закономерно увеличивается, а амплитуда колебаний затухает. Нижней границей области является глубина нулевых годовых амплитуд объемной активности ^{222}Rn (где амплитуды годовых колебаний стремятся к нулю). С этой глубины ^{222}Rn уже практически не поступает в атмосферу, его концентрации перестают изменяться с глубиной и выходят на постоянные значения. Мощность области определяется, главным образом, коэффициентом диффузии радона в почвах и породах, и изменяется от 1,0-1,5 м в глинах до 2,5-3,0 м в хорошо проницаемых песках и трещиноватых скальных породах. Концентрация радия в почвах и породах, слагающих данную область, определяет общее количество свободного ^{222}Rn , способного мигрировать в атмосферу.

III. Область стабильных концентраций ^{222}Rn . Область, где распределение ^{222}Rn в почвенном воздухе не связано с влиянием атмосферы. Из этой области ^{222}Rn не поступает к поверхности, и его содержание в поровом воздухе определяется содержанием радия во вмещающих породах. Изменения концентраций ^{222}Rn во времени могут быть связаны лишь с резкими колебаниями уровня грунтовых вод, являющегося нижней границей области.

В хорошо проницаемых породах быстрый и значительный подъем уровня грунтовых вод (например, при начале поливов в засушливых регионах) приводит к вытеснению ^{222}Rn в верхние области зоны воздушной миграции. В тоже время, интенсивная инфильтрация атмосферных осадков может вызывать снижение концентраций ^{222}Rn в верхних областях или по всему профилю зоны. Поэтому на

заболоченных территориях зона воздушной миграции ^{222}Rn практически полностью отсутствует [Микляев, 2001].

Конвективный перенос радона преобладает в трещинах скальных пород (гранитов, базальтов, известняков, песчаников и т.п.). Поэтому он характерен для горно-складчатых областей и щитов платформ (южная Европа, Скандинавия, Кавказ, Урал и т.п.), где на дневную поверхность выходят скальные породы. В таких районах миграционные потоки вещества приурочены к зонам повышенной трещиноватости и раздробленности пород, в которых перенос жидкостей и газов происходит значительно активнее, чем в ненарушенных скальных массивах. Наиболее интенсивно конвекция протекает на территориях с высоким геотермальным градиентом в зонах активных тектонических разломов, где радон выносится к поверхности земли в восходящих газовых струях и потоках подземных вод с относительно больших глубин (до 100 м), образуя мощные радоновые аномалии в приповерхностных отложениях и почве. В районах с высокой сейсмической активностью содержание ^{222}Rn в почвенном воздухе испытывает значительные колебания в периоды концентрации и разгрузки напряжений в земной коре, в связи с чем, эти колебания изучаются в целях прогноза землетрясений [Микляев, 2001].

В ненарушенных скальных породах и рыхлых песчано-глинистых отложениях преобладает перенос за счёт диффузии. Диффузионный перенос ^{222}Rn характерен для равнинных, платформенных областей (таких как Восточно-Европейская равнина или Западно-Сибирская низменность) со слабой тектонической активностью и низким геотермальным градиентом. Верхняя часть геологического разреза на

таких территориях, как правило, сложена рыхлыми песчано-глинистыми отложениями, мощностью в десятки и сотни метров. В платформенных условиях преобладает субгоризонтальная фильтрация подземных вод, вертикальный перенос жидкостей и газов затруднен или отсутствует. Соответственно, здесь преобладает горизонтальная миграция ^{222}Rn в земной коре с потоками подземных вод. В таких условиях к поверхности земли поступает только ^{222}Rn , образующийся в горных породах, залегающих выше уровня грунтовых вод, при этом основным процессом переноса ^{222}Rn является диффузия.

Обледенение поверхности почвы способствует накоплению ^{222}Rn [Микляев, 2001; Pearson and Jones, 1965, Dorr and Munnich, 1990, Duenas and Fernandez, 1999, Iakovleva and Ryzhakova, 2003], причём наибольшие концентрации ^{222}Rn наблюдаются под наиболее толстым покровом льда и снега. При наличии на поверхности почвы льда, воздухообмен между почвой и атмосферой затруднен, и ^{222}Rn практически не выходит из почвы, накапливаясь в почвенном воздухе в соответствии с моделью нестационарной диффузии. В условиях свободного взаимодействия почвы и атмосферы, концентрация ^{222}Rn в приповерхностном слое резко снижается. При этом распределение ^{222}Rn в почвенном профиле принимает сложную форму, не соответствующую диффузионному распределению, что связано с влиянием конвективного воздухообмена с атмосферой, а также неравномерных временных колебаний проницаемости почвы [Ядерная геология, 1956].

Вертикальное распределение среднегодовых значений концентрации ^{222}Rn в почве типично для «почвенных» газов — минимальные концентрации наблюдаются в приповерхностной части

профиля. С глубиной содержание ^{222}Rn увеличивается и на глубине около 3 м принимает постоянное значение, обусловленное концентрацией ^{226}Ra во вмещающих породах [Микляев, 2001]. Амплитуда временных флуктуаций содержания ^{222}Rn с глубиной затухает. На глубине 150 см она снижается на 25%, а на 2-х метрах на 80%. В интервале глубин 2,5 – 3,0 м амплитуда годовых колебаний ^{222}Rn становится близкой к нулю (Kovach, 1945). Таким образом, вынос ^{222}Rn в атмосферу происходит в основном из приповерхностного почвенного слоя, мощностью 2,5-3,0 м (в работе [Гулабянц и Заболотский, 2001] этот слой назван «активным»). Все пространственно-временные изменения радонового поля происходят в этом же слое и определяются взаимодействием почвенного покрова и атмосферы.

1.1.2.2. Содержание ^{222}Rn в природных водах

^{222}Rn хорошо растворяется в воде, поэтому он содержится во всех природных водах. Содержание ^{222}Rn в поверхностных водах зависит от концентрации в них ^{226}Ra . Радионуклиды ^{226}Ra в воде находятся главным образом в ионной форме и характеризуются высокой миграционной способностью. Известна способность ^{226}Ra концентрироваться в известковых раковинах и водорослях, отмечен значительный перенос ^{226}Ra на дно водоемов. Концентрация ^{222}Rn в водах морей и океанов, как правило, не превышает 0,05 Бк/л [Радиоэкология, 2001], в водах рек и озер концентрация ^{222}Rn редко превышает 0,5 Бк/л. В подземных водах концентрация ^{222}Rn существенно выше, чем в поверхностных, т.к. степень нарушения радиоактивного равновесного отношения $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ в подземных водах больше, чем в поверхностных в результате

эманирования ^{222}Rn из горных пород и растворения его в воде, и может изменяться от 3-4 МБк/л до 4-5 Бк/л, поэтому содержание ^{222}Rn в воде из глубоких скважин может превышать 100 кБк/м³. Из природных вод в атмосферу ^{222}Rn попадает за счёт процессов дегазации с выносом ^{222}Rn из воздушных пузырьков, содержащихся в воде. Наиболее интенсивно этот процесс происходит при разбрызгивании, испарении и кипении воды [Уткин, 2001]. Эмиссии ^{222}Rn с поверхности океанов очень малы, по сравнению с его континентальными эмиссиями, и не превышают 0,1Бк/м²сек. *Zahorowski et al.* [2004] указывают, что эмиссии ^{222}Rn с поверхности океана на 3 порядка меньше, чем с земной поверхности.

1.1.2.3. Антропогенные источники ^{222}Rn

Техногенная деятельность человека также может приводить к попаданию ^{222}Rn в атмосферу, например, при разведке и эксплуатации урановых месторождений (переработка руды, отвалы и хвостохранилища, шахтные воды, сбросы обогатительного процесса и т.д.). Самым мощным источником поступления в атмосферу естественных радионуклидов, в частности ^{222}Rn , являются энергетические предприятия, работающие на органическом топливе – угле, сланце, нефти. [Радон, 2008]. Деятельность угольной, нефтяной, горнодобывающей промышленности приводит к перемещению на поверхность глубинных пород с повышенным содержанием радионуклидов. Аномальную концентрацию ^{222}Rn в жилых помещениях и производственных зданиях также можно отнести к техногенному влиянию человека на повышение концентрации радона в атмосферном воздухе.

1.1.3. Эмиссии ^{222}Rn из почвы в атмосферу

Экссалация ^{222}Rn с поверхности земли в атмосферу определяется не только геологическими факторами, но и свойствами приповерхностного почвенного слоя, а также влиянием атмосферы. Поток ^{222}Rn из почвы рассматривается как составная часть непрерывного газообмена между почвенным и атмосферным воздухом, происходящего в приповерхностном слое и определяющегося поверхностными факторами, влияние которых быстро убывает с глубиной [Гулабянц и Заболотский, 2001]. В работе [Гулабянц и Заболотский, 2001] отмечается, что приповерхностный слой почв (активный слой) и пород мощностью 1,5-3,5 м является «радоновой кухней», где формируется поток радона из почв в атмосферу. Плотность потока ^{222}Rn из почвы определяется свойствами активного слоя и процессами, протекающими в нем. Распределение ^{222}Rn в активном слое и поток ^{222}Rn с поверхности почв определяются следующими факторами:

- концентрацией ^{226}Ra в почвах и породах активного слоя;
- макропористостью и влажностью почв и пород активного слоя;
- колебанием метеорологических факторов (температуры воздуха и почвы, атмосферного давления и т.п.);
- наличием естественных и искусственных покровов (льда, асфальта, бетона и т.п.).

Существенным фактором, определяющим интенсивность аэрации почв и влияющим на содержание ^{222}Rn в приповерхностном слое, является конвективный воздухообмен между почвой и приземной атмосферой. Как уже отмечалось выше, в отличие от микропор, в

которых возможен только диффузионный перенос радона, в не занятых водой макропорах приповерхностного слоя возможны и широко распространены конвективные потоки воздуха. Факторами, регулирующими скорость, направление и объем конвективного воздухообмена являются [Микляев, 2001]:

- изменение температуры почвы и воздуха. Снижение температуры сопровождается сжатием газов, повышение - их расширением, поэтому при понижении температуры почвы в нее из атмосферы поступают новые порции воздуха, при повышении температуры – наоборот. Эти процессы имеют ярко выраженный суточный ритм. Кроме того, при перепаде температур между почвой и атмосферой возможна интенсификация естественной конвекции.

- изменение атмосферного давления. При понижении атмосферного давления поток воздуха направлен из почвы в атмосферу, при повышении – из атмосферы в почву. Изменение направления потока воздуха происходит только при существенных колебаниях атмосферного давления.

- действие ветра. Значение ветра для воздухообмена имеет значение в связи с его влиянием на изменение градиента атмосферного давления у земной поверхности.

- изменение влажности почвы. Увлажнение почвы приводит к вытеснению из пор почвы воздуха, а высыхание почвы – к поступлению воздуха из атмосферы. При полном заполнении порового пространства почв водой, например, на заболоченных территориях, аэрация почв подавляется, и газообмена между атмосферой и почвой практически не происходит. В таких условиях почвенные газы, в том числе и ^{222}Rn , не

поступают в атмосферу и накапливаются в обводненной почве [Микляев, 2001].

Атмосферные осадки способствуют увлажнению почвы, а, следовательно, уменьшению эмиссии ^{222}Rn из почвы в атмосферу [Fontan et al, 1966]. По наблюдениям Megumi and Mamuro [1973] скорость эмиссии ^{222}Rn из почвы в атмосферу восстанавливается в течение 2-х дней после дождя с количеством осадков менее 15 мм. Согласно Ishimori et al. [1998] восстановление скорости эмиссии ^{222}Rn происходит через 1,5 дня после дождя с количеством осадков 1,5 мм. По оценкам Hirao et al. [2010] влияние температуры почвы и рельефа местности на эмиссию ^{222}Rn из почвы меньше, чем влияние влажности почвы и содержания ^{226}Ra в горных породах. Duenas et al. [1996] также отмечает, что главным фактором, определяющим эмиссию ^{222}Rn из почвы в атмосферу, является влажность почвы, а влияние температуры почвы связано с изменением почвенной влажности.

- наличие снежного и/или ледяного покрова на поверхности почвы. Наличие на поверхности почвы снега или льда существенно снижает поток ^{222}Rn из почвы [Dorr, 1983; Jacob and Prather, 1990; Genthon, 1995]. Кроме того, снежный/ледяной покров приводит к накоплению ^{222}Rn в почве, причем наибольшие его концентрации наблюдались под наиболее толстым покровом льда и снега, и его интенсивной эмиссии в атмосферу в первые часы после таяния снежного покрова. По истечении 2-3 часов, как правило, устанавливается диффузионное равновесие, и значения потока радона снижаются, однако этот процесс может занимать и несколько суток [Miklyayev and Petrova, 2006; Govett G.J.S, 2000]. Многолетнемерзлые грунты являются барьером, препятствующим

выделению ^{222}Rn из почвы и способствующим уменьшению его концентрации в жилых помещениях на 80 – 90% при этом увеличивая его концентрацию в почве в 10-15 раз [Glover, 2006; Glover and Blouin, 2007].

Вышеописанные процессы могут оказывать существенное влияние на распределение ^{222}Rn в почвенном воздухе и вызывать значительные по амплитуде флуктуации плотности потока ^{222}Rn в атмосферу. Таким образом, эманационное поле почвенного слоя и приповерхностных пород, а также плотность потока ^{222}Rn с поверхности почв, определяются пространственно-временными колебаниями газопроницаемости почвы и процессами конвективного воздухообмена с атмосферой [Микляев, 2001].

Среднее континентальное значение эмиссии ^{222}Rn принято равным $21.0 \text{ мБк м}^{-2}\text{сек}^{-1}$ ($1 \text{ атом см}^{-2}\text{сек}^{-1}$). Однако, в зависимости от вышеописанных факторов, континентальный поток ^{222}Rn широко варьирует в пространстве и во времени. Известны измерения и оценки эмиссий ^{222}Rn для различных регионов мира [Turekian et al., 1977], в том числе и для СССР и России [Malakhov et al., 1966; Bakulin, 1967; Kirichenko, 1970; Milin et al., 1967; Levin et al., 2002; Jakovleva and Рыжакова, 2003]. Опубликованные средние значения потоков ^{222}Rn из почвы в атмосферу для различных регионов мира представлены в Табл.1.

Следует отметить, что известные прямые измерения потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу над территорией России носят эпизодический характер и не позволяют судить об его пространственных и временных вариациях.

Таблица 1. Средние значения потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу для различных регионов мира.

Регион	Поток ^{222}Rn , Бк/м ² сек	Ссылка на литературный источник
Австралия	0.022	[Schery et al., 1989]
Австрия		
Innsbruck	0.009	[Zupancic, 1934]
	0.016	[Zeilinger, 1935]
Graz	0.019	[Kosmath, 1935]
Франция		
Saclay	0.015	[Servant, 1964]
Германия		
Aachen	0.017	[Israel and Horbert, 1970]
Heidelberg	0.019	[Dörr et al., 1983]
Ирландия		
Dublin	0.027	[Smyth, 1912]
Индия		
Kaiga	0.03	[Somashekarappa, 1996]
Испания		
Malaga	0.010-0.025	[Duenas et al., 1997]
Япония		
Osaka	0.008	[Megumi and Mamuro, 1972]
	0.011	[Megumi and Mamuro, 1973]
	0.010	[Tojo, 1989]
Новая Зеландия	0.004	[Rosen, 1957]
Филиппины		
Manila	0.011	[Wright and Smith, 1915]
Литва		
Вильнюс		

глинистые почвы	0.25	[<i>Dainius and Aloyzas, 2007</i>]
песчаные почвы	0.38	
Польша		
Варшава	0.007	[<i>UNSCEAR, 1982</i>]
США		
Socorro, New Mexico	0.034	[<i>Wilkening and Hand, 1960</i>]
Fairbanks, Alaska	0.005	[<i>Wilkening et al., 1975</i>]
Yucca Flats, Nevada	0.021	[<i>Kraner et al., 1964</i>]
Linkoln, Massachusetts	0.050	[<i>Kraner et al., 1964</i>]
Champaign County, Illinois	0.053	[<i>Pearson and Jones, 1966</i>]
Argonne, Illinois	0.021	[<i>Pearson and Jones, 1966</i>]
СССР		
Москва	0.038	[<i>Milin et al., 1967</i>]
Киров	0.015	[<i>Milin et al., 1967</i>]
ЕТР	0.007	[<i>Kirichenko, 1970</i>]
Кавказ	0.073	[<i>Kirichenko, 1970</i>]
Средняя Азия	0.019	[<i>Kirichenko, 1970</i>]
Южный Урал	0.011	[<i>Kirichenko, 1970</i>]
Россия		
Красноярск	0.040	[<i>Воеводин и Кургуз, 2012</i>]
Тверская область	0.090	[<i>Levin et al., 2002</i>]
Москва		[<i>Miklyaev and Petrova, 2006</i>]
песчаные почвы	0.021	
глинистые почвы	0.039	

Известны карты эмиссий ^{222}Rn в атмосферу, составленные на основе модельных расчётов с использованием теории переноса ^{222}Rn в пористой среде [*Schery and Wasiolek, 1998; Hira0 et al, 2008; Hira0 et al, 2010*] и на основе данных о гамма излучении с поверхности почвы

[Szegvary *et al.*, 2007], полученных в ходе аэrorадиометрических измерений [Vysokoostrovskaya *et al.*, 1995]. Conen and Robertson [2002] оценили широтное распределение эмиссий ^{222}Rn , используя данные измерений атмосферных профилей. По данным этих оценок плотность потока ^{222}Rn убывает от $21.0 \text{ мБк м}^{-2}\text{сек}^{-1}$ ($1 \text{ атом см}^{-2}\text{сек}^{-1}$) на 30°N до $4.2 \text{ мБк м}^{-2}\text{сек}^{-1}$ ($0,2 \text{ атома см}^{-2}\text{сек}^{-1}$) на 70°N . Эти оценки помогли улучшить результаты расчетов моделей переноса ^{222}Rn . Однако, модели континентальных эмиссий ^{222}Rn нуждаются в более точной информации о физических свойствах почвы, таких как распределение ^{226}Ra в земной коре, влажность и температура почвы [Hirao *et al.*, 2010]. Данные пространственной и временной изменчивости потока ^{222}Rn из почвы в различных геологических и климатических условиях, основанные на прямых измерениях концентрации ^{222}Rn в приземном воздухе, могут быть полезными для уточнения оценок, полученных с помощью существующих моделей континентальных эмиссий ^{222}Rn , а также для валидации моделей атмосферного переноса.

1.1.4. Вертикальное распределение радона в атмосфере

Распределение ^{222}Rn в атмосфере зависит от его потока из почвы, скорости атмосферной диффузии, определяющей вертикальный перенос ^{222}Rn и адвекции воздуха, отвечающей за горизонтальный перенос ^{222}Rn , а также от радиоактивного распада ^{222}Rn . Первые 3 фактора определяются изменчивостью метеорологических параметров атмосферы.

Влияние метеорологических условий на поток ^{222}Rn из почвы в атмосферу описано в 1.1.3. Коэффициент турбулентной диффузии (K),

определяющий вертикальный перенос ^{222}Rn в атмосфере, зависит от скорости ветра, атмосферной устойчивости и шероховатости земной поверхности [Moses, 1960]. Уменьшение скорости ветра способствует ослаблению механической турбулентности и уменьшению K , что приводит к увеличению концентрации ^{222}Rn в приземном воздухе. Механическая турбулентность зависит от скорости ветра у поверхности Земли, шероховатости земной поверхности, а также направления ветра. Возмущения, возникающие за счет неровностей земной поверхности, приводят к образованию сильных восходящих и нисходящих потоков. K растет днем и уменьшается ночью, что связано с тем, что днем градиент температуры направлен вверх и высокие значения K_z в это время обуславливают большую теплоотдачу от почвы к атмосфере. Ночью, когда градиент температуры направлен вниз, турбулентное перемешивание в приземном слое мало, и значения K_z минимальны. В течение ночи K хотя и меняется, но остается низким (0,01-0,12 м²/с с преобладанием значений $\leq 0,05$ м²/с для территории России [Безуглая, 1983]), а с наступлением дня он увеличивается в сотни раз, особенно в более высоких слоях атмосферы. По данным [Безуглая, 1983], наибольшие значения K наблюдаются, как правило, в светлое время суток (после полудня) в тёплое полугодие. Принимается, что коэффициент турбулентной диффузии линейно растёт с высотой. Хргиан, [1978] отмечает, что мощность слоя, в котором происходит увеличение коэффициента турбулентной диффузии меняется в пределах 20-60 м, уменьшается зимой и увеличивается летом, когда в утренние часы достигает 34 м, а в дневные – 42 м. Выше этого слоя, который назван

“подслои динамической турбулентности” коэффициент турбулентной диффузии постепенно уменьшается с высотой [Хргуан, 1978].

Jacobi and Andre [1963] рассчитали профили K_z согласно диффузионным диаграммам *Lettau [1951]*. Эти профили соответствуют типичным условиям турбулентности в тропосфере. Во всех профилях K быстро растёт с высотой от 1 см до постоянного значения в тропопаузе, достигающего 3×10^4 см²/сек между 20 и 30 км. При этом, газовым кинетическим коэффициентом диффузии, равным примерно 0,05, пренебрегают. Для устойчивой, слабоустойчивой и нейтральной атмосферной стратификации, коэффициент K растёт с высотой линейно и на высоте 1 м примерно равен 10^1 , 10^2 и 10^3 см²/сек для очень устойчивой ($\Delta T_{100} \geq 4.0$ °C), среднеустойчивой ($\Delta T_{100} = 1.5-4.0$ °C) и слабоустойчивой атмосферы ($\Delta T_{100} \leq 1.5$ °C) (классы устойчивости по *Pasquill [1961]*), соответственно.

Hosler [1969] рассчитал средний K для 90-метрового приземного слоя по данным измерений вертикального профиля ²²²Rn на станции рядом с Вашингтоном, изменяющийся от $3,1 \times 10^5$ см²/сек в условиях неустойчивой атмосферной стратификации до $8,3 \times 10^3$ см²/сек в устойчивой атмосфере с инверсиями температуры. *Bakulin and Sen'ko [1968]* определили профиль K_z с линейным ростом K от земной поверхности до высоты 50 метров, выше которой он остаётся постоянным. *Cohnen et al. [1972]* предложили модель расчета профилей K_z для разных условий атмосферного перемешивания на основе среднечасовых измерений концентраций ²²²Rn на высотах 6,1, 61, 174 и 271 м в течение 1-го года. По полученным авторами профилям, K растёт с высотой от земной поверхности до некоторой высоты, значение

которой зависит от устойчивости атмосферы, изменяясь от менее, чем 10^5 см²/сек в условиях устойчивой атмосферной стратификации до 5×10^6 см²/сек в условиях неустойчивой атмосферной стратификации. Выше данной высоты K остается постоянным и в 10-20 раз выше для неустойчивой стратификации по сравнению с устойчивой. Авторы отмечают, что процессы турбулентного переноса в устойчивой атмосфере преобладают в слое до 61 метра, а в неустойчивой – до 271 метра и выше.

Вертикальный профиль K в атмосфере определяет и вертикальное распределение приземной концентрации ^{222}Rn . Концентрация ^{222}Rn убывает примерно экспоненциально от поверхности земли с резким уменьшением в тропопаузе. В условиях устойчивой атмосферной стратификации убывание ^{222}Rn с высотой более выражено по сравнению с неустойчивой стратификацией атмосферы [*Jacobi and Andre, 1963; Lee and Larsen, 1998*]. На вертикальное распределение ^{222}Rn в атмосфере влияет также адвективный перенос этого газа от локальных и/или удаленных источников [*Moses, 1960; Larson u Hoppel, 1973; Zahorowsky, 2004; Cohnen, 1972; Fontan et al., 1965*].

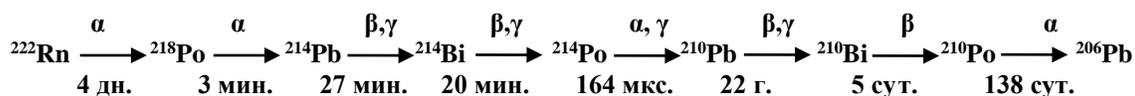
Измерения профилей концентрации ^{222}Rn в диапазоне высот от поверхности земли до 300 метров [*Moses, 1960; Cohnen, 1972; Fontan et al., 1965; Williams et al., 2006*] показали, что распределение концентрации ^{222}Rn в этом слое связано непосредственно с суточными вариациями вертикального турбулентного перемешивания. В условиях слабого перемешивания ночью, концентрация ^{222}Rn в приземном слое резко возрастает, а в вышележащих слоях атмосферы остается очень низкой, равной дневным значениям. С восходом солнца, когда

температурная инверсия разрушается и процессы турбулентного перемешивания усиливаются, ^{222}Rn диффундирует в вышележащие слои атмосферы, и его концентрация в нижележащих слоях резко снижается, а в вышележащих – повышается. *Moses et al., 1960* отмечают, что на высоте около 6 метров (по измерениям на Аргоннской метеорологической станции в течение 3-х дней в мае-августе 1960 г.) в ясные ночи концентрация ^{222}Rn в 20 раз выше, чем в ясные дни. Во время измерений в облачные дни, ночная концентрация ^{222}Rn в два раза превышала дневные значения. Такую же тенденцию в распределении концентрации ^{222}Rn до высоты 16 м по данным измерений на той же станции в течении 9 дней того же периода наблюдали *Pearson and Moses [1965]*. Авторы отмечают, что максимум концентрации ^{222}Rn у земли наблюдался на 3 часа раньше, чем максимум на высоте 16 метров. *Larson and Hoppel [1973]* измеряли профили концентраций ^{222}Rn над юго-западной Аризоной на высотах от 300 м до 4 км над земной поверхностью на самолете в августе 1971 г. Авторы отмечают, что форма профилей ^{222}Rn изменялась в течение суток. В утренние часы на высоте 2000 м наблюдалась инверсия температуры, и ниже этой высоты вариации концентрации ^{222}Rn были связаны с суточными вариациями процессов турбулентного перемешивания. На высоте 300 м авторы наблюдали высокие концентрации ^{222}Rn в утренние часы и низкие значения к полудню. На высоте 760 метров концентрация ^{222}Rn возрастала к полудню за счет подъема приземного ^{222}Rn , накопившегося в приземном слое в течение ночи с устойчивой атмосферной стратификацией. Выше 2000 метров существенных различий между утренним, полуденным и вечерним профилями не наблюдалось, но

концентрации ^{222}Rn были высокими. Авторы связывают это не с влиянием локальных метеорологических условий и суточными вариациями K , а с крупномасштабной циркуляцией воздуха, адвекцией воздуха с повышенным содержанием ^{222}Rn .

1.1.5. Сток ^{222}Rn в атмосфере

Основным стоком ^{222}Rn в атмосфере является его радиоактивный распад (константа распада $\lambda = 2,08 \times 10^{-6} \text{ c}^{-1}$). Концентрация ^{222}Rn в воздухе определяется количеством распадов радиоактивных ядер в секунду в кубическом метре воздуха. Для ^{222}Rn это практически равно числу генерируемых в процессе распада α -частиц. За единицу количества распадов в настоящее время принят 1 Беккерель, равный 1-му распаду в секунду. Также применяется внесистемная единица 1 Кюри = числу распадов 1 г ^{226}Ra или $3,7 \times 10^{10}$ распадов в секунду. 1 Кюри = $3,7 \times 10^{10}$ Беккерелей. Ниже представлена схема радиоактивного распада ^{222}Rn и периоды полураспада его ДПР:



Из схемы видно, что ^{222}Rn распадается до стабильного ^{206}Pb . В отличие от газа ^{222}Rn , содержащегося в атмосферном воздухе в виде атомов, его ДПР представляют собой ионы, в дальнейшем образующие твёрдые аэрозольные частицы в воздухе. Особо опасны α -излучающие ДПР радона.

Для описания интегральной объёмной активности ДПР радона в воздухе, часто используется понятие “скрытая энергия” – суммарная энергия α -излучения, которая выделяется в единице объема воздуха при радиоактивном распаде всех короткоживущих ДПР (для ^{222}Rn до ^{210}Pb). Если в воздухе содержится 3700 Бк/м^3 ^{222}Rn в полном равновесии с ДПР, то величина скрытой энергии $\approx 1,3 \times 10^5 \text{ МэВ/л}$ и носит название “рабочий уровень” (Working Level -WL). Эта внесистемная единица широко используется за рубежом для определения объёмной активности ДПР радона [Уткин, 2000].

1.2 Измерения концентрации ^{222}Rn в атмосфере

Первые измерения ^{222}Rn в атмосферном воздухе проводились для исследования вертикального распределения ^{222}Rn в атмосфере [Zahorowsky, 2004]. Известны измерения на башнях [Moses et al, 1960; Cohen et al, 1972; Butterweck et al, 1994], высокогорных станциях [Zahorowsky, 2004], с борта самолёта [Kritz et al., 1998]. Первые приборы для долговременных измерений ^{222}Rn появились в середине 1960-х гг. Однако, эти приборы подходили только для измерения высоких концентраций ^{222}Rn , а, следовательно, не подходили для измерений на прибрежных станциях. Детекторы для определения низких концентраций ^{222}Rn были сконструированы только в начале 1970-х гг. В это же время ^{222}Rn начали использовать в качестве трассера атмосферного переноса. В 1990-е гг. начались активные исследования ^{222}Rn , включающие в себя создание приборов для прямых измерений ^{222}Rn в атмосфере. Появились приборы для измерения ДПР ^{222}Rn и детекторы, позволяющие измерять малые концентрации ^{222}Rn . В эти же годы началось активное

использование ^{222}Rn в качестве трассера в моделях общей циркуляции. Возросла популярность использования прямых измерений ^{222}Rn для исследования горизонтального и вертикального перемешивания в региональных и глобальных моделях атмосферного переноса. А в середине 90-х гг. ^{222}Rn был включён в стандартный список атмосферных веществ, подлежащих мониторингу [Zahorowski, 2004].

Все методы измерения концентрации ^{222}Rn и его ДПР основаны на определении радиоактивного излучения, выделяющегося при их распаде. Большинство методов основаны на измерении α -излучения, некоторые из них – на определении γ -излучения и совсем немного – на определении β частиц. Помимо разделения в зависимости от типа измеряемого излучения, методы измерения ^{222}Rn различаются временным разрешением, видом измеряемой активности (газа ^{222}Rn или его ДПР, каждого отдельного ДПР ^{222}Rn или потенциальной α -энергии), диапазоном измерения [Nazaroff, 1988].

Существуют пассивные и активные методы измерения концентрации ^{222}Rn и его ДПР. Пассивные методы не требуют затрат электричества и дорогостоящего оборудования для отбора проб, однако последующая лабораторная обработка может потребовать дополнительных расходов. Пассивные методы основаны на измерении газа ^{222}Rn . К ним относятся следующие методы:

- Метод угольной адсорбции. Метод основан на гамма-спектрометрии или жидкостной сцинтилляции адсорбированного угольным фильтром ^{222}Rn . Данный метод подходит для измерения концентрации ^{222}Rn менее 40 Бк/м^3 , время отбора пробы - несколько дней. Метод очень чувствителен к влажности и температуре.

Ограничения метода также заключаются в необходимости оперативного лабораторного анализа пробы после отбора.

- Метод радоновых ядерных меток основан на измерении общей энергии радиоактивного распада. Измерительная камера содержит внутренний фильтр, оснащенный детектором из синтетического материала. Альфа частицы, выделяемые при распаде ^{222}Rn , взаимодействуют с материалом детектора, нарушая его химические связи. В результате взаимодействия, нарушенные области становятся видимыми. Каждая α -частица оставляет хорошо различимый трек. Количество этих треков прямо пропорционально концентрации ^{222}Rn . Этот метод подходит для получения среднегодовых концентраций ^{222}Rn и мало пригоден для быстрых измерений.

- Метод Лукаса. Данный метод был впервые предложен в 1950 г. Х.Ф. Лукасом [*Lukas, 1957*]. В камере, стенки которой покрыты люминесцентным веществом из ZnS , происходит распад ^{222}Rn , находящегося в отобранном воздухе. α -частица, образующаяся в результате радиоактивного распада ^{222}Rn , ударяет по веществу детектора, создавая вспышку, которая улавливается фотоумножителем. При радиоактивном равновесии между ДПР ^{222}Rn , ^{218}Po и ^{214}Po , концентрация ^{222}Rn пропорциональна числу зарегистрированных распадов. Время единичного измерения – 3 часа, погрешность измерения ~ 30%

Активные методы измерения основаны на использовании электронных детекторов для автоматических операций. Для измерения газа ^{222}Rn используют метод двойного фильтрования, диффузионный и ионизационный камерные методы. Для измерения объемных

концентраций ДПР ^{222}Rn используют метод фильтрования в различных модификациях.

- Метод двойного фильтрования – основан на прохождении определенного объема анализируемого воздуха через входной фильтр камеры, где в результате распада ^{222}Rn образуются атомы его ДПР. Продукты распада ^{222}Rn попадают на выходной фильтр, активность которого прямо пропорциональна концентрации ^{222}Rn и может быть измерена счетчиком частиц. Погрешность измерения ~ 10 %.

- Метод диффузионной камеры подобен методу ядерных меток с тем отличием, что вместо детектора из синтетического материала используется электронный детектор и дополнительные накопительные системы. Продукты распада оседают на стенках камеры и детектора. Часто для улучшения осаждения продуктов распада и повышения точности метода используют электрическое поле между камерой и детектором.

- Метод ионизационной камеры основан на подсчёте импульсных зарядов, образующихся в результате распада радонового ряда в чувствительной к излучению камере. При высоких концентрациях ^{222}Rn возможно измерение постоянного тока вместо отдельных импульсов.

- Метод фильтрования для измерения ДПР радона. Данные, полученные с помощью данного метода, используются и в настоящей диссертационной работе, поэтому автор остановится на этом методе подробнее. Метод основан на измерении ДПР ^{222}Rn в определённом объёме исследуемого воздуха, осевших в виде аэрозольных частиц на кварцевый фильтр. Микрокомпьютер прибора анализирует спектры ДПР с помощью метода α -спектрометрии и подсчитывает число

образовавшихся в результате распада α - частиц. α -распад ДПР моделируется микрокомпьютером, а результаты расчёта числа α -частиц сравниваются с реальными, полученными на детекторе результатами. По соотношению модельных данных и реальных измерений определяются калибровочные коэффициенты, которые в дальнейшем используются для определения объёмных активностей ДПР радона. Модель также рассчитывает РАЕС (Potential Alpha Energy Concentration), потенциальную альфа энергию - общую α -энергию, образующуюся в результате полного распада ^{222}Rn и его ДПР в единичном объеме воздуха. Реальная РАЕС рассчитывается на основе моделируемой РАЕС и числа α -частиц, полученных на детекторе. Объёмные активности Po-218 и Bi-214 используются для расчёта концентрации газа ^{222}Rn по следующей формуле:

$$C(\text{Rn-222}) = C(\text{Po-218}) \cdot (C(\text{Po-218}) / C(\text{Bi-214}))^k,$$

где k изменяется в зависимости от калибровочных факторов.

Диапазон измерений - 0.1 - 100 Бк/м³. Время единичного отсчёта - 10 минут. Погрешность метода - 15%.

Методы фильтрования различаются скоростью и объёмом пропускаемого воздуха, детекторами, временем отбора и интервалами измерения, а также алгоритмами оценки. Использование дополнительных фильтров и автоматических транспортных систем позволяет проводить долговременные измерения.

1.3 Пространственные и временные вариации приземной концентрации ^{222}Rn

1.3.1. Пространственная изменчивость приземного ^{222}Rn

По данным *UNSCEAR [2000]*, среднее значение концентрации ^{222}Rn в приземном слое атмосферы принято равным 10 Бк/м^3 , в то время, как от места к месту она может варьировать от 1 до 100 Бк/м^3 и более. По данным литературных источников, среднее значение концентрации приземного ^{222}Rn для различных регионов мира изменяется от 0.1 до 23.3 Бк/м^3 (Таблица 2).

Таким образом, среднее содержание ^{222}Rn в приземном воздухе различных регионов мира широко варьирует и зависит прежде всего, как отмечалось выше, от геологических особенностей территории. Наиболее высокие концентрации ^{222}Rn характерны для горных регионов и регионов с высоким содержанием урана и радия в горных породах, а наиболее низкие – в прибрежных регионах, подверженных влиянию переноса океанического и морского воздуха с пониженным содержанием радона [*Wilkenning, 1981*]. В пределах одного региона приземное содержание радона подвержено суточным и сезонным вариациям, а также влиянию местных и удалённых источников ^{222}Rn .

Таблица 2. Значения концентрации ^{222}Rn в атмосфере в различных регионах мира.

Регион	Концентрация ^{222}Rn , Бк/м ³	Ссылка на литературный источник
Австрия	7.0	[UNSCEAR, 1982]
Антарктика	0.3	[Rammachandran and Balani, 1993]
Боливия	1.5	[UNSCEAR, 1982]
Великобритания	3.3	[UNSCEAR, 1982]
Германия	9.0	[Gehrcke et al., 2008]
Индия	3.7	[UNSCEAR, 1982]
Корея	23.3	[Kim et al., 2003]
Острова Тихого океана	0.02 – 0.2	[UNSCEAR, 1982]
Перу	1.5	[UNSCEAR, 1982]
Польша	3.3	[UNSCEAR, 1982]
Северная Африка	0.5	[UNSCEAR, 1982]
СССР	2.2 – 6.3	[UNSCEAR, 1982]
США	0.1 – 9.6	[UNSCEAR, 1982]
Филиппины	0.3	[UNSCEAR, 1982]
Финляндия	2.0 – 3.8	[UNSCEAR, 1982]
Франция	9.3	[UNSCEAR, 1982]
Япония	2.1	[UNSCEAR, 1982]
Япония	6.1	[Oikawa et al., 2003]

1.3.2. Суточные вариации концентрации ^{222}Rn

Известно, что приземная концентрация ^{222}Rn изменяется в течение суток, что обусловлено суточными изменениями вертикального турбулентного перемешивания в атмосфере, адвекцией и величиной потока ^{222}Rn из почвы [Ta-Yung Li, 1975]. Эти факторы, в свою очередь, подвержены влиянию метеорологических параметров атмосферы: скорости и направления ветра, влажности, давления, интенсивности солнечной радиации [Ta-Yung Li, 1975]. Скорость и направление ветра оказывают влияние на вертикальный и адвективный перенос воздуха, обогащенного ^{222}Rn ; атмосферная влажность и давление могут влиять на состояние почвы и скорость эксхалляции радона; интенсивность солнечной радиации влияет на температурную стратификацию приземного слоя [Moses, 1960]. Многие исследователи отмечают ведущее влияние вертикальной устойчивости атмосферы на суточную изменчивость приземной концентрации ^{222}Rn [Zahorovski, 2004; Малахов, 1965; Ta-Yung Li, 1975; Kataoka, 1998; Cohen, 1972; Fontan, 1966; Servant, 1966]. Минимальная концентрация ^{222}Rn наблюдается днём, когда вертикальное перемешивание воздуха наиболее активно и выделяющийся из почвы ^{222}Rn поднимается в вышележащие слои атмосферы, а также переносится в пространстве за счёт адвекции воздуха. К вечеру, когда земная поверхность остывает и вертикальные движения воздуха ослабевают, устанавливается инверсия температуры. Инверсия температуры препятствует вертикальному и горизонтальному переносу ^{222}Rn в приземном слое атмосферы, что способствует накоплению ^{222}Rn , выделяющегося из почвы, в приземном слое и

увеличению его приземной концентрации в несколько раз по сравнению с дневными значениями. С восходом солнца инверсия температуры разрушается, турбулентное перемешивание усиливается, и концентрация ^{222}Rn в приземном слое резко уменьшается [Wilkenning, 1959; Malakhov, 1966; Moses, 1960; Ta-Yung Li, 1975; Kataoka, 1998; Zahorovsky, 2005].

1.3.3 Сезонные вариации концентрации ^{222}Rn

Сезонная изменчивость приземного ^{222}Rn также в первую очередь связана с метеорологическими факторами: стратификацией атмосферы, атмосферными осадками и атмосферной циркуляцией [Omori et al., 2009; Zahorowski, 2004].

Если рассматривать инверсии температуры, как один из основных факторов, определяющих вариации приземного ^{222}Rn , то следует отметить, что и мощность, и интенсивность инверсии характеризуются значительной сезонной изменчивостью. Над континентальными и некоторыми прибрежными районами России максимумы мощности и интенсивности инверсии наблюдаются зимой, а минимумы – летом. [Хохлов и Дуров, 2006] также отмечают, что приземные инверсии небольшой мощности чаще наблюдаются в теплый период года, а более мощные – в холодный.

Атмосферные осадки способствуют изменению состояния почвы: увлажнению, заполнению пор почвы водой и, следовательно, уменьшению эксхалации радона в атмосферу (см. 1.1.3). Наличие на поверхности почвы снега или льда, как уже отмечалось в главе 1.2, приводит к накоплению радона в почве и его интенсивной эмиссии в

атмосферу в первые часы после таяния снежного покрова [Микляев и Петрова, 2007; Govett, 2000].

Наиболее существенное влияние на перенос воздуха, обогащенного радоном от его локальных и удалённых источников оказывают ветры, особенно слабые [Безуглая, 1983]. Повторяемость слабых ветров резко увеличивается с удалением от побережья. В покрытых лесом долинах слабые ветры возможны в 40-50% времени года, а на открытых возвышенностях – 20-25%. На открытых местах и возвышенностях равнинной территории слабые ветры возможны в 20-25% времени года, в долинах небольших рек их повторяемость возрастает до 30-35%, а иногда и до 40%. На Европейской территории России отмечается плавное увеличение повторяемости слабых ветров от зимы к лету [Безуглая, 1983]. Региональный и удалённый перенос ^{222}Rn преимущественно имеет место в условиях неустойчивой атмосферной стратификации, которая, как правило, наблюдается в дневное время суток.

1.4 Выводы к главе 1

Основной источник ^{222}Rn в атмосфере – почва. Распределение ^{222}Rn и его миграция в почве определяются содержанием его материнских нуклидов (^{238}U и ^{226}Ra) в подстилающих породах, коэффициентом эманирования горных пород, а также физическими свойствами (макропористостью, определяющей конвективный перенос ^{222}Rn в почве) и состоянием почвы (влажностью и температурой). Преобладающий сток ^{222}Rn в атмосфере – радиоактивный распад. Хорошо известные источники и стоки и химическая инертность делают ^{222}Rn полезным

трассером для исследований различных атмосферных процессов, в том числе для валидации моделей атмосферного переноса и оценки эмиссий парниковых газов.

Эмиссия ^{222}Rn из почвы в атмосферу определяется концентрацией ^{226}Ra в горных породах и почве, свойствами приповерхностного почвенного слоя, влиянием метеорологических параметров атмосферы (температуры, атмосферного давления, осадков), наличия на поверхности почвы естественных и искусственных покровов (льда, асфальта, бетона и т.п.). Среднее континентальное значение эмиссии ^{222}Rn принято равным $\approx 21.0 \text{ мБк м}^{-2}\text{сек}^{-1}$ ($\approx 1 \text{ атом см}^{-2}\text{сек}^{-1}$). Однако, в зависимости от вышеописанных факторов, континентальный поток ^{222}Rn широко изменяется в пространстве и во времени.

Пространственные вариации приземной концентрации ^{222}Rn определяются, главным образом, геологическими особенностями территории (содержанием ^{238}U и ^{226}Ra в подстилающих породах, наличием зон и площадей с ураново-рудной минерализацией, наличием разломов в горных породах и кор выветривания), а также региональным и удалённым переносом воздуха от источников ^{222}Rn . Наиболее высокие концентрации ^{222}Rn характерны для горных регионов и регионов с высоким содержанием ^{238}U и ^{226}Ra в горных породах, а наиболее низкие – в прибрежных регионах, подверженных влиянию переноса океанического и морского воздуха с пониженным содержанием радона.

Вертикальное распределение ^{222}Rn в атмосфере, также, как и его суточная изменчивость обусловлены, прежде всего, суточной изменчивостью атмосферного турбулентного перемешивания. Устойчивая атмосферная стратификация (инверсии температуры)

способствует накоплению ^{222}Rn в приземном воздухе и росту его приземной концентрации. Сезонная изменчивость приземной концентрации ^{222}Rn определяется изменчивостью метеорологических параметров атмосферы и состоянием почвы (температурной стратификацией атмосферы, атмосферными осадками, промерзанием и оттаиванием почвы).

Известных данных о концентрациях и потоках ^{222}Rn над обширной территорией России недостаточно для определения их пространственных и временных вариаций, поэтому получение таких данных представляется весьма актуальным не только для оценки радиационного влияния ^{222}Rn на здоровье населения России, но и для исследования различных атмосферных процессов, в том числе для валидации моделей атмосферного переноса и корректной оценки пространственного распределения и мощности природных и антропогенных источников и стоков климатически активных газов.

Глава 2. Приземная концентрация ^{222}Rn над территорией России по измерениям в экспедициях TROICA

2.1. Измерения на передвижной лаборатории в экспедициях TROICA

Мониторинг состава атмосферы в экспедициях TROICA (TRanscontinental Observations Into the Chemistry of the Atmosphere) на специально созданной и оборудованной передвижной лаборатории проводился с 1995 г. [Еланский и др., 2009]. Эти эксперименты существенно восполнили недостаток информации о состоянии атмосферы в Северной Евразии. Впервые были проведены наблюдения состава атмосферы в континентальном масштабе. В ходе многолетних исследований получены важные сведения о распределении газовых и аэрозольных примесей и их временной изменчивости над Северной Евразией, о загрязнении атмосферного воздуха в городах и промышленных районах, о влиянии различных природных и антропогенных факторов на состояние континентальной атмосферы [Еланский и др., 2009]. Экспедиции TROICA проводились по различным маршрутам: вдоль Транссибирской железнодорожной магистрали (Москва-Владивосток-Москва), вдоль Октябрьской железной дороги (Москва-Мурманск), вдоль Северо-Кавказской железной дороги (Москва-Кисловодск), а также вокруг Московского мегаполиса с пересечением г. Москвы. Подробное описание методов и приборов измерения, использовавшихся в экспедициях, а также анализ данных измерений представлены в *Elansky et al. [2009]*. Результаты анализа данных наблюдений в экспедициях TROICA, включая основные закономерности пространственной и временной изменчивости малых газовых составляющих в приземном слое с учётом региональных

антропогенных эмиссий и особенностей природно-климатических условий, представлены в [Еланский и др., 2009; Беликов и др., 2006; Маркова и др., 2004; Панкратова и др., 2011] (см. также ссылки в упомянутых источниках на другие публикации).

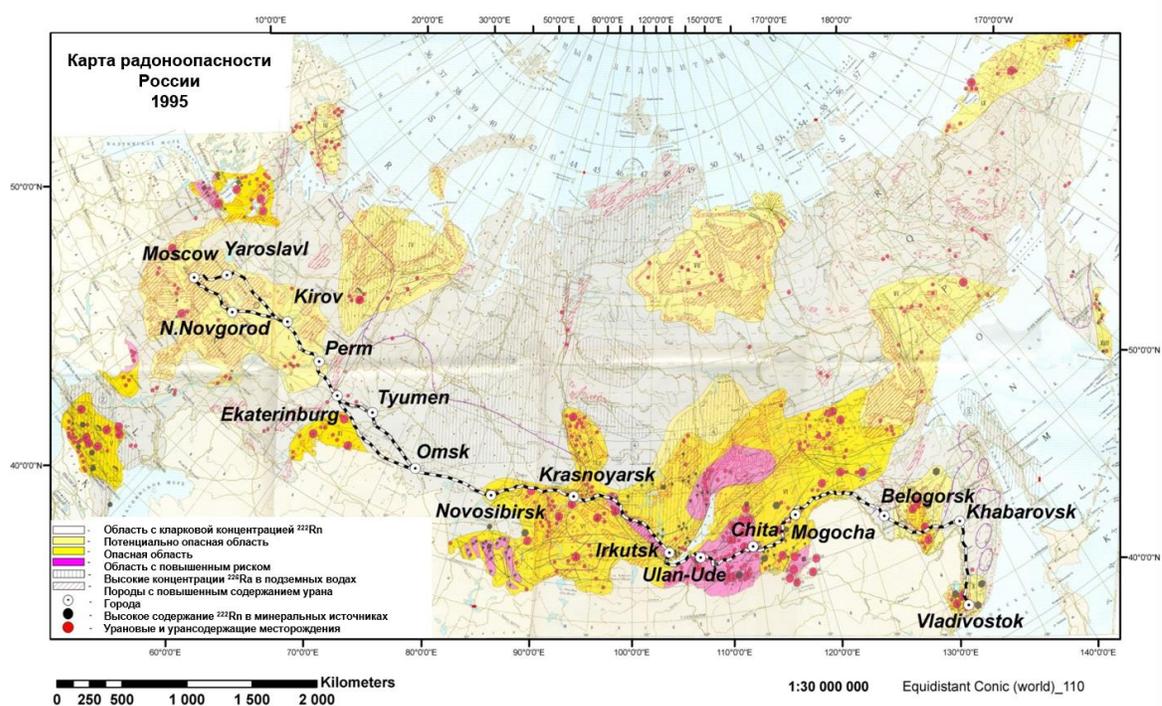
В данной работе анализируются результаты измерений приземных концентраций ^{222}Rn , CH_4 , CO_2 , O_3 , CO , NO и профилей температуры, полученные на передвижной лаборатории в ходе 6-ти экспедиций TROICA (12 проездов от Москвы до Владивостока) вдоль Транссибирской магистрали с 1999 по 2008 гг. (табл.3).

Таблица 3. Периоды и маршруты экспедиций TROICA, данные которых использованы в настоящей работе.

Экспедиция	Время года	Период	Маршрут
TROICA- 5	Лето	26.06.99 - 02.07.99 03.07.99 - 13.07.99	Н. Новгород – Хабаровск Хабаровск - Москва
TROICA- 7	Лето	27.06.01 - 03.07.01 04.07.01 - 10.07.01	Москва - Хабаровск Хабаровск - Москва
TROICA- 8	Весна	19.03.04 - 25.03.04 26.03.04 - 01.04.04	Н. Новгород - Хабаровск Хабаровск - Москва
TROICA- 9	Осень	04.10.05 - 10.10.05 11.10.05 - 18.10.05	Москва - Владивосток Владивосток - Москва
TROICA- 11	Лето	22.07.07 - 29.07.07 30.07.07 - 05.08.07	Москва - Владивосток Владивосток - Москва
TROICA- 12	Лето	21.07.08 - 28.07.08 29.07.08 - 04.08.08	Москва - Владивосток Владивосток - Москва

Маршрут экспедиций TROICA вдоль Транссибирской железнодорожной магистрали, нанесённый на карту радоноопасности России [Maximovsky et. al., 1996] представлен на рис.1. Протяжённость

маршрута от Москвы до Владивостока составляет ~ 9288 км, а продолжительность экспедиции ~ 2 недели. Мощность природных источников ^{222}Rn сильно варьирует вдоль маршрута. Значительная часть маршрута пролегает в горных регионах Южного Урала, Центральной и Восточной Сибири, характеризующихся высокими потоками радона из почвы (рис 5). Т.к. железная дорога пересекает плотно населенные индустриальные регионы Европейской территории России и Южной Сибири, антропогенное происхождение измеряемых концентраций ^{222}Rn также может быть важным.



Максимовский В.А., Смыслов А.А., Харламов М.Г. Карта радоноопасности России. Масштаб 1: 10 000 000 (Роскомнедра, ВСЕГЕИ, Госкомвуз, СПбГИ)

Рис.1. Карта радоноопасности России [Maximovsky et. al., 1996] с маршрутом экспедиций TROICA вдоль Транссибирской магистрали от Москвы до Владивостока.

Забор анализируемого воздуха во время экспедиций проводился непрерывно на высоте ~ 4 м над земной поверхностью в передней части вагона. Передвижная лаборатория, оснащенная автоматизированным измерительным комплексом, располагалась сразу за электровозом, что позволило исключить влияние следующего за ним поездного состава [Крутцен и др., 1996; Panin et al., 2001].

Концентрация ^{222}Rn измерялась анализатором дочерних продуктов распада ^{222}Rn , LLRDM (Low Level Radon Daughters Measurement), Tracer Lab (Германия). Метод измерения заключается в определении концентрации газа ^{222}Rn по концентрациям его дочерних продуктов распада (^{218}Po , $t_{1/2}$ (время полураспада) = 3,05 мин; ^{214}Pb , $t_{1/2} = 26,8$ мин; ^{214}Bi , $t_{1/2} = 19,7$ мин), осевших на оптоволоконный фильтр прибора в составе аэрозольных частиц. Данный метод относится к методам фильтрования и подробно описан в 1.2 (метод фильтрования для измерения ДПР ^{222}Rn) и в *Berezina et al.* [2013]. Диапазон измерений концентрации ^{222}Rn : 0,03-100 Бк/м³. Время одного измерения - 10 минут. Погрешность измерения - 15%.

Для измерения концентрации CH_4 использовался измеритель концентрации метана и неметановых углеводородов типа АРНА-360 (HORIBA, Япония). Основным измерительным элементом прибора является пламенно-ионизационный детектор, аналогичный применяемым в технике газовой хроматографии. Выходной сигнал детектора при подаче непосредственно на него анализируемого воздуха пропорционален суммарной концентрации CH_4 и всех неметановых углеводородов. Для разделения концентрации CH_4 и неметановых углеводородов в приборе применены селективные поглотители каталитического типа, помещенные в термостаты и поддерживаемые ими

при повышенных температурах (несколько сот °С). Отсекатель неметановых углеводородов поглощает все неметановые углеводороды, кроме CH_4 , а очиститель поглощает все углеводороды, в т.ч метан. В первой фазе цикла измерения на пламенно-ионизационный детектор подается анализируемый воздух, при этом измеряется суммарная концентрации CH_4 и неметановых углеводородов, а во второй фазе - воздух, прошедший через отсекаТЕЛЬ неметановых углеводородов. При этом измеряется концентрация только CH_4 . В промежутках между каждой фазой цикла на детектор подается воздух, прошедший каталитический очиститель, и не содержащий углеводородов. Диапазон измерений 0.05–50 ppm, время одного измерения – 10 сек, погрешность измерений не более 0.01 ppm.

Концентрация CO_2 измерялась газоанализатором LI6262 (LI-COR, США). Принцип действия прибора основан на измерении интенсивности ИК излучения, пропускаемом через кювету с измеряемым газом. Селективность прибора по концентрации CO_2 и нечувствительность к изменению концентраций иных газов обеспечивается имеющимися в оптической схеме спектральными фильтрами, настроенными на известные спектральные полосы поглощения CO_2 . В приборе также применяется компенсационный метод измерения, для чего излучение периодически направляется или в кювету с измеряемым газом, или в аналогичную кювету, через которую постоянно прокачивается газ, не содержащий CO_2 . Для полного поглощения CO_2 в этой кювете используется химический реагент, известный как Soda Lime. Особенностью конструкции прибора является отсутствие в его составе компрессора для прокачки исследуемого воздуха через кювету. При использовании прибора в составе комплекса применяется внешний компрессор и ротаметр для наблюдения за величиной потока воздуха

через прибор. Диапазон измерений - 0,2-3000 ppm. Погрешность измерений менее 0,2 ppm.

Концентрация O_3 измерялась газоанализатором DASIBI-1008-RS. Принцип действия прибора основан на измерении ослабления ультрафиолетового (УФ) излучения на длине волны 253 нм при прохождении последнего через кювету с пробой исследуемого воздуха. Для повышения точности измерений в приборе применен метод сравнения, для чего измерительная кювета последовательно заполняется пробой анализируемого воздуха, и пробой воздуха, прошедшего через т.н. нулевой фильтр, полностью разрушающий весь содержащийся в пробе O_3 . Измеренные значения ослабления УФ излучения анализируются микропроцессором прибора, в результате чего по известному уравнению Бэра вычисляется концентрация O_3 с учетом поправок на температуру и давление воздуха, также измеряемые имеющимися в приборе датчиками. Индикация измеренного значения концентрации O_3 производится с помощью 5-разрядного цифрового индикатора. Диапазон измерений: 1 – 1000 ppbv, погрешность ~ 1 ppbv.

Концентрация NO измерялась приборами AC30M (Environmental SA, Франция) в экспедиции TROICA-5 (диапазон измерений 1 – 1000 ppb), TE42C-TL (Thermo ELeCtron Inc., США) в экспедициях TROICA-7, 8 и 9 (диапазон измерений 0,05 – 200 ppb) и M200AU (Teledyne API, США) в экспедициях TROICA-11 и 12 (диапазон измерений 0,05 – 2000 ppb). Принцип действия всех приборов основан на измерении интенсивности хемилюминесцентного излучения, возникающего при реакции NO и O_3 . Поток анализируемого воздуха поступает в реакторную камеру, в которую также подается O_3 от специального генератора. Инфракрасное хемилюминесцентное излучение, с

интенсивностью, пропорциональной измеряемой концентрации NO, воспринимается ФЭУ, после чего вычисляется измеренная концентрация NO. Приборы TE42C-TL и M200AU относятся к классу высокоточных приборов, позволяющих проводить измерения приземных концентраций NO в фоновых условиях (от 0.050 ppb) с точностью 0,5 % от показаний. Для всех приборов погрешность измерения составляет ~1%.

Для измерения концентрации CO применялся газоанализатор TE48S (Thermo Environmental Instruments Inc., США) с диапазоном измерений 10 –1000 ppm и погрешностью – 10 ppm. В этом приборе, использующем принцип корреляционного фильтра, излучение от источника предварительно пропускается через кювету, заполненную азотом, или через кювету, заполненную измеряемым газом (CO) в высокой концентрации. Обе кюветы вмонтированы во вращающийся барабан, так что излучение периодически пропускается или через кювету с азотом, или через кювету с CO. Азот не поглощает излучение, а кювета с высокой концентрацией CO поглощает излучение максимально, так что дополнительное поглощение измеряемым газом не может изменить его интенсивность. В результате, на детекторе излучения выделяется периодический сигнал с периодом вращения барабана с двумя кюветами (корреляционного фильтра), амплитуда которого связана с измеряемой концентрацией. Максимальной амплитуде сигнала соответствует минимальная концентрация измеряемого газа.

Вертикальный профиль температуры измерялся прибором МТП-5, (АТТЕХ, Россия) от уровня крыши вагона (около 4 метров), где был установлен прибор, до высоты 600 м над землёй. Вертикальное разрешение получаемых профилей – 50 метров, а разрешение по времени

– 5 минут. Точность прибора – 0.2-0.5°C. Прибор измеряет тепловое излучение атмосферы в центре полосы поглощения молекулярного кислорода (до 60 ГГц) под разными зенитными углами. По данным наблюдений определяется яркостная температура и восстанавливается вертикальный профиль температуры [Kadygrov и Pick, 1998].

2.2 Пространственные вариации приземной концентрации ^{222}Rn над территорией России

На рис.2 представлено пространственное распределение полученных 10-ти минутных средних значений приземной концентрации ^{222}Rn и его 10-й, 50-й и 90-й перцентилей, рассчитанных для каждого 100-километрового участка пройденного поездом маршрута. Для весенних и летних данных представлена только 50-я перцентиль значений из-за недостатка данных для расчёта. На рисунке также представлена высота над у.м. вдоль маршрута экспедиций для представления рельефа проезжаемой местности, играющего важную роль в пространственном распределении приземной концентрации ^{222}Rn .

Мы разделили территорию России вдоль Транссибирской железнодорожной магистрали на 6 регионов в соответствии с их геологическими особенностями: ЕТР, Европейская территория России (Москва-Пермь), Урал (Пермь-Екатеринбург), Западная Сибирь (Екатеринбург-Новосибирск), Центральная Сибирь (Новосибирск-Иркутск), Восточная Сибирь (Иркутск-Белогорск) и Дальний Восток (Белогорск-Владивосток). Из рисунка видно, что даже в пределах геологически однородных регионов имеют место значительные вариации приземной концентрации ^{222}Rn .

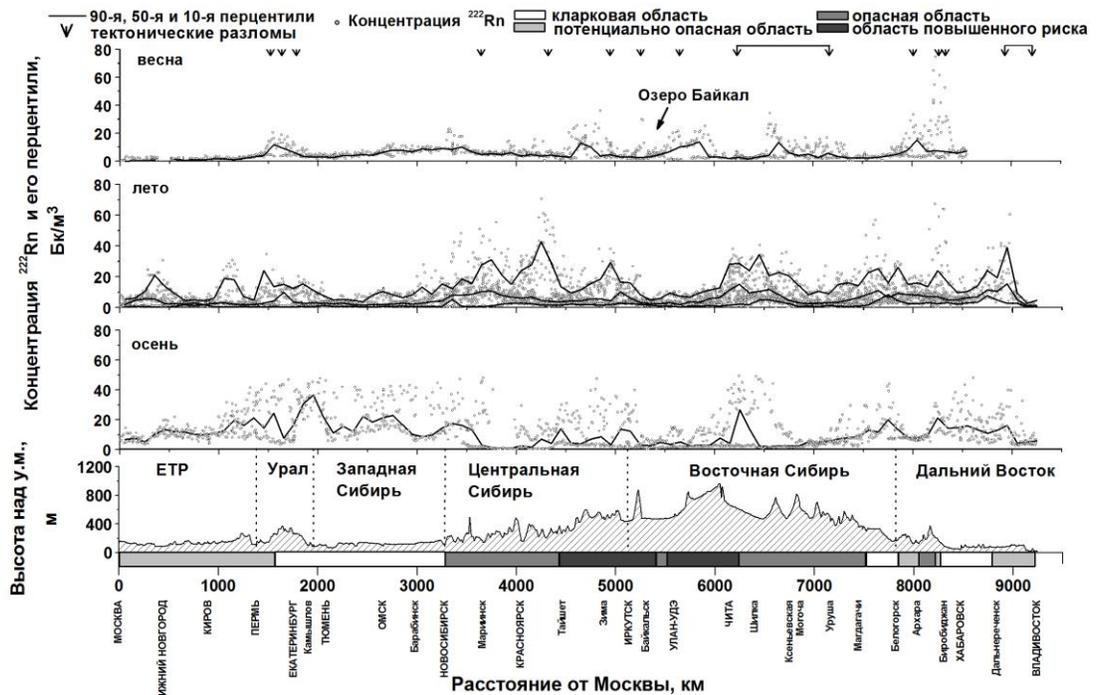


Рис. 2. Пространственное распределение приземной концентрации ^{222}Rn (средние 10 – минутные значения) и высота над у.м. от Москвы до Владивостока по данным экспедиций TROICA. Области радонового риска, соответствующие карте радоноопасности России представлены закрашенными прямоугольниками на нижнем графике.

Однако, следует отметить, что представленные временные ряды не отражают непосредственного влияния геологических особенностей исследуемых регионов на высокие концентрации ^{222}Rn в приземном воздухе, и зависят, главным образом, от скорости вертикального обмена, обусловленного суточными вариациями пограничного слоя атмосферы. Увеличение концентрации ^{222}Rn в приземном слое, наблюдавшееся во время экспедиций, обусловлено его ночным накоплением во время инверсий температуры. Статистические характеристики пространственно усреднённых часовых суточных и дневных значений концентрации ^{222}Rn для каждого региона в различные сезоны приведены

в табл. 4. Из таблицы следует, что в большинстве случаев средние суточные значения концентрации ^{222}Rn существенно выше дневных для всех сезонов и регионов в следствие эффекта ночного накопления ^{222}Rn в условиях устойчивой атмосферной стратификации с инверсиями температуры (обсуждается подробнее в 2.3). Однако, следует отметить несколько эпизодов с высокой дневной концентрацией ^{222}Rn весной (ЕТР и Урал) и осенью (ЕТР и Дальний Восток). Предполагается, что это связано, главным образом, с продолжительными инверсиями температуры (до полудня) в данных регионах весной и осенью (табл.5 и 6). Ограниченное число экспериментов, проводившееся в каждый сезон (см. табл.3) не позволяет полностью исключить эффект ночного накопления из полученных в ходе экспедиций данных. Тем не менее, в данной работе анализируются крупномасштабные особенности пространственного распределения ^{222}Rn , основанные на статистических данных его дневных приземных концентраций, которые отражают его континентальное фоновое содержание в атмосферном воздухе (табл.4). Из табл. 4 следует, что наиболее высокие дневные концентрации ^{222}Rn получены на Дальнем Востоке ($7,0 \pm 1,7$ и $7,3 \pm 5,8$ Бк/м³ весной и летом, соответственно) и в Центральной Сибири ($5,9 \pm 4,3$ и $6,8 \pm 5,2$ Бк/м³ весной и летом, соответственно). Однако, осенью 2005 г. высокие концентрации ^{222}Rn отмечались на ЕТР и в Западной Сибири ($13,3 \pm 6,4$ и $17,9 \pm 10,6$, соответственно). Вероятно, причина такого нетипичного для данных регионов роста концентрации ^{222}Rn связана с двумя факторами: устойчивыми антициклональными условиями с мощными и продолжительными (до 16 часов) инверсиями температуры, имевшими место во время наблюдений осенью 2005 г. в данных регионах (что

подтверждают средние суточные значения концентрации ^{222}Rn) и влиянием регионального атмосферного переноса ^{222}Rn . В целом, в осенний период наблюдений концентрации ^{222}Rn выше по сравнению с другими сезонами для всех российских регионов (рис.2 и табл.4). Факторы, которые могли обуславливать такие сезонные вариации концентрации ^{222}Rn будут подробно описаны далее в 2.3.1 и 2.3.2.

Автором данной диссертационной работы проведено сравнение данных приземной концентрации ^{222}Rn , полученных в экспедициях TROICA с картой радоноопасности России [Maximovsky et. al., 1996], составленной на основе обобщённых аналитических данных по радиогеохимии, радиометрическим наблюдениям и других материалах, полученных по данным долговременных наблюдений различными российскими научными институтами.

Авторы карты радоноопасности России разделили территорию России на географические области в соответствии со степенью радонового риска (см. рис 5). По данным TROICA, концентрации ^{222}Rn в областях повышенного радонового риска, отмеченных на карте, как правило, ниже концентраций ^{222}Rn , измеренных в радоноопасных регионах (см.табл.4 и рис.2). Наблюдаемые высокие концентрации ^{222}Rn между Магдагачи и Архарой (рис.1) приходятся как на радоноопасные, так и на кларковые радоновые области (области, где концентрация ^{222}Rn равна или ниже его среднего значения в земной коре), что, вероятно, связано с местными метеорологическими условиями, наблюдавшимися во время экспедиций (инверсии температуры). В целом, полученные в экспедициях TROICA данные о пространственных и временных вариациях приземной концентрации ^{222}Rn согласуются с данными карты

радоноопасности России [Maximovsky et. al., 1996], что подтверждает достоверность полученных в экспедициях TROICA данных приземной концентрации ^{222}Rn и позволяет использовать их для региональных оценок его потока из почвы в атмосферу над территорией России.

Таблица 4. Статистические характеристики осреднённых 1-часовых суточных и дневных концентраций ^{222}Rn для различных регионов России в различные сезоны измерений.

№	Регион	Суточные		Дневные			
		среднее	Стандар тное отклоне ние	среднее	Стандар тное отклоне ние	Мин.	Макс.
Весна							
I	ЕТР	2,0	0,9	2,0	1,2	0,4	3,9
II	Урал	4,9	2,7	5,0	3,9	2,6	14,3
III	Западная Сибирь	6,3	2,5	5,3	1,9	3,2	8,8
I	Центральная	6,7	4,3	5,9	4,3	1,9	25,5
V	Восточная Сибирь	8,0	6,5	4,4	3,8	0,3	16,9
V	Дальний Восток	17,6	14,8	7,0	1,7	4,8	10,5
Лето							
I	ЕТР	4,0	4,5	2,1	3,5	0,1	21,0
II	Урал	6,9	7,1	4,7	1,1	0,5	4,1
III	Западная Сибирь	3,7	3,3	2,9	2,6	0,6	12,5
I	Центральная	9,5	8,5	6,8	5,2	1,0	29,2
V	Восточная Сибирь	7,5	6,6	4,6	4,1	0,3	33,4
V	Дальний Восток	8,8	7,0	7,3	5,8	0,4	39,3
Осень							
I	ЕТР	12,8	7,0	13,3	6,4	7,7	24,5
II	Урал	22,6	13,4	7,0	2,2	4,6	10,2
III	Западная Сибирь	22,3	10,9	17,9	10,6	6,9	38,2
I	Центральная	11,3	10,2	7,8	6,5	0,6	18,4
V	Восточная Сибирь	9,6	10,2	6,3	6,3	1,0	28,9
V	Дальний Восток	12,4	7,2	12,4	7,0	6,7	28,4

Номер региона (расстояние в км от Москвы): I - Москва-Пермь (0-1380 км); II - Пермь-Екатеринбург (1380-1904 км); III - Екатеринбург-Новосибирск (1904-3283 км); IV - Новосибирск-Иркутск (3283-5136 км); V - Иркутск-Белогорск (5136-7818 км); VI - Белогорск-Владивосток (7818-9242 км), ЕТР – Европейская территория России.

Таблица 5. Характеристики приземных инверсий температуры, осреднённые по сезонам.

Характеристики инверсии		Весна (TROICA-8)	Лето (TROICA-5,7,11,12)	Осень (TROICA-9)
Мощность инверсии, м	среднее (\pm стандартное отклонение)	220 \pm 145	210 \pm 119	198 \pm 101
	минимум	50	50	50
	максимум	500	600	600
Величина инверсии ($\Delta T = T_{\max} - T_{4m}$), °C	среднее (\pm стандартное отклонение)	4,5 \pm 3,7	2,9 \pm 2,3	5,1 \pm 3,4
	минимум	0,2	0,2	0,2
	максимум	16,9	13,0	14,9
Продолжительность инверсии, мин	среднее (\pm стандартное отклонение)	300 \pm 210	245 \pm 170	365 \pm 300
	минимум	45	40	60
	максимум	860	710	990
Градиент температуры, °C/100 м	среднее (\pm стандартное отклонение)	1,9 \pm 0,9	1,3 \pm 0,6	2,5 \pm 1,3
	минимум	0,2	0,2	0,2
	максимум	6,6	10,7	8,9

Таблица 6. Регионально усреднённые характеристики приземных инверсий температуры для осенней и летних экспедиций. Номер региона (расстояние в км от Москвы): I - Москва-Пермь (0-1380 км); II - Пермь-Екатеринбург (1380-1904 км); III – Екатеринбург-Новосибирск (1904-3283 км); IV - Новосибирск-Иркутск (3283-5136 км); V - Иркутск-Белогорск (5136-7818 км); VI - Белогорск-Владивосток (7818-9242 км), ЕТР – Европейская территория России. Весенние значения исключены из рассмотрения вследствие недостатка данных для усреднения.

№	Регион	Мощность инверсии, м			Величина инверсии ($\Delta T = T_{\max} - T_{4m}$), °C			Продолжительность инверсии, мин		
		Среднее (\pm стандартное отклонение)	минимум	максимум	Среднее (\pm стандартное отклонение)	минимум	максимум	Среднее (\pm стандартное отклонение)	минимум	максимум
Лето										
I	ЕТР	220±120	50	600	2,7±1,9	0,2	11,2	265±150	71	500
II	Урал	150±80	50	350	1,9±1,3	0,2	5,6	160±90	71	320
III	Западная Сибирь	200±90	50	500	2,9±1,9	0,2	9,4	275±105	125	382
IV	Центральн ая Сибирь	225±130	50	600	3,3±2,7	0,2	11,9	225±170	55	608
V	Восточная Сибирь	200±130	50	600	2,7±2,2	0,2	14,5	200±170	40	672
VI	Дальний Восток	220±115	50	600	3,1±2,4	0,2	13,0	385±215	105	711
Осень										
I	ЕТР	128±91	50	350	1,8±1,5	0,2	6,7	291±320	100	771
II	Урал	215±89	50	350	4,8±2,2	0,2	10,3	-	-	465
III	Западная Сибирь	265±92	50	600	8,0±3,1	0,2	14,9	435±351	100	800
IV	Центральн ая Сибирь	179±91	50	350	4,7±3,0	0,2	13,8	375±382	105	645
V	Восточная Сибирь	225±114	50	600	5,7±3,3	0,2	16,0	312±331	60	991
VI	Дальний Восток	185±82	50	350	4,1±2,1	0,2	13,6	458±341	70	861

2.3. Временная изменчивость приземной концентрации ^{222}Rn

2.3.1. Суточные и сезонные вариации

В экспериментах TROIA наибольшие приземные концентрации ^{222}Rn (до 75 Бк/м^3) обычно наблюдались ночью во время мощных и продолжительных инверсий температуры. На рис.3 представлен средний суточный ход верхней границы приземной инверсии температуры и концентрации ^{222}Rn в различные сезоны наблюдений.

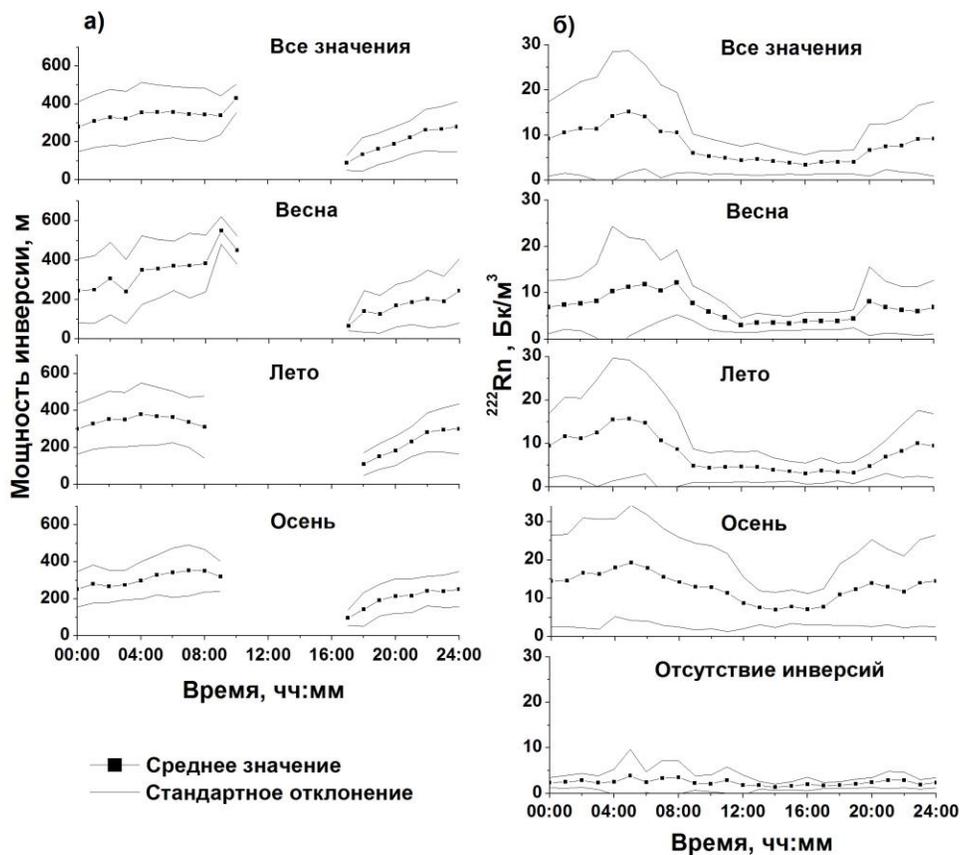


Рис.3. Средние суточные вариации верхней границы инверсии температуры (а) и приземной концентрации ^{222}Rn (б) по данным экспериментов TROICA.

Приземная инверсия температуры во время экспедиций имела место, как правило, с 18-19 до 06-08 ч. по местному времени в тёплое время года и с 17 до 09-10 ч. по местному времени в холодное время года (рис. 3а). Максимальные концентрации ^{222}Rn (в среднем до 30-35 Бк/м³) наблюдались рано утром (04-06 ч. по местному времени), что обусловлено ночным накоплением ^{222}Rn в приземном подынверсионном слое в течение ночи и резким уменьшением его концентрации в среднем в 3-5 раз после разрушения инверсии температуры в результате конвективного перемешивания. При отсутствии ночной инверсии температуры накопления ^{222}Rn в приземном слое не происходит, его средняя концентрация не изменяется существенно в течение суток и составляет 1,5 – 3,5 Бк/м³ (рис. 3б с подписью “отсутствие инверсии температуры”).

В табл. 7 представлены суточные и дневные концентрации ^{222}Rn в различные сезоны наблюдений в экспедициях TROICA. Для исключения влияния эффекта ночного накопления ^{222}Rn на представленные статистические данные, измерения, полученные в условиях дневных инверсий температуры не учитывались. Таким образом, средние дневные значения приземной концентрации ^{222}Rn оказались в среднем в 1,5-2 раза ниже суточных во все сезоны наблюдений. Наибольшие суточные и дневные концентрации ^{222}Rn получены осенью в следствие наиболее мощных и продолжительных инверсий температуры в этот период наблюдений (см. табл. 5 и 6), что подтверждает ведущую роль вертикального атмосферного перемешивания в сезонной изменчивости приземной концентрации ^{222}Rn .

Таблица 7. Сезонные вариации средних суточных и дневных (при отсутствии инверсии температуры) значений концентрации ^{222}Rn (Бк/м³).

		Среднее (± стандартное отклонение)	Мода	Медиана	Максимум	Минимум	Нижний квартиль (25%)	Верхний квартиль (75%)
Лето	суточные	7,2±7,8	3,1	4,8	70,7	<0,1	2,3	9,3
	дневные	4,5±4,1	3,0	3,2	21,2	<0,1	1,7	6,2
Осень	суточные	12,6±10,9	5,2	9,3	49,4	0,2	4,2	17,5
	дневные	6,1±4,7	2,2	5,1	29,6	0,2	2,2	8,9
Весна	суточные	6,7±6,7	3,6	4,7	74,8	0,2	3,0	7,8
	дневные	3,7±2,1	3,6	3,3	13,4	0,3	2,3	4,6

2.3.2. Эффект сезонного протаивания почвы на изменение приземной концентрации ^{222}Rn

Главным фактором, регулирующим поступление ^{222}Rn из почвы в атмосферу, т.е. его поток, как уже отмечалось в главе 1, является состояние почвы, в том числе наличие на поверхности почвы снега и/или льда. *Glover* [2006] и *Glover and Blouin* [2007] отметили, что многолетнемерзлые грунты являются барьером, препятствующим выделению ^{222}Rn из почвы в атмосферу, способствуя увеличению его концентрации в почве в 10-15 раз. Поскольку значительная часть Транссибирской магистрали в Восточной Сибири проходит по вечной мерзлоте, возможно влияние сезонного протаивания почвы в период

проведения экспериментов TROICA на сезонные вариации приземной концентрации ^{222}Rn . Для периодов проведения экспедиций TROICA была рассчитана глубина протаивания почвы для региона 52 – 55° с.ш., 105 – 130° в.д. с использованием схемы процессов тепло- и влагопереноса в почве [Arganov, 2008] для заданного по климатической модели ECHAM5/MPI-OM внешнего атмосферного воздействия (сценарий SRES A1B). Результаты расчётов представлены на рис.4.

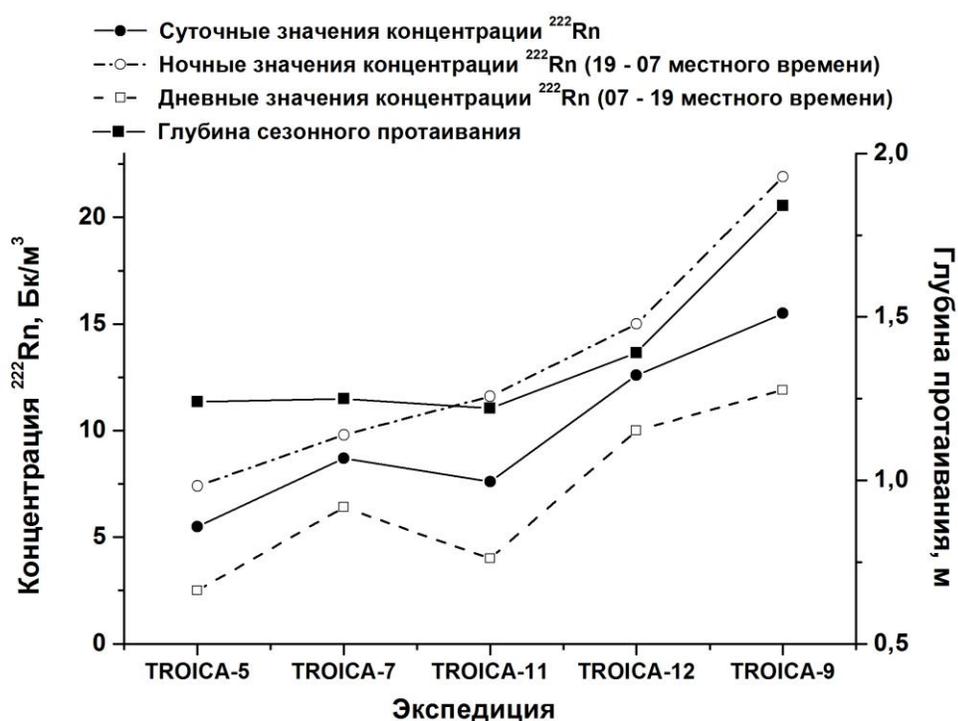


Рис. 4. Средние значения приземной концентрации ^{222}Rn , полученные по данным TROICA, и глубина сезонного протаивания почвы, рассчитанная для периодов экспедиций в регионе 52-55 С.Ш., 105-130 В.Д. на основе модели ECHAM5/MPI-OM (сценарий SRES A1B).

Для выделения эффекта ночного накопления ^{222}Rn в подынверсионном слое, на рисунке отдельно приведены графики средних дневных (07:00-18:00 ч) и ночных (18:00-07:00 ч.) значений

концентрации ^{222}Rn в исследуемом регионе по наблюдениям в экспедициях TROICA. Средние дневные значения концентрации ^{222}Rn рассчитывались для данных, полученных при отсутствии инверсии температуры. Используемая модель предсказала глубину протаивания почвы около 1,24, 1,40 и 1,85 м для летних экспедиций TROICA-5,7,11,12 и осенней экспедиции TROICA-9, соответственно. Из рисунка видно, что одновременно с ростом глубины протаивания почвы с лета 1999 г. (TROICA-5) по лето 2008 г. (TROICA-12) приземная концентрация ^{222}Rn в исследуемом регионе выросла в 3 раза (средние дневные значения), достигнув максимума осенью 2005 г. (TROICA-9). Таким образом, можно предположить, что рост глубины сезонного протаивания почвы в регионах с распространением многолетнемерзлых пород может приводить к росту концентрации ^{222}Rn в приземном воздухе.

2.4. Выводы к главе 2

Существенные вариации приземной концентрации ^{222}Rn вдоль Транссибирской железнодорожной магистрали обусловлены суточной изменчивостью устойчивости пограничного слоя атмосферы. Наиболее высокие концентрации ^{222}Rn в приземном слое (до 75 Бк/м³) в экспедициях TROICA обычно наблюдались ночью во время мощных и продолжительных инверсий температуры. Вследствие слабого турбулентного перемешивания (при устойчивой температурной стратификации), ^{222}Rn накапливается в приземном слое атмосферы, и его концентрация увеличивается в 3-5 раз по сравнению с его содержанием в воздухе при неустойчивой стратификации атмосферы. Высокие концентрации ^{222}Rn (45-75 Бк/м³) характерны для горных регионов

России (Центральная и Восточная Сибирь, Дальний Восток). Наибольшие средние суточные концентрации ^{222}Rn над территорией России наблюдались осенью ($12,6 \pm 10,9$ Бк/м³) в следствие наиболее мощных и продолжительных инверсий температуры в этот период наблюдений, а наименьшие ($6,7 \pm 6,7$ Бк/м³) в весенний период наблюдений, когда наличие на поверхности снежного и ледяного покрова препятствует потоку ^{222}Rn из почвы в атмосферу. Наиболее высокие средние дневные концентрации ^{222}Rn , главным образом отражающие влияние локальных факторов: геологических особенностей исследуемой территории и регионального атмосферного переноса ^{222}Rn , получены на Дальнем Востоке ($7,0 \pm 1,7$ и $7,3 \pm 5,8$ Бк/м³ весной и летом, соответственно) и в Центральной Сибири ($5,9 \pm 4,3$ и $6,8 \pm 5,2$ Бк/м³ весной и летом, соответственно). Однако, осенью 2005 г. высокие концентрации ^{222}Rn отмечались на ЕТР и в Западной Сибири ($13,3 \pm 6,4$ и $17,9 \pm 10,6$, соответственно). Вероятно, причина такого нетипичного для данных регионов роста концентрации ^{222}Rn связана с двумя факторами: устойчивыми антициклональными условиями с мощными и продолжительными (до 16 часов) инверсиями температуры, имевшими место во время наблюдений осенью 2005 г. в данных регионах (что подтверждают средние суточные значения концентрации ^{222}Rn) и влиянием регионального атмосферного переноса ^{222}Rn . Отмечено возможное влияние глубины сезонного протаивания почвы в регионах России, где распространена вечная мерзлота, на изменение приземной концентрации ^{222}Rn . Рост глубины сезонного протаивания почвы может приводить к увеличению потока ^{222}Rn из почвы за счёт интенсивной миграции накопившегося в замёрзших грунтах ^{222}Rn в

приповерхностный слой почвы и его эксхалации в атмосферу, а, следовательно, к росту концентрации ^{222}Rn в приземном слое атмосферы.

В целом, полученные в экспедициях TROICA данные о пространственных и временных вариациях приземной концентрации ^{222}Rn согласуются с данными карты радоноопасности России [Maximovsky et. al., 1996], что подтверждает достоверность полученных в экспедициях TROICA данных приземной концентрации ^{222}Rn и позволяет использовать их для региональных оценок его потока из почвы в атмосферу над территорией России.

Глава 3. Количественная оценка потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу по измерениям в экспедициях TROICA

3.1 Метод оценки потока ^{222}Rn

Оценка потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу проводилась по измерениям его приземной концентрации в экспедициях TROICA для ночных эпизодов (далее эпизоды) с инверсией температуры, когда происходило накопление ^{222}Rn в приземном подынверсионном слое. Для расчётов использовалась математическая модель, основанная на нестационарном уравнении диффузии газов в атмосфере. Для каждого эпизода определялось время установления инверсии температуры – t_1 и время максимальной наблюдаемой концентрации ^{222}Rn в приземном слое, что примерно соответствовало началу разрушения инверсии температуры - t_2 . Продолжительность отдельного эпизода варьирует от 3 до 13 часов. Так как обычно скорость движения поезда с передвижной обсерваторией составляет 50 – 70 км/ч, то пройденное поездом расстояние L во время каждого эпизода составляет от 150 до 1000 км. Расчёты проводились при следующих предположениях:

1. Во время каждого эпизода с соответствующим расстоянием L поток ^{222}Rn из почвы постоянен во времени и пространстве;
2. В момент времени t_1 приземная концентрация ^{222}Rn однородно распределена в пространстве в пределах каждого эпизода с соответствующим расстоянием L ;
3. Вертикальный транспорт ^{222}Rn ограничен высотой верхней границы инверсии;

4. Любые локальные изменения приземной концентрации ^{222}Rn в подынверсионном слое в следствие адвекции воздуха пренебрежимо малы по сравнению с вертикальным транспортом за счёт турбулентной диффузии.

Последнее предположение основано на том, что во время мощной приземной температурной инверсии горизонтальные движения воздуха в пограничном слое атмосферы в целом очень слабы, поэтому мы не учитываем адвекцию воздуха от антропогенных источников ^{222}Rn , и предполагаем, что основным источником ^{222}Rn в подынверсионном слое является его поток из почвы. Таким образом, пространственное изменение вертикального распределения ^{222}Rn в подынверсионном слое высотой H позволяет нам рассчитать скорость накопления ^{222}Rn , Q , (Бк/сек) для его общего содержания в столбе атмосферы ниже H , что определяет его поток из почвы для предположений 1-4. Общее содержание ^{222}Rn в вертикальном столбе атмосферы рассчитывалось на основе решения нестационарного уравнения диффузии:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(K(z) \frac{\partial c}{\partial z} \right) - \lambda c, \quad z_0 < z < H \quad (1)$$

где c [Бк/м³] - концентрация ^{222}Rn , K [м²/с] – зависимый от высоты коэффициент турбулентно диффузии, λ ($\approx 2.08 \cdot 10^{-6} \text{ с}^{-1}$) – константа распада ^{222}Rn , z_0 (≈ 4 м над поверхностью земли) – не зависящая от времени высота измерений на которой $c_0 \equiv c(z_0, t \geq t_1)$ - заданная функция по измеренным концентрациям ^{222}Rn . Соответствующие начальные и граничные условия для (1):

$$c(z, t_1) = c_0(t_1), \quad (z_0 \leq z \leq H) \quad (2)$$

$$c(z_0, t) = c_0(t), \quad \left(\frac{\partial c}{\partial z} \right)_{z=H} = 0, \quad (t_1 < t < t_2) \quad (3)$$

Таким образом, в соответствии с (2) в момент времени t_1 концентрация ^{222}Rn равна измеренному значению в момент формирования инверсии температуры и предположительно равномерно распределена в вертикальном столбе атмосферы вследствие активного дневного перемешивания. Для решения уравнений (1-3) была использована неявная разностная схема на одномерной сетке с шагом по высоте $\Delta_z = 1$ м и по времени $\tau = 6$ сек для выбранного профиля $K(z)$.

Равномерные сетки по высоте с шагом Δ_z и по времени с шагом τ задаются следующими соотношениями:

$$z_i = z_0 + \Delta_z i, i = 0, 1, \dots, N_z \quad (4)$$

$$\tau_j = t_1 + \tau j, j = 0, 1, \dots, N_t \quad (5)$$

Известная зависимость коэффициента диффузии по высоте задается сеточной функцией K_i :

$$K_i = K(z_i) \quad (6)$$

Будем искать сеточную аппроксимацию концентрации радона в пространстве и времени:

$$c_{i,j} = c(z_i, \tau_j) \quad (7)$$

Зависимость концентрации радона у Земли ($i = 0$) от времени известна:

$$c_{0,j} = c_0(\tau_j) \quad (8)$$

Условие отсутствия потока через верхнюю границу инверсии запишем как

$$\frac{c_{N_z,j} - c_{N_z-1,j}}{\tau} = 0 \Leftrightarrow c_{N_z,j} = c_{N_z-1,j} \quad (9)$$

Исходное распределение радона по высоте в начальный момент времени считаем равномерным и известным:

$$c_{i,0} = c_0(t_1) \quad (10)$$

Дифференциальное уравнение в частных производных записываем в виде неявного разностного уравнения:

$$\frac{c_{i,j+1} - c_{i,j}}{\tau} = \frac{K_{i+1}c_{i+1,j+1} - (K_{i+1} + K_i + \lambda\Delta_z^2)c_{i,j+1} + K_ic_{i-1,j+1}}{\Delta_z^2}, \quad (11)$$

$$i = 1, 2, \dots, N_z - 1; j = 0, 1, \dots, N_t - 1;$$

Перенесем известные слагаемые в правую часть

$$\tau K_{i+1}c_{i+1,j+1} - (\tau(K_{i+1} + K_i) + \Delta_z^2(1 + \tau))c_{i,j+1} + \tau K_ic_{i-1,j+1} = \Delta_z^2 c_{i,j} \quad (12)$$

Задача решения разностного уравнения сводится к решению СЛАУ с трехдиагональной матрицей:

$$A_i c_{i+1,j} - B_i c_{i,j} + C_i c_{i-1,j} = F_i; i = 0, 2, \dots, N_z \quad (13)$$

Здесь

$$A_i = \tau K_{i+1}; B_i = \tau(K_{i+1} + K_i) + \Delta_z^2(1 + \tau); C_i = \tau K_i; F_i = \Delta_z^2 c_{i,j-1};$$

$$i = 1, 2, \dots, N_z - 1; j = 0, 1, \dots, N_t - 1;$$

$$A_0 = C_0 = 0; B_0 = 1; F_0 = -c_0(\tau_j)$$

$$A_{N_z} = 0; C_{N_z} = B_{N_z} = 1; F_{N_z} = 0$$

Трехдиагональную СЛАУ решаем методом прогонки [Бахвалов и др., 2003].

Если известно вертикальное распределение ^{222}Rn , то его общее содержание M в вертикальном столбе атмосферы и скорость накопления Q в слое $0 \leq z \leq H$ в момент времени t_i рассчитывается по следующим уравнениям:

$$M(t_i) = \int_0^H c(t, z) dz = \sum_j c(z_j, t_i) \cdot \Delta z, \quad (14)$$

$$Q = \overline{(dM/dt)}^t \approx (M_{t=t_2} - M_{t=t_1}) / (t_2 - t_1), \quad (15)$$

Известно, что во время устойчивой атмосферной стратификации коэффициент турбулентной диффузии K у земной поверхности очень мал, но его вариации с высотой значительны и зависят от вертикальной изменчивости скорости ветра и атмосферной устойчивости. Согласно *Cohen et al.* [1972] линейная зависимость K от z в приземном слое ниже 100 метров (при независимом от высоты K выше 100 м) задаётся следующим образом:

$$K(z) = K(z_1) \cdot z/z_1, \quad (z < H) \quad (16)$$

Где $K(z_1)$ - известный коэффициент турбулентной диффузии на высоте z_1 .

Значение H принимается постоянным (= 600 м) и выбрано по данным измерений профиля температуры в нескольких экспедициях TROICA таким образом, чтобы исходный результат расчёта потока ^{222}Rn не отличались существенно от известных средних континентальных значений потока ^{222}Rn . Для расчётов использовались вертикальные профили K в приземном слое от 1 м над у.з. (уровнем земли), заданные

Jacobi and Andre [1963] (профили WNW и IWN на рис.1 в указанной работе) и использованные в работах по исследованиям вертикального распределения ^{222}Rn в атмосфере (*Beck and Gogolak*, 1979; *Moses et al.*, 1960). Расчёты были также основаны на возможном диапазоне $K(z_1)$ для тёплого периода измерений вдоль маршрута TROICA, полученном на основе модельных значений K на высотах 50 – 100 м над у.з с использованием базы данных NOAA ARL Archived Meteorology (<http://ready.arl.noaa.gov/READYamet.php>).

Были выбраны профили $K(z)$, характеризующие 2 класса устойчивости атмосферы: $\Delta T_{100} > 4.0^\circ\text{C}$ – очень устойчивая (G), и $\Delta T_{100} = 1.5-4.0^\circ\text{C}$ – среднеустойчивая (F) в соответствии с общепринятой классификацией *Pasquill* [1961], где ΔT_{100} – изменение температуры в приземном 100-метровом слое. Наибольшие градиенты температуры в инверсионных условиях наблюдались весной и осенью (TROICA-8 и 9) вследствие устойчивых антициклональных условий, имевших место на большей части маршрута. Таким образом, выбранные классы G и F полностью характеризуют диапазон значений ΔT_{100} , наблюдавшихся в экспедициях TROICA во время приземных инверсий температуры (Табл.5 и 6). Профили K задавались следующим образом:

$$K(z_1) = \begin{cases} 10 \text{ cm}^2/\text{s} & \text{for class G,} \\ 100 \text{ cm}^2/\text{s} & \text{for class F.} \end{cases} \quad z_1 = 1 \text{ m} , \quad (17)$$

Выбранные профили согласуются с результатами, представленными в *Bezuglaya* [1983] для регионов России и со средним значением K в 90-метровом приземном слое, представленном в *Hosler et al.* [1983] для класса устойчивости F. Так как выбор значений $K(z)$ существенно влияет

на результаты оценки потока ^{222}Rn , проведены 2 серии расчётов со значениями $K(z_1)$, заданными в (17) для получения надёжного диапазона значений потоков ^{222}Rn для каждого эпизода.

Пример расчёта потока ^{222}Rn по формулам 1-17 для участка пути 1256 - 1076 км от Москвы 10 июля 2001 г. в 02:54 – 06:10 по местному времени (ТРОИКА-7) представлен на рис. 5. Данный регион расположен на равнинной территории с высотой 150 – 200 м над у.м. На рисунке представлены временная изменчивость температуры воздуха на разных высотах над у.з., измеренная концентрация ^{222}Rn и рассчитанное общее содержание ^{222}Rn в столбе атмосферы, изменяющееся примерно линейно со временем. Согласно уравнению (14), наклон прямой регрессии M от t представляет собой поток ^{222}Rn из почвы для данного эпизода (Q).

В отдельных эпизодах условия атмосферного транспорта в приземном инверсионном слое изменялись во времени и в пространстве. Поэтому точно оценить его влияние на изменение скорости накопления ^{222}Rn весьма сложно, учитывая недостаточность данных о полном наборе параметров, описывающих условия турбулентного перемешивания во время экспедиций. Так как точное значение градиента температуры в условиях наблюдаемых инверсий температуры изменяется в диапазоне классов устойчивости G и F, проводилось 2 серии расчётов с $K(z_1) = 10$ и $100 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ в соответствии с уравнением (17). В результате получено 2 значения потока ^{222}Rn , $Q(G)$ и $Q(F)$ для классов устойчивости G и F, соответственно.

Для каждого эпизода i определяем поток ^{222}Rn , Q , и ошибку оценки, $\sigma_{Q,i}$, как

$$\bar{Q}_i = (Q_G + Q_F) / 2, \quad \sigma_{Q,i} = |Q_G - Q_F| / 2 \quad (18)$$

Относительная ошибка оценки составляет 20-30% и в некоторых случаях достигает 50%. Для представления полученных оценок в региональном масштабе, рассчитаны средние взвешенные значения \bar{Q} и $\sigma_{Q,i}$ для отдельных регионов России (табл. 8) по следующим формулам:

$$\bar{Q}_{reg} = \sum_i g_i \cdot \bar{Q}_i / \sum_i g_i, \quad (19)$$

и

$$\sigma_{Q,reg} = \left(\sum_i g_i \right)^{-2}, \quad (20)$$

соответственно, где $g_i = \sigma_{Q,i}^{-1}$, а суммирование по i проводилось для каждого эпизода, наблюдавшегося в экспедиции TROICA в пределах отдельного региона, определённого в соответствии с рис.2.

3.2. Анализ пространственной и временной изменчивости потоков ^{222}Rn

Региональные значения потока ^{222}Rn , полученные по данным TROICA приведены в табл.8 и на рис.10. Следует отметить значительные вариации полученных потоков над территорией России, от 29 ± 8 мБк м⁻² с⁻¹ до 95 ± 51 мБк м⁻² с⁻¹, в зависимости от геологических особенностей исследуемых регионов, а также времени года. Наиболее высокие потоки ^{222}Rn получены для горных регионов Центральной и Восточной Сибири и Дальнего Востока. В этих регионах почвенные эмиссии ^{222}Rn в 1,5 – 3 раза выше, чем на равнине (табл. 8). Весной средневзвешенное

региональное значение потока ^{222}Rn выше и его вариации больше, чем летом на Урале, в Центральной Сибири и на Дальнем Востоке.

Из-за широкого диапазона коэффициента турбулентной диффузии, выбранного для расчётов, получены широкие вариации потока ^{222}Rn над территорией России (рис.6). Поэтому пространственные вариации потока ^{222}Rn лучше характеризуются его средневзвешенными значениями, представленными в табл.8.

Для оценки влияния сезонного протаивания почвы на поток ^{222}Rn из почвы (см. 2.3.2), мы рассчитали средневзвешенные значения потока ^{222}Rn отдельно для летних и осенних эпизодов. При этом выбранные летние и осенние эпизоды были сравнимы между собой по геологическим, географическим и климатическим характеристикам. Полученное по осенним эпизодам средневзвешенное значение потока ^{222}Rn составило 55.7 ± 2.1 мБк $\text{м}^{-2} \text{с}^{-1}$, а по летним - 50.1 ± 2.8 мБк $\text{м}^{-2} \text{с}^{-1}$, что сопоставимо с сезонной изменчивостью средних концентраций ^{222}Rn и глубины сезонного протаивания почвы, представленной на рис.4 и описанной в 2.3.2, и может указывать на увеличение потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу на фоне активизации процессов сезонного протаивания почвы в регионах России, где распространена зона вечной мерзлоты.

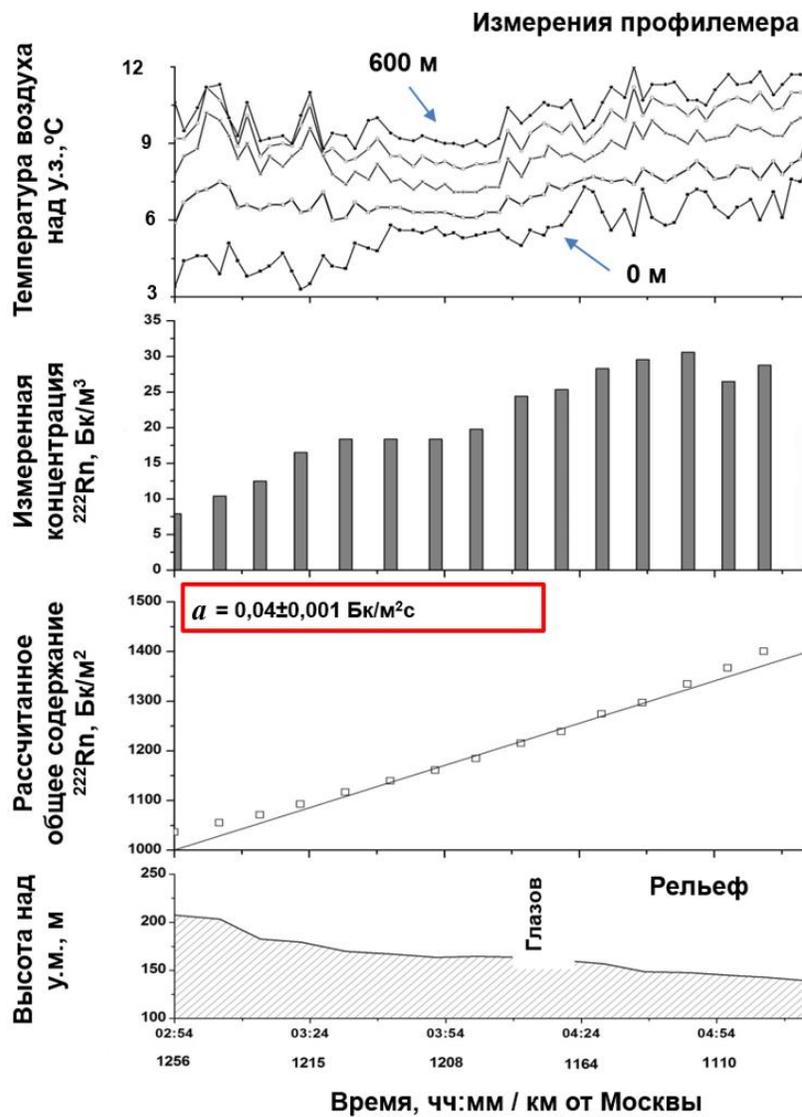


Рис.5. Пример расчёта потока ^{222}Rn из почвы в условиях устойчивой атмосферной стратификации на участке пути 1256 - 1076 км от Владивостока до Москвы 10 июля 2001, 02:54 – 06:10 LT (TROICA-7), a – коэффициент линейной регрессии ($= Q$, потоку ^{222}Rn на данном участке пути), Глазов – наиболее крупный населённый пункт на данном участке пути.

Таблица 8. Средневзвешенные значения потока ^{222}Rn (рассчитанные методом максимального правдоподобия) для регионов России в различные сезоны.

№*	Регион	Поток ^{222}Rn	
		(средневзвешенная погрешность), мБк/м ² с	N (число 10-минутных значений)
Весна			
I	ЕТР	-	-
II	Урал	52 (39)	26
III	Западная Сибирь	35 (28)	17
IV	Центральная	71 (50)	26
V	Восточная Сибирь	59 (30)	28
VI	Дальний Восток	62 (43)	26
Лето			
I	ЕТР	29 (8)	101
II	Урал	50 (19)	19
III	Западная Сибирь	38 (12)	154
IV	Центральная	54 (13)	87
V	Восточная Сибирь	63 (10)	193
VI	Дальний Восток	61 (15)	58
Осень			
I	ЕТР	62 (31)	27
II	Урал	95 (51)	52
III	Западная Сибирь	95 (51)	22
IV	Центральная	39 (26)	80
V	Восточная Сибирь	-	-
VI	Дальний Восток	65 (34)	85

*Номер региона (расстояние в км от Москвы): I - Москва-Пермь (0-1380 км); II - Пермь-Екатеринбург (1380-1904 км); III – Екатеринбург-Новосибирск (1904-3283 км); IV - Новосибирск-Иркутск (3283-5136 км); V - Иркутск-Белогорск (5136-7818 км); VI - Белогорск-Владивосток (7818-9242 км), ЕТР – Европейская территория России.

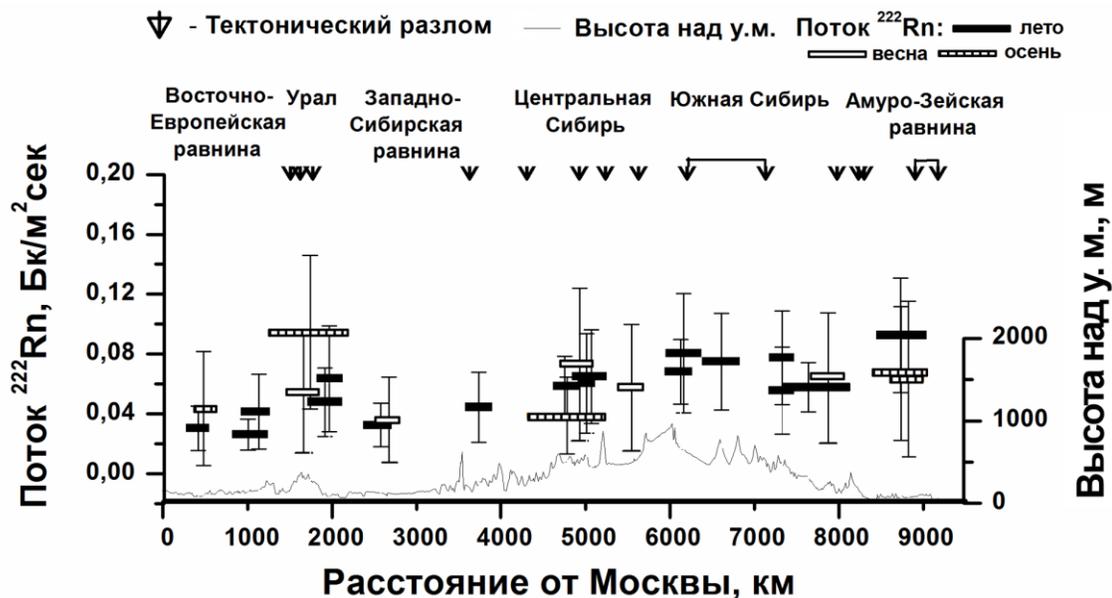


Рис.6. Значения потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу над территорией России, рассчитанные для различных сезонов экспедиций. Длина каждого прямоугольника соответствует участку пути (в км), для которого рассчитывался поток ^{222}Rn . Объединённые стрелки – мощные разломы, вдоль маршрута экспедиций.

Полученные в данной диссертационной работе количественные региональные оценки потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу сопоставлялись как с известными модельными данными, так и с прямыми измерениями потока ^{222}Rn над территорией России. *Schery and Wasiolek [1998]* и *Hirao et al. [2010]* предложили глобальную карту потоков ^{222}Rn , основанную на теории переноса вещества в пористой среде и калибровали их по измерениям потока ^{222}Rn , проводившимся в Австралии и на Гавайских островах. По полученным *Schery and Wasiolek [1998]* и *Hirao et al. [2010]* модельным оценкам поток ^{222}Rn для территории России составляет до $30 \text{ мБк м}^{-2} \text{ с}^{-1}$ и во многих случаях в 4-5 раз ниже значений, полученных по

данном TROICA. Карта потоков ^{222}Rn над территорией России (<http://radon.unibas.ch>), составленная научной группой из Университета Базеля в Швейцарии [Szegvary *et al.*, 2007] на основе карты радиационных доз естественного гамма-излучения территории России, составленной по данным аэрометрических измерений [Vysokoostrovskaya *et al.*, 1995], указывает на самые высокие значения потока ^{222}Rn в Центральной и Восточной Сибири, на Дальнем Востоке, что соответствует оценкам, представленным в данной диссертационной работе. Однако, величины этих оценок в 3-7 раз ниже (от 0.2 до 1.2 атом $\text{см}^2 \text{с}^{-1}$ (от 4 до 24 мБк $\text{м}^{-2} \text{с}^{-1}$) для территории России) представленных в данной диссертационной работе. Возможно, выбранный для расчётов диапазон $K(z)$ мог привести к переоценке полученных по данным TROICA оценок потока ^{222}Rn . Тем не менее, полученные по измерениям TROICA оценки согласуются с данными прямых измерений потоков ^{222}Rn в различных регионах России, представленными в литературе (табл. 9).

Таблица 9. Сравнение полученных оценок потока ^{222}Rn с прямыми измерениями, представленными в литературе.

Регион России	Поток ^{222}Rn , мБк м ⁻² с ⁻¹ , данная публикация	Поток ^{222}Rn , мБк м ⁻² с ⁻¹ , литература	Источник литературы
г. Красноярск	40±20 ¹	33±20 ²	Воеводин и Кургуз, 2012
г. Киров	20±10 ³	20 ⁴	Milin et al., 1967
г. Москва - песчаные почвы - глинистые почвы	13±12 ⁵ 27±20 ⁶	21±12 39±34	Miklyaev and Petrova, 2006
г. Пермь	32±2 ⁷	41±12 ⁸	ГУ "Пермь ЦГМС", 2006

¹09.2005 (TROICA-9); ²09.2002; ³06-08.2001, 2007 гг.; ⁴06-08.1950 г., среднее значение потока ^{222}Rn , 7 км. к северу от г. Киров; ⁵экспедиция вокруг г. Москва (TROICA-10, 4-7 октября 2006) на участке маршрута Зотино-Воскресенск (преобладание песчаных почв); ⁶экспедиция вокруг г. Москва (TROICA-10, 4-7 октября 2006) на участке Яганово – Орехово-Зуево – Дмитров (песчаные и глинистые почвы); ⁷Среднее взвешенное значение потока ^{222}Rn по данным летних и осенней экспедиций; ⁸По данным радиационно-гигиенического мониторинга ГУ "Пермь ЦГМС" в 2006 г. (<http://wp.permecology.ru/report/report2006/17.html>, табл. 17.8).

3.3. Выводы к главе 3

Поток ^{222}Rn из почвы в атмосферу, полученный на основе данных измерений его приземной концентрации в условиях устойчивой атмосферной стратификации в экспедициях TROICA, изменяется над континентальной территорией России в широких пределах, от 29 ± 8 до

95 ± 51 мБк $\text{м}^{-2} \text{с}^{-1}$ в зависимости от геологических особенностей исследуемого региона и от сезона наблюдений. Наибольший поток ^{222}Rn из почвы получен для горных регионов Центральной и Восточной Сибири, а также Дальнего Востока. В целом, наибольший поток ^{222}Rn получен летом (июнь-август), а наименьший – весной (март). Полученные высокие значения потока ^{222}Rn весной в некоторых регионах России (Урал, Центральная Сибирь, Дальний Восток) предположительно связаны с ранним протаиванием снежного покрова в этих регионах во время весенней экспедиции TROICA или/и с локальным или удалённым переносом воздуха, обогащенного радоном. Отмечено, что сезонное протаивание почвы может приводить к росту потока ^{222}Rn в атмосферу в регионах с распространением зоны вечной мерзлоты.

Возможно, широкий диапазон коэффициента турбулентной диффузии, выбранный для расчётов, привёл к переоценке среднего значения потока ^{222}Rn , полученного для каждого ночного эпизода. Известные в литературе модельные оценки потока ^{222}Rn над территорией России в 3-7 раз ниже представленных в диссертации. Тем не менее, приведённые в диссертации оценки сравнимы с данными прямых измерений потока ^{222}Rn , представленными в литературе.

Глава 4. Использование ^{222}Rn для оценки биогенных эмиссий CO_2 , CH_4 и сухого осаждения O_3 над территорией России

4.1. Метод оценки потоков CO_2 , CH_4 и O_3

4.1.1. Отбор данных для расчётов CH_4 , CO_2 , O_3

Большая часть данных, которые используются в данной диссертационной работе, получены в экспедициях TROICA, проводившихся в теплое время года (Таблица 3). Характерной особенностью измеренных концентраций является отчетливо выраженный суточный ход, обусловленный суточной изменчивостью условий перемешивания приземного воздуха с вышележащими слоями, и приземных метеопараметров. На рис.7 приведены средние 10-минутные значения концентраций CH_4 , CO_2 , O_3 , ^{222}Rn и верхней границы инверсии температуры по маршруту от Москвы до Владивостока, полученные в разные сезоны экспедиций. Максимум CH_4 , CO_2 , ^{222}Rn и минимум O_3 на протяжении всего маршрута наблюдались во время ночных приземных инверсий температуры, при которых происходит особенно быстрое накопление CH_4 , CO_2 , ^{222}Rn в приземном слое за счет локальных эмиссий, и, наоборот, уменьшение концентрации O_3 за счет его сухого осаждения на подстилающую поверхность при отсутствии основных источников (фотохимической генерации и притока из верхних слоев атмосферы). Данную особенность иллюстрирует рис.8а, на котором представлены средние суточные вариации CH_4 , CO_2 , ^{222}Rn и O_3 в экспедициях TROICA-11 летом 2007 г. на фоне ярко выраженных температурных инверсий и биогенных эмиссий. Весной, несмотря на продолжительные приземные инверсии температуры (с 16 до 10 ч.), концентрации ^{222}Rn и CO_2 и

амплитуды их суточных вариаций заметно ниже летних (рис.8б, TROICA-8, апрель 2004 г.) из-за наличия снежного покрова, препятствующего эмиссиям газов с подстилающей поверхности, и снижения дыхательной активности растений. Как видно из рис.8а, максимум суточного хода CH_4 и CO_2 (минимум O_3) наблюдается ранним утром непосредственно перед началом разрушения приземной инверсии. В целом, изменение приземной концентрации ^{222}Rn в условиях ночных инверсий температуры пропорционально соответствующим изменениям концентраций CH_4 , CO_2 и O_3 .

Данные измерений скорости приземного ветра показывают, что во всех рассматриваемых нами эпизодах ролью адвекции воздуха в подынверсионном слое можно пренебречь, при этом основную роль в накоплении CH_4 , CO_2 и стоке O_3 играют продолжительность инверсии и характер подстилающей поверхности (тип и состояние почвы, тип растительности). Для исключения влияния местных и региональных антропогенных источников, нами дополнительно использовались данные измерений CO и NO , являющихся трассерами регионального переноса загрязнений. Считалось, что антропогенное воздействие имеет место, если зимой концентрация $\text{CO} > 0,3$ ppm, а летом $> 0,2$ ppm, а концентрация NO зимой и летом $> 0,5$ ppb [Беликов и др., 2006]. Из рассматриваемых эпизодов также исключались данные, полученные в местах геологических разломов, во время прохождения встречных поездов, при проезде крупных городов и тоннелей, а также в дни с атмосферными осадками. Эти факторы могли вызывать увеличение или уменьшение концентраций исследуемых газов, не связанное с подстилающей поверхностью.

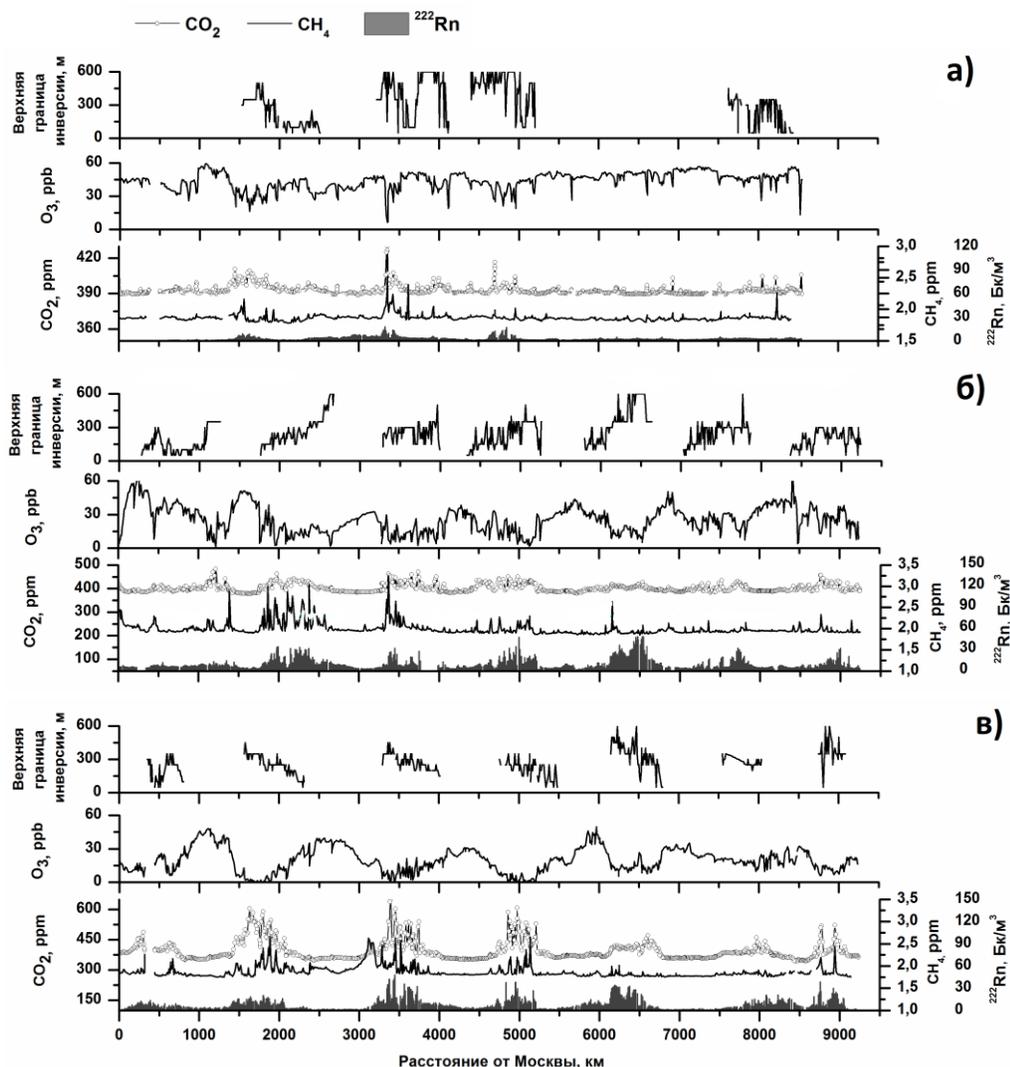


Рис.7. Пространственное распределение концентраций CH_4 , CO_2 , O_3 , ^{222}Rn и верхней границы температурной инверсии от Москвы до Владивостока по данным экспериментов TROICA: а) март 2004 г., TROICA-8 (Москва – Хабаровск); б) октябрь 2009 г., TROICA-9 (Москва – Владивосток); в) июль 2007 г., TROICA-11 (Владивосток – Москва).

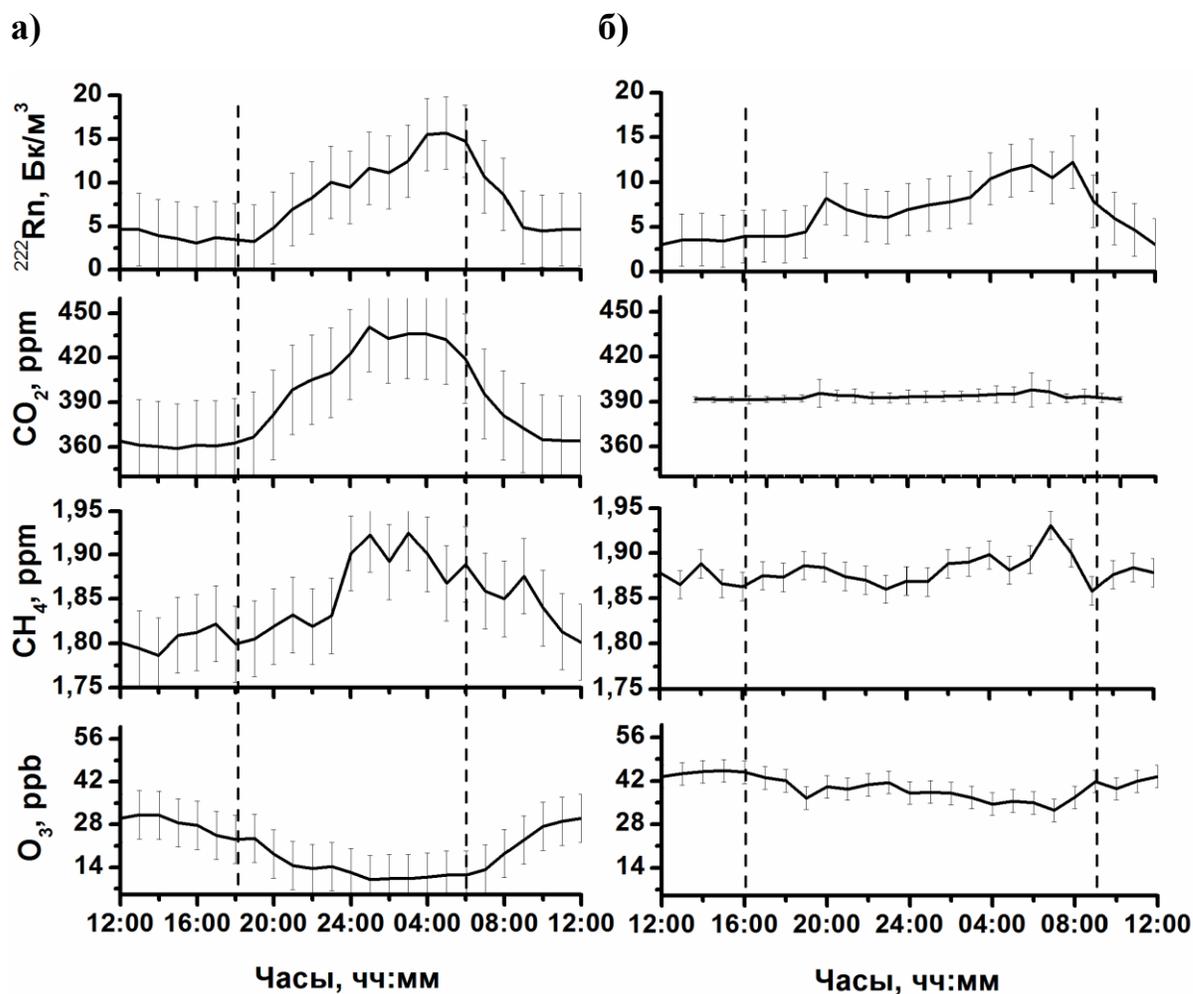


Рис.8. Суточные вариации концентраций CH_4 , CO_2 , O_3 и ^{222}Rn , полученные по данным летних (TROICA-11) – а) и весенних (TROICA-8) – б) наблюдений. Вертикальный пунктир - время установления и разрушения инверсии температуры. Вертикальные линии – стандартные отклонения.

При измерениях на базе подвижного приборного комплекса, дополнительная неопределенность при оценке потоков возникает в связи с пространственной и временной изменчивостью поля концентрации вдоль трассы, обусловленной адвекцией воздуха, в т.ч. от удаленных антропогенных и биогенных источников, идентификация которых в рамках рассмотренного выше алгоритма является проблематичной.

Исследование корреляционной зависимости между концентрацией трассера, ^{222}Rn , и исследуемых парниковых газов во время каждого ночного эпизода позволяет отделить вклад дальнего переноса от основной изменчивости, связанной с локальными потоками CH_4 , CO_2 и O_3 . Эпизоды с высокими коэффициентами корреляции, R , (далее – ‘фоновые эпизоды’, $R \geq 0,7$) свидетельствуют о наличии единого для ^{222}Rn и исследуемых парниковых газов источника (для O_3 стока) - подстилающей поверхности. Примеры таких эпизодов представлены на рис. 9. Коэффициент регрессии, $\beta(\chi, ^{222}\text{Rn})$, показывающий на сколько в среднем изменится концентрация исследуемого газа при изменении концентрации трассера (^{222}Rn) на 1 Бк/м^3 , определяется как тангенс угла наклона линии регрессии, равный $\Delta\text{CO}_2(\text{CH}_4, \text{O}_3)/\Delta^{222}\text{Rn}$. Для рассматриваемых эпизодов коэффициент регрессии для соотношений $\Delta\text{CO}_2/\Delta^{222}\text{Rn}$ изменяется от 3 до $11 \text{ ppm}^3\text{Бк}^{-1}$, а для $\Delta\text{CH}_4/\Delta^{222}\text{Rn}$ – от $0,002$ до $0,1 \text{ ppm}^3\text{Бк}^{-1}$, с наибольшими значениями летом, и $\Delta\text{O}_3/\Delta^{222}\text{Rn}$ – от $0,4$ до $3 \text{ ppb}^3\text{Бк}^{-1}$, с наибольшими значениями в холодное время года. Таким образом, при увеличении приземной концентрации ^{222}Rn во время инверсий температуры на 1 Бк/м^3 , больший рост приземных концентраций CO_2 и CH_4 приходится на лето, а большее снижение приземной концентрации O_3 – на весну и осень. Полученный для каждого фонового эпизода $\beta(\chi, ^{222}\text{Rn})$ далее используется для оценки потоков CH_4 , CO_2 и O_3 .

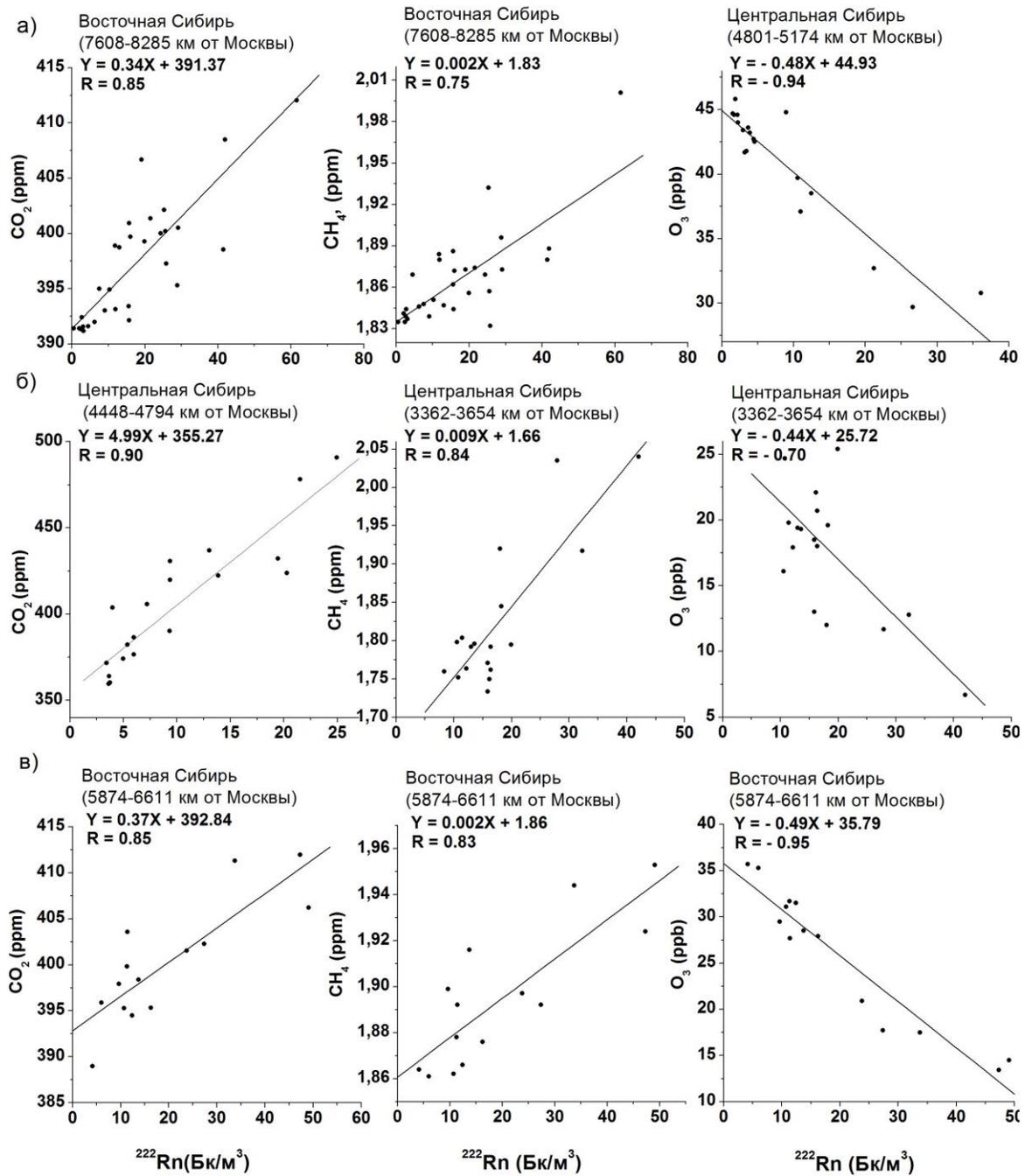


Рис.9. Примеры корреляций 10-ти минутных значений концентраций CH_4 , CO_2 , O_3 и ^{222}Rn во время инверсии температуры в незагрязненных условиях: а) весной, б) летом.

4.1.2. Расчёт потоков CH₄, CO₂ и O₃

Оценка потоков парниковых газов по ²²²Rn проводилась при следующих предположениях: (i) во время каждого фоновых эпизода величины потоков ²²²Rn, CO₂, CH₄ и O₃ вдоль пути следования меняются незначительно; (ii) вкладом адвекции в подынверсионном слое атмосферы и фотохимическими источниками/стоками исследуемых газов в ночное время можно пренебречь; (iii) вертикальное перемешивание исследуемых газов ограничено верхней границей приземной инверсии; (iv) на рассматриваемых временных масштабах стоком CH₄ за счет его окисления радикалами OH[•] можно пренебречь [Schmidt и др., 1996]; (iv) сток O₃ в фоновых ночных эпизодах преимущественно связан с его сухим осаждением на подстилающую поверхность [Rannik et al., 2009].

Биогенные эмиссии CH₄, CO₂ и ночной сток O₃ рассчитывались по следующей формуле [Dörr et al., 1983; Gaudry et al., 1990; Schmidt et al., 1996; Duenas et al., 1999; Biraud et al., 2000; Conen et al., 2002; Martens et al., 2004; Hammer et al., 2008]:

$$J(\chi) = J(^{222}\text{Rn}) \cdot \beta(\chi, ^{222}\text{Rn}), \quad (21)$$

где χ – исследуемый газ (CH₄, CO₂, O₃), $J(\chi)$ [мг м⁻² с⁻¹] – величина биогенной эмиссии (CH₄, CO₂) или стока (O₃); $J(^{222}\text{Rn})$ [Бк см⁻²сек⁻¹] – поток радона из почвы, количественные оценки которого приведены в главе 3, $\beta(\chi, ^{222}\text{Rn})$ – коэффициент линейной регрессии χ по ²²²Rn, полученный из уравнения регрессии: $\hat{y}_i = \alpha + \beta x$, где x – измеренная концентрация ²²²Rn.

В соответствии с правилом распространения ошибок, итоговая погрешность при расчёте потока, $\delta J(\chi)$, связана с погрешностями определения $J(^{222}\text{Rn})$ и β соотношениями

$$\frac{\delta J(\chi)}{J(\chi)} = \frac{\delta J(^{222}\text{Rn})}{J(^{222}\text{Rn})} + \frac{\delta \beta(\chi, ^{222}\text{Rn})}{\beta(\chi, ^{222}\text{Rn})}. \quad (22)$$

Скорость сухого осаждения O_3 , V_d [см сек⁻¹], и соответствующая погрешность оценки рассчитывалась следующим образом [Sehmel, 1980; Pio et al., 2000; Wu et al., 2011]:

$$V_d = -\frac{J(\text{O}_3)}{\chi(\text{O}_3)}, \quad \frac{\delta V_d}{V_d} = \frac{\delta J(\text{O}_3)}{J(\text{O}_3)} + \frac{\delta \chi(\text{O}_3)}{\langle \chi(\text{O}_3) \rangle}, \quad (23)$$

где $J(\text{O}_3)$ [мкг м⁻² с⁻¹] – рассчитанная по (11) величина стока озона на подстилающую поверхность; $\delta \chi$ и $\langle \chi(\text{O}_3) \rangle$ – уменьшение озона в рассматриваемом эпизоде и его средняя измеренная концентрация, соответственно.

4.2 Региональные особенности потоков CH_4 , CO_2 и O_3 над территорией России

4.2.1. Биогенные эмиссии CH_4 и CO_2

Согласно оценкам, полученным радоновым методом, биогенные эмиссии CH_4 и CO_2 на фоне общего сезонного хода сильно отличаются для отдельных регионов в связи с конкретными особенностями природно-климатических условий и преобладающими типами экосистем (см. рис.10 и табл.10). Весной и осенью биогенные эмиссии в среднем в 4–8 раз меньше, чем летом. Наименьшие межрегиональные отличия наблюдались в октябре 2005 г. (TROICA-9) что, вероятно, связано с низкой температурой почвы, замедляющей процесс разложения

органического вещества бактериями, и общим снижением биологической активности растений.

Наиболее высокие эмиссии CH_4 установлены летом в Западной Сибири от Тюмени до Барабинска ($0,77 \pm 0,41$ $\text{мкг м}^{-2} \text{с}^{-1}$) и на Дальнем Востоке от Хабаровска до Дальнереченска ($0,87 \pm 0,52$ $\text{мкг м}^{-2} \text{с}^{-1}$), что связано с широким распространением болот и увлажнённых почв в данных регионах (рис. 10а). Биогенные эмиссии CO_2 в среднем варьируют от $0,18 \pm 0,04$ $\text{мг м}^{-2} \text{с}^{-1}$ в Западной Сибири до $0,89 \pm 0,07$ $\text{мг м}^{-2} \text{с}^{-1}$ в Восточной Сибири. Высокие эмиссии CO_2 получены летом (июль 2007 г., TROICA-11, прямой и обратный проезды) на участке пути от Читы до Магдагачи (рис. 10б) в зоне горных лиственничных лесов с доминированием даурской лиственницы (среднее взвешенное значение для данного участка пути по нескольким летним эпизодам – $1,22 \pm 0,09$ $\text{мг м}^{-2} \text{с}^{-1}$), что может быть связано с несколькими факторами: значительными ($>2^\circ\text{C}$) аномалиями температуры воздуха в период наблюдений [<http://www.meteoinfo.ru/climate/climat-tabl3/climate-analysis-2007-all/2326-climate-2007-july>], а также активной вырубкой лесов в данном регионе, что приводит к сокращению депонирования CO_2 лиственничным лесом и дополнительному поступлению в атмосферу диоксида углерода при разложении оставшейся после заготовки древесины. Преобладание в возрастной структуре лиственничного леса Восточного Забайкалья спелых и перестойных насаждений также приводит к уменьшению депонирования лесом CO_2 [Касимов, 2008].

Оценки эмиссий CO_2 и CH_4 вдоль Транссибирской железнодорожной магистрали радоновым методом были представлены ранее в работе *Oberlander et al.*, [2002] по измерениям в экспедиции TROICA-5 летом 1999 г. Авторы [*Oberlander et al.*, 2002] отмечают, что полученные оценки являются скорее качественными, чем

количественными, вследствие использования для расчетов среднего континентального значения потока $^{222}\text{Rn} \approx 0,02 \text{ Бк м}^{-2}\text{сек}^{-1}$, и могут быть уточнены при учёте пространственной изменчивости потока радона с учётом региональных геологических особенностей. Представленные в *Oberlander et al.* [2002] оценки потоков CO_2 и CH_4 в целом обнаруживают высокую корреляцию с приземным содержанием этих газов вдоль Транссибирской магистрали и качественно согласуются с нашими выводами о значительных пространственных вариациях потоков для разных регионов. Сравнение полученных нами оценок с результатами, представленными в *Oberlander et al.* [2002], показывает, что неучёт региональных вариаций потоков ^{222}Rn приводит к значительной (в 2–10 раз) недооценке возможных фактических эмиссий. Другим возможным объяснением столь значительных расхождений в величинах эмиссий может быть естественная межгодовая изменчивость, обусловленная сезонными климатическими особенностями (для более поздних экспедиций TROICA, летом 2007 и 2008 гг., среднесезонные температуры воздуха были выше, чем летом 1999 г. в период экспедиции TROICA-5).

4.2.2. Сухое осаждение O_3

Согласно полученным в данной работе оценкам (см. табл.10), летом ночной сток O_3 изменяется в среднем от $0,05 \pm 0,01 \text{ мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ в Западной Сибири до $0,07 \pm 0,01 \text{ мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ в Центральной Сибири (участок Тайшет – Иркутск), при этом скорость сухого осаждения O_3 варьирует от $0,10 \pm 0,08 \text{ смс}^{-1}$ в Западной Сибири до $0,33 \pm 0,21 \text{ смс}^{-1}$ в Восточной Сибири и на Дальнем Востоке (осреднение по нескольким эпизодам) (рис.10в). Весной и осенью ночное сухое осаждение O_3 в целом ниже, чем летом (рис.10в, г). Весной над поверхностью, покрытой снегом или льдом,

ночной сток O_3 максимален на Урале: $0,19 \pm 0,17$ мкг $m^{-2}c^{-1}$ (см.рис.10г) и минимален в районе Красноярска: $0,08 \pm 0,05$ мкг $m^{-2}c^{-1}$ (со скоростью сухого осаждения $0,12 \pm 0,10$ и $0,06 \pm 0,03$ см c^{-1} , соответственно).

Полученные в данной диссертационной работе количественные оценки потоков CH_4 , CO_2 и O_3 были сопоставлены с опубликованными ранее данными, основанными на прямых измерениях, для сходных климатических и ландшафтных условий (табл.11). Полученные оценки ночного стока и скорости сухого осаждения O_3 хорошо согласуются с опубликованными в литературе данными, а оценки биогенных эмиссий CH_4 и CO_2 оказываются на верхней границе или на 30-40% выше представленных в литературе значений. Полученные эмиссии CO_2 над лиственничными лесами Центральной Сибири в 2-4 раза выше опубликованных в [Sawamoto et al.,2001], что может быть связано со значительными ($>2^{\circ}C$) аномалиями температуры воздуха в данном регионе в период наблюдений, которые могли привести к повышению температуры почвы, активной вырубкой леса в Восточном Забайкалье и возможным преобладанием в возрастной структуре леса спелых и перестойных насаждений, что приводит к уменьшению депонирования CO_2 лесом и росту его эмиссий в атмосферу.

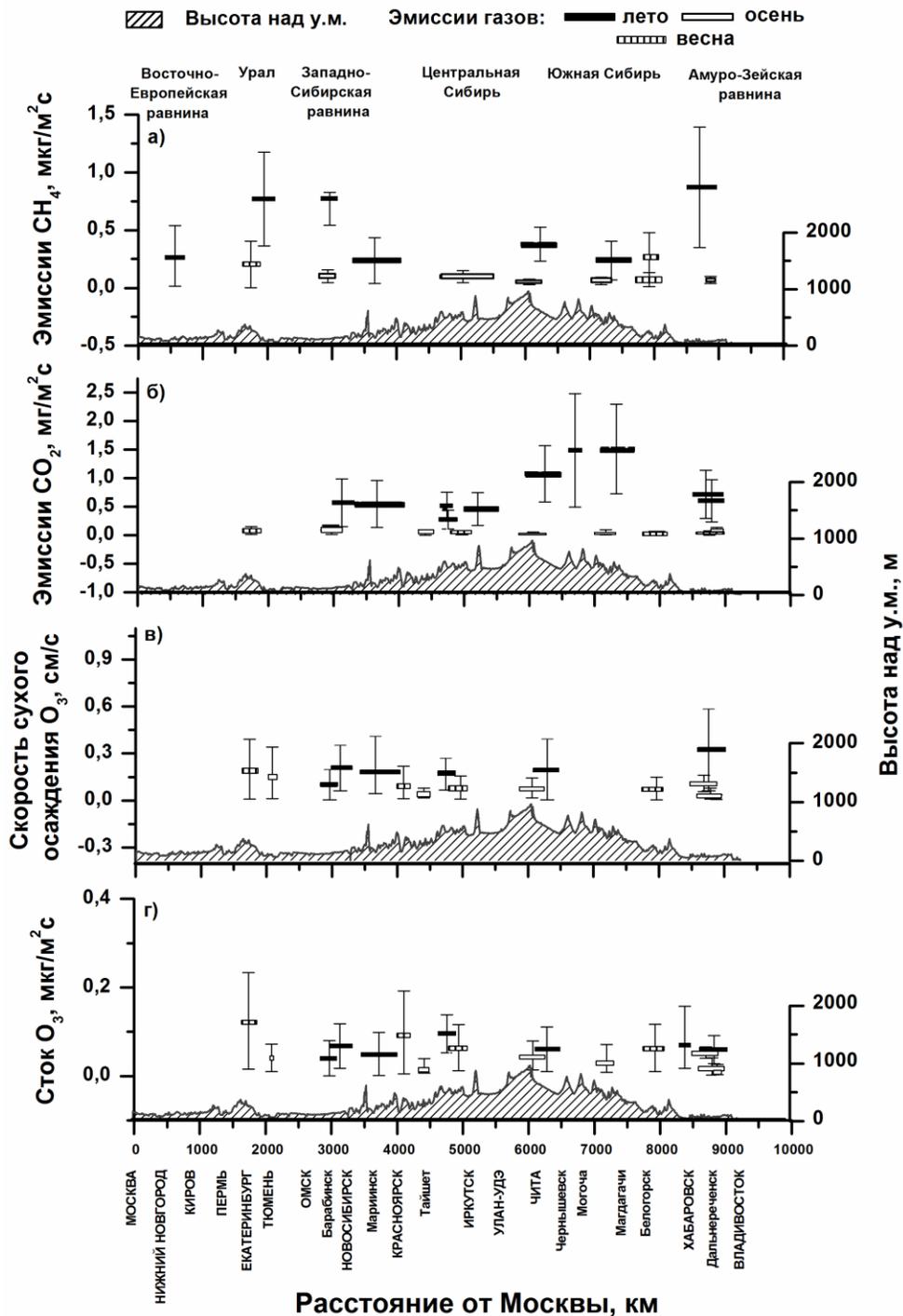


Рис.10. Оценки биогенных эмиссий CH_4 (а), CO_2 (б), скорости сухого осаждения (в) и ночного стока O_3 (г) на подстилающую поверхность над территорией России в различные сезоны измерений.

Таблица 10. Поток CH_4 , CO_2 , O_3 для различных регионов России

№ ^{**}	Регион	Эмиссия CH_4 , мкг м ⁻² с ⁻¹	Эмиссия CO_2 , мг м ⁻² с ⁻¹	Сток O_3 , мкг м ⁻² с ⁻¹
Весна				
I	ЕТР	-	-	-
II	Урал	0.2 (0.1)	-	0.12 (0.11)
III	Западная Сибирь	-	0.10 (0.05)	-
IV	Центральная Сибирь	-	-	0.07 (0.01)
V	Восточная Сибирь	-	0.06 (0.01)*	-
VI	Дальний Восток	0.08 (0.02)*	0.07 (0.03)	0.06 (0.05)*
Лето				
I	ЕТР	0.43 (0.06)*	-	-
II	Урал	0.77 (0.41)	-	-
III	Западная Сибирь	0.77 (0.08)*	0.18 (0.04)*	0.05 (0.01)*
IV	Центральная Сибирь	0.17 (0.03)*	0.39 (0.04)*	0.07 (0.01)*
V	Восточная Сибирь	0.18 (0.02)*	0.89 (0.07)*	0.06 (0.05)
VI	Дальний Восток	0.87 (0.52)	0.66 (0.06)*	0.06 (0.01)*
Осень				
I	ЕТР	-	-	-
II	Урал	0.10 (0.06)	-	-
III	Западная Сибирь	-	0.09 (0.07)	0.04 (0.03)
IV	Центральная Сибирь	-	0.04 (0.03)	0.02 (0.01)
V	Восточная Сибирь	0.06 (0.01)*	0.03 (0.01)*	0.04 (0.01)*
VI	Дальний Восток	0.07 (0.03)	0.05 (0.01)*	0.05 (0.01)*

ЕТР – Европейская территория России. *Среднее взвешенное значение. **Номер региона (расстояние в км от Москвы): I - Москва-Пермь (0-1380 км); II - Пермь-Екатеринбург (1380-1904 км); III – Екатеринбург-Новосибирск (1904-3283 км); IV - Новосибирск-Иркутск (3283-5136 км); V - Иркутск-Белогорск (5136-7818 км); VI - Белогорск-Владивосток (7818-9242 км).

Таблица 11. Сравнение полученных оценок с литературными данными.

Регион	Ландшафт	Поток	Источник
Эмиссия CH₄, мкг м⁻²сек⁻¹			
Западная Сибирь	субтайга	0.76±0.40	данная работа ¹ [Panikov and Dedysh, 2000] ²
		1.40±1.10	
Западная Сибирь	лесостепь	0.77±0.10	данная работа ³ [Глаголев и др, 2009] ⁴
		от -0.15±0.01 до 3.70±0.24	
Эмиссия CO₂, мг м⁻²сек⁻¹			
Восточная Сибирь (Забайкалье)	лесостепь	0.46±0.28	данная работа ⁵ [Shibistova et al., 2002] ⁶
		0.19 – 0.46	
Центральная Сибирь	лиственничный лес (даурская лиственница)	0.40±0.3	данная работа ⁷ [Masyagina et al., 2006] ⁸
		0.06 – 0.16	
Центральная Сибирь	тёмнохвойные леса	0.39±0.04	данная работа ⁹ [Ullah and Moore, 2009] ¹⁰
		0.002 – 0.3	
Сток O₃, мкг м⁻²сек⁻¹			
Западная Сибирь	мелколиственные и смешанные леса	0.13±0.10	данная работа ¹¹ [Neiryneck et al., 2012] ¹²
		0.08 – 0.27	
Скорость сухого осаждения O₃, см сек⁻¹			
Западная Сибирь	лугопастбищные угодья	0.14±0.02	данная работа ¹³ [Wu et al., 2011] ¹⁴
		0.11 – 0.13	
Дальний Восток (Хабаровск – Владивосток)	широколиственные и смешанные леса (преобладание дуба)	0.33±0.05	данная работа ¹⁵ [Pio et al., 2000] ¹⁶ [Tang et al., 2009] ¹⁷
		0.10 – 0.90 0.25 – 0.82	
Центральная Сибирь	темнохвойные леса (преобладание ели)	0.17±0.10	данная работа ¹⁸ [Droppo, 1985] ¹⁹
		0.2 – 1.0	

¹Екатеринбург – Тюмень, 07–08.2007; ²Плоские мезотрофные болота, в основном травяные и травяно-осоковые, вблизи Тюмени и лесные болота ближе к Екатеринбургу (регион от Екатеринбурга до Тюмени), 07.2009; ³Омск – Барабинск, 06–07.1999; ⁴ измерения на эвтрофных болотах и рямах Западной Сибири: в 100 км к Западу от г. Новосибирск (“Кузнецкий рям”) и в пос. Николаевка, 50 км к юго-востоку от г. Барабинск (“Николаевка”), 08.2007 и 07.2009; ⁵Иркутск – Улан Удэ, 07–08.2007; ⁶дельта р. Селенги в Прибайкалье (с. Кабанск, умеренно-засушливая лесостепь) с разнотравно-злаковым сообществом на луговых солончаковых почвах, 07–08.2007; ⁷Улан Удэ – Магдагачи, 07–08.2007; ⁸40 км. к северо-западу от г. Якутск, 08.1997, 1998; ⁹Красноярск – Иркутск,

06-08.2001, средневзвешенное по нескольким эпизодам значение; ¹⁰восточная Канада, май-сентябрь 1994; ¹¹Новосибирск–Красноярск, 10.2005; ¹²Фландрия, Бельгия, осень 1996–2010, средние ночные значения; ¹³Омск – Красноярск, 06–07.1999, 06–07.2007); ¹⁴Португалия, 06–08.2004, средние ночные значения; ¹⁵Хабаровск – Владивосток, 06 – 10 (1999, 2005, 2007 гг.); ¹⁶Кане, Пенсильвания, США, 04 – 10.1997, средние ночные значения; ¹⁷Массачусетс, США, 06–11.2000 г, средние ночные значения; ¹⁸Красноярск–Иркутск, 06–07.1999; ¹⁹Онтарио, Канада, 06–08.1988, ночные и утренние значения.

4.3 Выводы к главе 4

По данным одновременных измерений концентраций CH_4 , CO_2 , O_3 и ^{222}Rn на передвижной лаборатории вдоль Транссибирской магистрали от Москвы до Владивостока проведены оценки биогенных эмиссий CH_4 , CO_2 и ночного сухого осаждения O_3 над территорией России. Радоновый метод позволил получить количественные региональные оценки потоков CH_4 , CO_2 и O_3 над обширной территорией России, с различными геологическими, географическими и климатическими условиями.

Полученные биогенные эмиссии CH_4 летом над территорией России в среднем изменяются от $0,17 \pm 0,03$ $\text{мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ в Центральной Сибири до $0,87 \pm 0,52$ $\text{мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ на Дальнем Востоке, а CO_2 – от $0,18 \pm 0,04$ $\text{мг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ в Западной Сибири до $0,89 \pm 0,07$ $\text{мг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ в Восточной Сибири. Вариации эмиссий CH_4 и CO_2 весной и осенью в среднем в 4-8 раз меньше, чем летом, что, вероятно, связано с низкой температурой почвы, наличием снежного покрова и замедлением процессов дыхания растений весной и осенью. Наиболее высокие эмиссии CH_4 получены летом в Западной Сибири ($0,77 \pm 0,60$ $\text{мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$) и на Дальнем Востоке ($0,87 \pm 0,52$ $\text{мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$), где расположены источники CH_4 : болота и увлажненные почвы, а CO_2 – в Восточной Сибири ($1,20 \pm 0,41$ $\text{мг м}^{-2}\text{с}^{-1}$), где расположены горные лиственничные леса (даурская лиственница). Пожары, вырубка леса в Восточном Забайкалье, а также рост температуры почвы и её протаивание в зоне вечной мерзлоты, обусловленное потеплением климата в 2007 году, могли привести к росту биогенных эмиссий CO_2 в

данном регионе. Таким образом, полученные биогенные эмиссии CO_2 от лиственных лесов Восточного Забайкалья в 2-4 раза превышают представленные в литературе данные об эмиссиях CO_2 над лиственными лесами.

Ночной сток O_3 летом над территорией России в среднем варьирует от $0,05 \pm 0,01 \text{ мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ в Западной Сибири до $0,07 \pm 0,01 \text{ мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ в Центральной Сибири (Тайшет – Иркутск), а скорость его сухого осаждения – от $0,10 \pm 0,08 \text{ см с}^{-1}$ в Западной Сибири до $0,33 \pm 0,21 \text{ см с}^{-1}$ в Восточной Сибири и на Дальнем Востоке. Весной и осенью сухое осаждение O_3 , как правило ниже, чем летом. Весной над поверхностью, покрытой снегом или льдом, сток O_3 максимален на Урале: $0,19 \pm 0,17 \text{ мг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ и минимален в районе Белогорска: $0,08 \pm 0,05 \text{ мг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ (скорость сухого осаждения – $0,12 \pm 0,10$ и $0,06 \pm 0,03 \text{ см/с}$, соответственно).

Полученные оценки биогенных эмиссий CH_4 и сухого осаждения O_3 согласуются с опубликованными в литературе данными для ландшафтных и сезонных условий, подобных тем, что наблюдались в экспедициях TROICA. Полученные оценки биогенных эмиссий CO_2 , как правило, находятся на верхней границе или на 30-40% выше значений, представленных в литературе.

Заключение

1. Существенные вариации приземной концентрации ^{222}Rn вдоль Транссибирской железнодорожной магистрали от Москвы до Владивостока обусловлены суточной изменчивостью устойчивости пограничного слоя атмосферы. Наиболее высокие приземные концентрации ^{222}Rn (до 75 Бк/м³) в экспедициях TROICA обычно наблюдались ночью во время мощных и продолжительных инверсий температуры. Вследствие слабого турбулентного перемешивания (при устойчивой температурной стратификации), ^{222}Rn накапливается в приземном слое атмосферы, и его концентрация увеличивается в 3-5 раз по сравнению с его приземной концентрацией при неустойчивой температурной стратификации. Высокие концентрации ^{222}Rn (45-75 Бк/м³) характерны для горных регионов России (Центральная и Восточная Сибирь, Дальний Восток). Наибольшие средние суточные концентрации ^{222}Rn наблюдались осенью ($12,6 \pm 10,9$ Бк/м³) в следствие наиболее устойчивых (градиент температуры – $2,5 \pm 1,3$ °С) и продолжительных (6 ± 5 ч) инверсий температуры в этот период наблюдений, а наименьшие ($6,7 \pm 6,7$ Бк/м³) в весенний период наблюдений, когда наличие на поверхности снежного и ледяного покрова препятствует потоку ^{222}Rn из почвы. Полученные в экспедициях TROICA данные о пространственных и временных вариациях приземной концентрации ^{222}Rn согласуются с данными карты радоноопасности России [Maximovsky et. al., 1996], что позволяет использовать данные TROICA для региональных оценок потока ^{222}Rn из почвы в атмосферу над территорией России.

2. Отмечено, что рост глубины сезонного протаивания почвы в регионах России, где распространена вечная мерзлота, может приводить к увеличению потока ^{222}Rn из почвы за счёт интенсивной миграции накопившегося в замёрзших грунтах ^{222}Rn в приповерхностный слой почвы и его эксхалации в атмосферу, а, следовательно, к росту приземной концентрации ^{222}Rn .

3. Поток ^{222}Rn из почвы в атмосферу, полученный по измерениям его приземной концентрации в условиях устойчивой атмосферной стратификации в экспедициях TROICA и рассчитанный с помощью модели, основанной на нестационарном уравнении турбулентной диффузии, изменяется над континентальной территорией России в широких пределах, от 29 ± 8 до 95 ± 51 мБк $\text{м}^{-2} \text{с}^{-1}$, в зависимости от геологических особенностей исследуемого региона и от сезона наблюдений. Наибольший поток ^{222}Rn из почвы получен для горных регионов Центральной и Восточной Сибири, а также Дальнего Востока. В целом, летом (июнь-август) поток ^{222}Rn из почвы выше, чем весной (март). Высокие значения потока ^{222}Rn весной в некоторых регионах России (Урал, Центральная Сибирь, Дальний Восток) предположительно связаны с ранним протаиванием снежного покрова в этих регионах во время весенней экспедиции TROICA или/и с локальным или удалённым переносом воздуха, обогащенного радоном. Модельные данные о потоке ^{222}Rn над территорией России, представленные в литературе, в 3-7 раз ниже оценок, приведённых в данной работе. Предполагается, что широкий диапазон коэффициента турбулентной диффузии, выбранный для расчётов, мог привести к переоценке среднего значения потока ^{222}Rn , полученного для каждого ночного эпизода. Тем не менее, приведённые в

диссертации оценки сравнимы с данными прямых измерений потока ^{222}Rn , представленными в литературе.

4. Полученные биогенные эмиссии CH_4 летом над территорией России в среднем изменяются от $0,17 \pm 0,03$ $\text{мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ в Центральной Сибири до $0,87 \pm 0,52$ $\text{мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ на Дальнем Востоке, а CO_2 – от $0,18 \pm 0,04$ $\text{мг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ в Западной Сибири до $0,89 \pm 0,07$ $\text{мг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ в Восточной Сибири. Вариации эмиссий CH_4 и CO_2 весной и осенью в среднем в 4-8 раз меньше, чем летом, что, вероятно, связано с низкой температурой почвы, наличием снежного покрова и замедлением процессов дыхания растений весной и осенью. Наиболее высокие эмиссии CH_4 получены летом в Западной Сибири ($0,77 \pm 0,60$ $\text{мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$) и на Дальнем Востоке ($0,87 \pm 0,52$ $\text{мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$), где расположены источники CH_4 : болота и увлажненные почвы, а CO_2 – в Восточной Сибири ($1,20 \pm 0,41$ $\text{мг м}^{-2}\text{с}^{-1}$), где расположены горные лиственничные леса (даурская лиственница). Активная вырубка леса в Восточном Забайкалье, а также рост температуры почвы и глубины её сезонного протаивания, обусловленное значительными ($>2^\circ\text{C}$) аномалиями температуры воздуха в период наблюдений, могли привести к росту биогенных эмиссий CO_2 в данном регионе.

Ночной сток O_3 летом над территорией России в среднем варьирует от $0,05 \pm 0,01$ $\text{мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ в Западной Сибири до $0,07 \pm 0,01$ $\text{мкг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ в Центральной Сибири (Тайшет – Иркутск), а скорость его сухого осаждения – от $0,10 \pm 0,08$ см с^{-1} в Западной Сибири до $0,33 \pm 0,21$ см с^{-1} в Восточной Сибири и на Дальнем Востоке. Весной и осенью сухое осаждение O_3 , как правило ниже, чем летом. Весной над поверхностью, покрытой снегом или льдом, сток O_3 максимален на Урале: $0,19 \pm 0,17$ $\text{мг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ и минимален в районе Белогорска: $0,08 \pm 0,05$ $\text{мг м}^{-2}\text{с}^{-1}$ (скорость

сухого осаждения – $0,12 \pm 0,10$ и $0,06 \pm 0,03$ см/с, соответственно). Ночной сток O_3 максимален весной на Урале ($0,12 \pm 0,11$ мкг м⁻² с⁻¹) и в регионе Красноярска ($0,08 \pm 0,05$ мкг м⁻² с⁻¹), а летом – в Центральной ($0,07 \pm 0,01$ мкг м⁻² с⁻¹) и Восточной Сибири ($0,06 \pm 0,05$ мкг м⁻² с⁻¹). Скорость сухого осаждения O_3 максимальна летом в Восточной Сибири ($0,33 \pm 0,21$ см/с⁻¹) и на Дальнем Востоке ($0,32 \pm 0,25$ см/с⁻¹).

Полученные оценки биогенных эмиссий CH_4 и сухого осаждения O_3 хорошо согласуются с опубликованными в литературе данными для ландшафтных и сезонных условий, подобных тем, что наблюдались в экспедициях TROICA. Полученные оценки биогенных эмиссий CO_2 , как правило, находятся на верхней границе или на 30-40% выше значений, представленных в литературе, т.к. они приходятся на ночное время суток и непосредственно связаны с дыханием лесной растительности.

Литература

1. Бахвалов Н.С., Жидков Н.П., Кобельков Г.М. Численные методы. Бином. Лаборатория знаний. 2003. – 640 с.
2. Безуглая Э.Ю., Берлянд М.Е. (ред). Климатические характеристики условий распространения примесей в атмосфере. Л.: Гидрометеиздат. 1983, 328 с.
3. Беликов И.Б., Бреннинкмайер К.А.М., Еланский Н.Ф., Ралько А.А. Приповерхностная концентрация метана и оксидов углерода над континентальной территорией России по результатам экспериментов TROICA. // Известия РАН. Физика атмосферы и океана. 2006. Т. 42. №1. С. 50-63.
4. Березина Е.В. ^{222}Rn в приземном слое атмосферы над территорией России и его использование для исследования различных атмосферных процессов. Состав атмосферы. Атмосферное электричество. Климатические эффекты: труды XIV всероссийской школы - конференции молодых ученых / Рос.акад.наук, Ин-т приклад.физики [и др.]. - Нижний Новгород: Институт прикладной физики РАН, 2010. – 164 с.
5. Геологический словарь: в 2-х томах. — М.: Недра. Под редакцией К. Н. Паффенгольца и др., 1978. – Т.1. - 486 с.
6. Глаголев М.В., Филиппов И.В., Клепцова И.Е., Максюттов Ш.Ш. Эмиссия метана из типичных болотных ландшафтов севера Западной Сибири. // в сборнике: Материалы по изучению русских почв. СПб. 2009. Изд-во СПбГУ. Серия 6(33), С. 57-61.

7. ГУ "Пермь ЦГМС". Радиационная обстановка в Пермском крае, 2006 [Электронный ресурс]. – Режим доступа: <http://wp.permecology.ru/report/report2006/17.html>, свободный (19.05.2014).
8. Гулабянц Л.А., Заболотский Б.Ю. Мощность «активного» слоя грунта при диффузионном переносе радона в грунтовом основании здания. //АНРИ, 2001, № 4. С.38-40.
9. Давыдов М. Г., Бураева Е. А., Зорина Л. В., Малышевский В. С., Стасов В. В. Радиозэкология: учебник для вузов / М. Г. Давыдов [и др.]. — Ростов н/Д : Феникс, 2013. — 635 с.: ил.
10. Денисов С.Н., Аржанов М.М., Елисеев А.В., Мохов И.И. Чувствительность эмиссий метана болотными экосистемами Западной Сибири к изменениям климата: мультимодельные оценки // Оптика атмосферы и океана. 2011. Т.24. N.4. С.319-322.
11. Денисов С.Н., Елисеев А.В., Мохов И.И. Оценка изменений эмиссии метана болотными экосистемами северной Евразии в XXI веке с использованием результатов расчетов с региональной моделью климата // Метеорология и гидрология. 2010. N.2. С. 55-62.
12. Еланский Н.Ф., Беликов И.Б., Березина Е.В. и др. Состав атмосферы над Северной Евразией: эксперименты TROICA. // М.: Изд-во Агроспас. 2009. 80 С. ISBN 978-5-904610-02-9.
13. Еланский Н.Ф., Копров Б.М., Соколов Д.Ю., Тиме Н.С. Турбулентный поток озона над степью. // Известия АН. Физика атмосферы и океана. 1995. Т. 31. № 1. С. 109-114.
14. Замолодчиков Д.Г., Карелин Д.В., Иващенко А.И., Лопес де Гереню В.О. Микрометеорологическая оценка биогенных потоков диоксида

углерода в типичных тундрах Восточной Чукотки. // Почвоведение. 2005. № 7. С.859–863.

15. Касимов В.Д., Касимов Д.В. Состояние бореальных лесов России и их роль в условиях глобального изменения климата. // Лесохозяйственная информация. 2008. № 12. С. 3–12.

16. Крутцен П.Й., Голицын Г.С., Еланский Н.Ф. и др. Наблюдения малых примесей в атмосфере над территорией России с использованием железнодорожного вагона-лаборатории. // ДАН. 1996. Т. 350. № 6. С. 819-823.

17. Максимовский В.А., Решетов В.В., Харламов М.Г. Карта радоноопасности России. Масштаб 1:10 000 000 // Под ред. Смыслова А.А. М. – СПб.: СПбГГИ, 1996. 1 с.

18. Максимовский В.А., Смыслов А.А., Харламов М.Г. Карта радоноопасности России. Масштаб 1:10 000 000. Объяснительная записка. СПб: Роскомнедра, ВСЕГЕИ, Госкомвуз, СПбГГИ, 1996. С. 47-56.

19. Малахов С. Г., Чернышева П. Г. О сезонных изменениях концентрации радона и торона в приземном слое атмосферы/В сб. науч. тр.: Радиоактивные изотопы в атмосфере и их использование метеорологии. М.: Атомиздат, 1965.

20. Маркова Т.А. Пространственная и временная изменчивость концентрации озона в приземном слое атмосферы. // Автореф. дис. канд. физ.-мат. наук. 2003. С. 137. РГБ ОД: 61 03-1/783-6.

21. Маркова Т.А., Еланский Н.Ф., Беликов И.Б. и др. Распределение окислов азота в приземном слое атмосферы над континентальными

районами России // Известия РАН. Физика атмосферы и океана. 2004. Т. 40, № 6. С. 796-808.

22. Микляев П. С., Зиангиров Р. С. Влияние природных факторов на плотность потока радона из грунта. / Труды III-й Международной конференции "Сергеевские чтения -2001", М.: 2001.

23. Шестаков В.М., Пашковский И.С., Сойфер А.М. Гидрогеологические исследования на орошаемых территориях. М: Недра, 1982. 248 с.

24. Панкратова Н.В., Еланский Н.Ф., Беликов И.Б. и др. Озон и окислы азота в приземном воздухе Северной Евразии по наблюдениям в экспериментах TROICA. // Известия РАН. Физика атмосферы и океана. 2011. Т. 47. № 3. С. 343-358.

25. Радиоэкология (курс лекций) / Давыдов А.В., Игумнов С.А., Талалай А.Г., Фоминых В.М., Хайкович И.М. Уральское об-во горн.инж.; УГГГА, Екатеринбург, 1999. 350 с.

26. Радон: учеб. пособие для вузов : для специальности : 010701 - Физика; 020201 - Биология / Сост. : М.Н. Левин, О.П. Негроров, В.Р. Гитлин, О.В., Селиванова, О.А. Иванова .— Воронеж : ИПЦ ВГУ, 2008. 40 с.

27. Тарасов И.В. Цементные бетоны и растворы с пониженной естественной радиоактивностью и радонопроницаемостью: дисс.канд. техн. наук: 05.23.05. / И.В. Тарасов.- Красноярск, 2008. 235 с.

28. Уткин А.И., Замолодчиков Д.Г., Честных О.В. Органический углерод лиственных лесов России. // Хвойные бореальной зоны. 2003. № 1. С. 66-76.

29. Уткин В.И. Радоновая проблема в экологии // Соросовский образовательный журнал, 2000, №3, С. 73-80.
30. Хохлов Г.В., Дуров А.И. Повторяемость приземных инверсий различной мощности на территории города Нижнего Новгорода // Экологический ежемесячник. 2006. № 2. С. 42–50.
31. Хргиан А.Х. Физика атмосферы. Т.1. Л.: Гидрометеиздат, 1978, 248 с.
32. Чимитдоржиева Г.Д., Егорова Р.А., Мильхеев Е.Ю., Цыбенков Ю.Б. Потоки углерода в степных экосистемах (на примере южного Забайкалья). // Растительный мир Азиатской России. 2010. Т. 2. № 6. С. 33–39.
33. Шумский Р.А., Беликов И.Б. Наблюдения турбулентных потоков озона в различных ландшафтных и сезонных условиях. // Состав атмосферы. Атмосферное электричество. Климатические эффекты. Труды XVI международной школы-конференции молодых ученых. М., 2012. С. 225-228.
34. Ядерная геология (пер. с англ. Под ред. И. Е. Старика). М.: Изд-во Иностранной литературы, 1956. 555 с.
35. Arzhanov M. M., Eliseev A. V., Demchenko P. F., Mokhov I. I., and Khon V. Ch.: Simulation of thermal and hydrological regimes of Siberian river watersheds under permafrost conditions from reanalysis data, *Izvestiya, Atmospheric and Oceanic Physics*. 2008. 44. P.83–89.
36. Bakulin V. N., Sen'ko Ye.Ye.: The determination of turbulence parameters from the vertical distribution of T_h and T_hB in the lower layer of the atmosphere, *Izv.Acad.Sci.USSR, Atmos.Oceanic Phys*. 1968. 10. P.610-614.

37. Butterweck G., Reineking A., Kesten J. and Porstendörfer J.: The Use of the Natural Radioactive Noble-Gases Radon and Thoron as Tracers for the Study of Turbulent Exchange in the Atmospheric Boundary - Layer - Case-Study in and above a Wheat Field, *Atmospheric Environment*. 1994. 28. P.1963-1969.
38. Beck H., and Gogolak C.: Time-dependent calculations of the vertical distribution of ^{222}Rn and its decay products in the atmosphere, *J. Geophys. Res.*. 1979. 84. C6. 9C0385. P.3139–3148.
39. Berezina E. V., Elansky N. F., Moiseenko K. B. et al. Estimation of nocturnal ^{222}Rn soil fluxes over Russia from TROICA measurements. // *Atmos. Chem. Phys.* 2013. V. 13. P. 11695-11708. doi:10.5194/acp-13-11695-2013.
40. Berezina E. V. and Elansky N. F.: ^{222}Rn concentrations in the atmospheric surface layer over continental Russia from observations in TROICA expeditions, *Izvestiya, Atmospheric and Oceanic Physics*. 2009. 45. P.757-769.
41. Biraud S., Ciais P., Ramonet M., Simmonds P., Kazan V., Monfray P., O'Doherty S., Spain T., and Jennings S.: European greenhouse gas emissions estimated from continuous atmospheric measurements and radon-222 at Mace Head., *J. Geophys. Res.* 200. 105. P.1351–1366.
42. Cohen L. D., Barr S., Krablin R., and Newstein H.: Steady-state vertical turbulent diffusion of radon, *J. Geophys. Res.*. 1972. 77. P.2654-2668.
43. Conen F. and Robertson L.B.: Latitudinal distribution of Rn-222 flux from continents. 2002. *Tellus*, 54B. P.127-133.
44. Corazza M., Bergamaschi P., Vermeulen A.T., Aalto, T., Haszpra, L., Meinhardt, F., O'Doherty, S., Thompson, R., Moncrieff, J., Popa, E.,

Steinbacher, M., Jordan, A., Dlugokencky, E., Brühl, C., Krol, M., Dentener, F.: (2011) Inverse modelling of European N₂O emissions: assimilating observations from different networks, *Atmospheric Chemistry and Physics*. 2011. 11 (5), P. 2381-2398.

45. de Miguel A., Bilbao J. Ozone dry deposition and resistances onto green grassland in summer in central Spain // *Journal of Atmospheric Chemistry*. 1999. V 34. Issue 3. P 321–338. doi:10.1023/A:1006277705046.

46. Dörr H., Kromer B., Levin I., Münnich K. , and Volpp H.: CO₂ and radon as tracers for atmospheric transport, *J. Geophys. Res.* 1983. 88. P. 1309–1313.

47. Droppo Jr. J. G. Concurrent measurements of ozone dry deposition using eddy correlation and profile flux methods. // *J. Geophys. Res.* 1985. V 90 (D1). P. 2111–2118, doi:10.1029/JD090iD01p02111.

48. Druilhet A., Guedalia D., Fontan J., and Laurant J.: Study of radon 220 emanation deduced from measurement of vertical profiles in the atmosphere. *J. Geophys. Res.* 1972. 77. P.6508-6514.

49. Dueñas C., Fernandez M.C., Cañete S., Carretero J., and Liger E.: ²²²Rn concentrations, natural flow rate and the radiation exposure level in the Nerja Cave, *Atmos. Environ.* 1999. 33. P.501-510.

50. Elansky N.F., Belikov I.B, Berezina E.V et al.: Atmospheric Composition Observations over Northern Eurasia using the Mobile Laboratory: TROICA expedition, edited by Elansky N.F., Agrosbras, Moscow, Russia, 72 pp., 2009.

51. Fontan J., Birot A., Blanc D., Bouville A. & Druilhet A. Measurement of the diffusion of radon, thoron and their radioactive daughter products in the lower layers of the Earth's atmosphere. *Tellus*. 1966. 18. P.623.

52. Fleischer R. L. Dislocation model for radon response to distant earthquakes. *Geophys. Res. Lett.* 1981. 8. P.477-480, doi: 10.1029/GL008i005p00477
53. Gaudry A., Polian G., Ardouin B., and Lambert G.: Radon-calibrated emissions of CO₂ from South Africa, *Tellus*. 1990. Ser.B. 42. P. 9-19.
54. Genthon C. and Armengaud A. Radon-222 as a comparative tracer of transport and mixing in two general circulation models. *J. Geophys. Res.* 100. 1995. P.2849–2866.
55. Gehrcke K., Kummel M., Dushe K. Background radon levels in Germany and how to take them into account in radiological evaluations // International Conference on Radiocology and Environmental Radioactivity, June 15–20, 2008, Bergen, Norway. P. 92–95.
56. Glagolev M. V., I. E. Kleptsova, V. S. Kazantsev, I. V. Filippov, T. Machida, and Sh. Sh. Maksyutov. Methane Emission from Typical Mire Landscapes in the Forest Steppe of West Siberia: On the Way to Standard Model "Bc5", *Vestn. TGPU*. 2009. Iss. 11 (89), P.198–206.
57. Glagolev M. V., Kleptsova I. E., Filippov I. V. et al. Methane emissions from subtaiga mires of Western Siberia: the standard model Bc5 // *Moscow University Soil Science Bulletin*. 2010. V 65. Issue 2. P 86–93. doi: 10.3103/S0147687410020067.
58. Glagolev M., Kleptsova I., Filippov I. et al. Regional methane emission from West Siberia mire landscapes. // *Environmental Research Letters*. 2011. V. 6. Issue 4. doi:10.1088/1748-9326/6/4/045214.
59. Glover P.W.J. and Blouin M.: Modelling increased soil radon emanation caused by instantaneous and gradual permafrost thawing due to global climate

warming, EGU General Assembly, Vienna, Austria. 2007. 15-20 April, EGU2007-A-07657.

60. Glover P.W.J.: Increased domestic radon exposure caused by permafrost thawing due to global climate change, EGU General Assembly, Vienna, Austria. 2006. 2-7 April. EGU06-A-01439.

61. Govett G.J.S. Handbook of Exploration Geochemistry. Geochemical remote sensing of the sub-surface. Elsevier. 2000. Amsterdam, 7, P.133-211.

62. Hirao S, Yamazawa H, and Moriizumi J.: Estimation of the Global ^{222}Rn Flux Density from the Earth's Surface, Jpn. J. Health Phys. 2010. 45 (2). P.161-171.

63. Hirsch A. I. On using radon-222 and CO_2 to calculate regional-scale CO_2 fluxes. //Atmos. Chem. Phys. 2007. V. 7. P. 3737–3747. doi:10.5194/acp-7-3737-2007.

64. Hosler C. R.: Meteorological Effects on Atmospheric Concentrations of Radon (Rn-222), RaB (Pb-214), and RaC (Bi-214) Near the Ground. Mon.Weather Rev. 1966. V. 94, P.89-99.

65. IARC Monographs on the Mineral Fibres and Radon. 1988. Vol. 43. Lyon, France: IARC. 300 pp.

66. Ishimori Y., Ito K., Furuta S. Environmental effect of radon from Uranium Waste rock piles: Pt I – Measurements by passive and continuous monitors. In Proceedings of the 7th Tohwa University International Symposium on radon and Thoron in the Human Environment, 23–25 October, 1997 / Eds: Katase A., Shimo M. Fukou- ka, Japan. P. 282–287.

67. Jacobi W., and Andre K.: The vertical distribution of radon-222, radon-220 and their decay products in the atmosphere, J. Geophys. Res. 1963. 68. P.3799–3814.

68. Junge Ch.: Studies of global exchange processes in the atmosphere by natural and artificial tracers. *J. Geophys. Res.* 1963. 68. P. 3849-3856.
69. Kadygrov E. N., and Pick D. R.: The potential for temperature retrieval from an angular scanning single-channel microwave radiometer and some comparison with in situ observations, *Meteorological Application.* 1998. 5. P. 393-404.
70. Kataoka T., Yunoki E., Shimizu M., Mori T., Tsukamoto O., Ohashi Y., Sahashi K., Maitani T., Miyashita K., Fujikawa Y., and Kudo A.: Diurnal Variation in Radon Concentration and Mixing-Layer Depths, *Boundary-Layer Meteorology.* 1998. V89. P.225-250.
71. Kim Chang-Kyu, Lee Seung-Chan, Lee Dong-Myung et al. Nationwide survey of radon in Korea // *Health Physics.* 2003. V. 84. 3. P. 354–360.
72. Kirichenko, L.V.: Radon Exhalation from Vast Areas According to Vertical Distribution of its Short-Lived Decay Products, *J. Geophys. Res.* 1970. 75. P. 3639–3649.
73. Kovach E.M. Meteorological influences upon the radon content of soil-gas. *Frans. Am. Geophys, Union.* 1945. Vol. 26. P. 241-248.
74. Kritz M. A., J.-C. Le Roulley, and D. Z. Stockwel: Validation of an off-line three-dimensional chemical transport model using observed radon profiles: 1. Observations. *J. Geophys. Res.* 1998. 103 P.8425–8432.
75. Kudeyarov V.N. Contribution of soil to atmospheric CO₂ balance in Russia // *Doklady Biological Sciences.* 2000. V. 375. № 1-6. P.610-612.
76. Larson RE, Hoppel WA. Radon-222 measurements below 4km as related to atmospheric convection. *Pure and Applied Physics.* 1973. 105. P.900–906.

77. Lee H. N., and Larsen R.J.: Vertical Diffusion in the Lower Atmosphere Using Aircraft Measurements of Radon-222, *J. Appl. Meteor.* 1997. 36. P.1262 – 1270.
78. Lettau H. H. Theory of surface-temperature and heat-transfer oscillations near a level ground surface, *Eos Trans.* 1951. AGU, 32, P.189-200.
79. Levin I., Born M., Cuntz M., Langendörfer U., Mantsch S. and co-authors: Observations of atmospheric variability and soil exhalation rate of radon-222 at a Russian forest site. Technical approach and deployment for boundary layer studies. *Tellus.* 2002. B. 54. P.462–475.
80. Levin I., Glatzer-Mattheier H., Marik T., Cuntz M., Schmidt M., and Worthy D. E.: Verification of German methane emission inventories and their recent changes based on atmospheric observations, *J. Geophys. Res.* 1999. 104. P.3447–3456.
81. Lucas H.F.: Improved Low-Level Alpha Scintillation Counter for Radon. *Review of Scientific Instruments*, Vol. 28. 1957. p. 680.
82. Malakhov S. G., Bakulin V. N., Dmitrieva G. V., Kirichenko T. V., Sisigina T. I. & Starikov B. G. Diurnal variation of radon and thoron decay product concentrations in the surface layer of the atmosphere and their washout by precipitation. *Tellus.* 1966. 18. P. 643.
83. Map of natural gamma radiation doses of Russia. 1:10000000 scale. Explanatory notes. E.B.Vysokoostrovskaya, V.S.Danilov, A.I.Krasnov, V.V.Reshetov. M.-SPb.: Roscomnedra, 1996.
84. Martens C. S., Shay T., Mendlovitz H. P. et al. Radon fluxes in tropical forest ecosystems of Brazilian Amazonia: night-time CO₂ net ecosystem exchange derived from radon and eddy covariance methods. // *Global Change Biology.* 2004. V. 10. P. 618– 629. doi: 10.1111/j.1529-8817.2003.00764.x.

85. Martz D.E, Holleman D.F, McCurdy D.E, and Schiager K.: Analysis of atmospheric concentrations of RaA, RaB and RaC by alpha spectroscopy, *Health Phys.* 1969. 17. P.131–138.
86. Masyagina O.V., Prokushkin S.G., Mori S. et al. CO₂ emissions of the non-tree vegetation cover in larch (*Larix gmelinii* (Rupr.)) stands in the Central Evenkia region of Siberia, Russia. // *Eurasian Journal of Forest Research.* 2006. V. 9. Issue 1. P.17-28.
87. Megumi K., Mamuro T. Radon and Thoron Exhalation from the Ground // *J. Geophys. Res.* 1973. V. 78. < 11. P. 1804–1808.
88. Messenger C., Schmidt M., Ramonet M., Bousquet P., Simmonds P., Manning A., Kazan V., Spain G., Jennings S. G., and Ciais P.: Ten years of CO₂, CH₄, CO and N₂O fluxes over Western Europe inferred from atmospheric measurements at Mace Head, Ireland, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 2008. 8. P. 1191–1237, doi:10.5194/acpd-8-1191-2008.
89. Miklyaev P. S., and Petrova T. B.: Radon hazard in Moscow, Russia, IAEG 2006 Engineering geology for tomorrow's cities. Pre-Congress Proceeding. The 10th IAEG International Congress, Nottingham, United Kingdom. 2006. P. 355-361.
90. Milin V. B., Malakhov S.G., Zorina K. I., and Sisigina T. I.: Radon concentration and vertical turbulent mixing in the lowest atmospheric layer, Foreign technology div Wright-Patterson AFB, Ohio, 9 February, AD0679719, 1968.
91. Mogro-Campero A., R. L. Fleischer and R. S. Likes. Changes in subsurface radon concentration associated with earthquake. *J. Geophys. Res.* 1980. 85. P. 3053-3057, doi: 10.1029/JB085iB06p03053.

92. Moriizumi J., Nagamine K., Iida T., Ikebe Y. Estimation of areal flux of atmospheric Methane in an urban area of Nagoya, Japan, Inferred from atmospheric radon-222 data // *Atmospheric Environment*. 1996. V. 30. Issues 10–11. P. 1543-1549. doi:10.1016/1352-2310(95)00481-5.
93. Moses H., Stehney A. F., and Lucas H. F.: The effect of meteorological variables upon the vertical and temporal distribution of atmospheric radon, *J. Geophys. Res.* 1960. 66. P.1223-1238.
94. Nazaroff W.W. "Measurement techniques", in "Radon and its decay products in indoor air", S Nazaroff, W.W. and Nero, A.V.Jr. ed., Wiley Interscience. 1988. P.491-504. ISBN 0-471-62810-7.
95. Neiryck J., Gielen B., Janssens I.A., Ceulemans R. Insights into ozone deposition patterns from decade-long ozone flux measurements over a mixed temperate forest. // *Journal of Environmental Monitoring*. 2012. V. 14, P. 1684–1695. doi: 10.1039/C2EM10937A.
96. Oberlander E.A., Brenninkmeijer C.A.M., Crutzen P.J. et al. Trace gas measurements along the Trans-Siberian railroad: The TROICA 5 expedition. // *J. Geophys. Res.* 2002. V. 107(D14). doi:10.1029/2001JD000953.
97. Oikawa S, Kanno N, Sanada T, Ohashi N, Uesugi M, Sato K, Abukawa J, and Higuchi H.: A nationwide survey of outdoor radon concentration in Japan, *J. Environ Radioact.* 2003. 65. P. 203-213.
98. Omori Y., Tohbo I., Nagahama H., Ishikawa Y., Takahashi M., Sato H., Sekine T. Variation of atmospheric radon concentration with bimodal seasonality, *Radiation measurements*. 2009. 44. P.1045-1050.
99. Padro J. Summary of ozone dry deposition velocity measurements and model estimates over vineyard, cotton, grass and deciduous forest in summer.

- // Atmospheric Environment. 1996. V 30. Issue 13. P 2363–2369.
doi:10.1016/1352-2310(95)00352-5.
100. Panikov N.S., Dedysh S.N. Cold season CH₄ and CO₂ emission from boreal peat bogs (West Siberia): Winter fluxes and thaw activation dynamics. // Global Biogeochem. Cycles. 2002. V. 14. Issue 4. P. 1071–1080. doi:10.1029/1999GB900097.
101. Panin L. V., Elansky N. F., Belikov I. B. et al. Estimation of Reliability of the Data on Pollutant Content Measured in the Atmospheric Surface Layer in the TROICA Experiments. // Izvestiya, Atmospheric and Oceanic Physics. 2001. V. 37, Suppl. 1, P. S81-S91.
102. Pasquill F.: The Estimation of the dispersion of windborne material, Meteorological Magazine. 1961. 90. P. 33-49.
103. Pearson J. E. and Jones E. J. Emanation of Radon-222 from Soils and its Use as a Tracer, J. Geophys. Res. 1965. 70, P.5279–5290.
104. Pio C.A., Feliciano M., Vermeulen A.T., Sousa E.C. Seasonal variability of ozone dry deposition under southern European climate conditions, in Portugal. // Atmospheric Environment. 2000. V. 34. Issue 2. P. 195–205. doi:10.1016/S1352-2310(99)00276-9.
105. Planinić J., V. Radolić, and B. Vuković. Radon as an earthquake precursor. Nuclear Instruments and Methods Phys. Res. 2004. A, 530. P.568-574, doi: 10.1016/j.nima.2004.04.209
106. Prospero J. M., Bonatti E., Schubert E., and Carlson T. N.: Dust in the Caribbean atmosphere traced to an African dust storm, Earth Planet. Sci. Lett. 1970. 9. P.287–293.

107. Rannik Ü., Mammarella I., Keronen P., Vesala T. Vertical advection and nocturnal deposition of ozone over a boreal pine forest. // *Atmos. Chem. Phys.* 2009. V. 9. P. 2089–2095. doi:10.5194/acp-9- 2089-2009.
108. Rasch P. J., Feichter J., Law K., Mahowald N., Penner J. et al: A comparison of scavenging and deposition processes in global models: results from the WCRP Cambridge Workshop of 1995. *Tellus.* 2000. 52B. P.1025–1056.
109. Roffman A. Short-lived daughter ions of radon 222 in relation to some atmospheric processes. *Journal of Geophysical Research.* 1972. 77. P.0148-0227. doi: 10.1029/JC077i030p05883.
110. Rammachandran T.V., Balani M.C. Report on the participation by the BARC in the tenth Indian Expedition to Antarctica, March 1993. BARC, Bombay, India.
111. Sachs T., Giebels M., Boike J., Kutzbach L. Environmental controls on CH₄ emission from polygonal tundra on the micro-site scale in the Lena River Delta, Siberia. // *Global Change Biology.* 2010. V. 16. Issue 11. P.3096–3110. doi:10.1111/j.1365-2486.2010.02232.x.
112. Sawamoto T., R. Hatano, M. Shibuya, K. Takahashi, Isaev A. P., R. M. Desyatkin. CO₂, N₂O, CH₄ fluxes from soil in Siberian-taiga larch forests with different histories of forest fire. // *Tohoku Geophysical Journal.* 2001. V. 36. № 2. P.77-89.
113. Schery S. D., and Wasiolek M. A.: Modeling radon flux from the earth's surface, *Radon and Thoron in the Human Environment*, A. Katase and S. Shimo (eds.), World Scientific, Singapore. 2008. P. 207–217.

114. Schmidt M., Graul R., Sartorius H., and Levin I.: Carbon dioxide and methane in continental Europe: a climatology, and ^{222}Rn radon-based emission estimates, *Tellus*. 1996. 48. P.457–473.
115. Servant J.: Temporal and Spatial Variations of the Concentration of the Short-Lived Decay Products of Radon in the Lower Atmosphere, *Tellus*. 1966. 18. P. 663–670.
116. Shibistova O., Lloyd J., Evgrafova S. et al. Seasonal and spatial variability in soil CO_2 efflux rates for a central Siberian *Pinus sylvestris* forest. // *Tellus B – Chemical and Physical Meteorology*. 2002. V. 54. Issue 5. P. 552– 567.
117. Sobyagina E.V., Kovalenko V.V., Maltsev U.M., Chechetkin V.A.: Radon at the perspective development territory of the Severni microraiion in Minusinsk. Proceedings of the International Scientific Conference “Radioecology of the XXI century” – Krasnoyarsk, 14-16 May, 2012, SFU, P.165-175.
118. Somashekarappa H. M., Narayana Y., Radhakrishna A. P., Siddappa K., Joshi V. B., Kholekar R. V., and Bhagwat A. M.: Atmospheric radon levels and its emanation rate in the environment of Kaiga, *Radiat. Meas.* 1996. 26. P.35–41.
119. Stockburger H., and Sittkus A.: Unmittelbare Messung der natürlichen Radioaktivität der atmosphärischen Luft, *Z. Nat.* 1966. 21a. P.1128 – 1132.
120. Szegvary T., Leuenberger M.C., Conen F.: Predicting terrestrial ^{222}Rn flux using gamma dose rate as a proxy. *Atmospheric Chemistry and Physics*. 2007. 7. P.2789-2795.
121. Szegvary T., Conen F., and Ciais P.: European ^{222}Rn inventory for applied atmospheric studies, *Atmospheric Environment*. 2009. 43, 1536–1539.

122. Ta-Yung Li. Prediction of the diurnal variation of radon diffusion with synoptic implications. *Archiv für Meteorologie, Geophysik und Bioklimatologie*. 1975. Serie A 24:3. P.269-280.
123. Taguchi S., Law R. M., Rodenbeck C., Patra P. K., Maksyutov S., Zahorowski W., Sartorius H., and Levin I.: TransCom continuous experiment: comparison of ^{222}Rn transport at hourly time scales at three stations in Germany, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 10071–10084, 2011, doi:10.5194/acp-11-10071-2011.
124. Takakai F., Desyatkin A.R., Lopez C.M.L., Fedorov A.N., Desyatkin R.V., Hatano R. Influence of forest disturbance on CO_2 , CH_4 and N_2O fluxes from larch forest soil in the permafrost taiga region of eastern Siberia // *Soil Science & Plant Nutrition*. 2008. V54. P938–949. doi: 10.1111/j.1747-0765.2008.00309.x
125. Tang G., Li X., Wang Y. et al. Surface ozone trend details and interpretations in Beijing, 2001–2006. // *Atmos. Chem. Phys.*, 2009. V. 9. P. 8813–8823. doi:10.5194/acp-9-8813-2009.
126. Tohjima Y., Wakita H., Machida T., et al. Distribution and emission of CH_4 over Central West Siberian lowland. // *Airborne measurements of greenhouse gases over Siberia III*, In: *International Symposium on Global Cycles of Atmospheric Greenhouse Gases*, Sendai, Japan, 1994, P. 9-21.
127. Turekian, K.K., Nozaki, Y., and Benninger, L. K.: The flux of radon and thoron from Australian Geochimistry of atmospheric radon and radon products, *Ann. Rev. Earth Planet Sci.*, 5, 227–255, 1977.
128. Tuzet A., Perrier A., Loubet B., Cellier P. Modelling ozone deposition fluxes: The relative roles of deposition and detoxification processes. // *Agricultural and Forest Meteorology*, 2011. V. 151. P. 480–492.

doi:10.1016/j.agrformet.2010.12.004.

129. Ullah S, Moore TR. Topographic controls of CH₄ and N₂O fluxes from temperate and boreal forest soils in eastern Canada. // Integrated Land Ecosystem-Atmosphere Process Study Newsletter. 2009, No.7, P.30-32.

130. UNSCEAR. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. 1982 report to the General Assembly with annexes. New York: United Nations sales publication, 1982. V. 77. IX. 1. 114 p.

131. UNSCEAR. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. 2000 report to the General Assembly // United Nations sales publication. 2000. V. 2. New York. 566 p.

132. Voevodin V.A. and Kurguz S.A.: Radon flux density variation from the soil in the measurement site of Krasnoyarsk. Proceedings of the International Scientific Conference “Radioecology of the XXI century” – Krasnoyarsk, 14-16 May, 2012, SFU, 108-114, 2012

133. Wesely M. L., Eastman J. A., Stedman D. H., Yalvac E. D. An eddy-correlation measurement of NO₂ flux to vegetation and comparison to O₃ flux. // Atmospheric Environment. 1982. V 16 Issue 4. P 815-820. doi:10.1016/0004-6981(82)90399-7

134. Wesely M.L., Hicks B.B. A review of the current status of knowledge on dry deposition. // Atmospheric Environment. 2000. V 34, P 2261-2282. doi:10.1016/S1352-2310(99)00467-7.

135. Whalen S. C., Reeburgh W. S. Consumption of atmospheric methane by tundra soils. // Nature. 1990. V.346. P.160-162. doi:10.1038/346160a0.

136. Wickland K.P., Striegl R.G., Neff J.C., Sachs T. Effects of permafrost melting on CO₂ and CH₄ exchange of a poorly-drained black spruce lowland. // J. Geophys. Res. 2006. V 111. G02011. doi:10.1029/2005JG000099.

137. Wilkenning M., Radon in Atmospheric Studies: A Review. Special symposium on natural radiation environment, Bombay (India), 19 - 23 Jan 1981. 10 p.
138. Wilkniss P. E., Larson R. E., Bressan P. J., and Steranka J.: Atmospheric radon and continental dust near the automatic and their correlation with air mass trajectories, *J. Appl. Meteorol.* 1974. 13. P. 512-520.
139. Wille C., Kutzbach L., Sachs T. et al. Methane emission from Siberian arctic polygonal tundra, eddy covariance measurements and modeling. // *Global Change Biology.* 2008. V. 14. P. 1395–1408. doi: 10.1111/j.1365-2486.2008.01586.x
140. WMO Greenhouse Gas Bulletin (GHG Bulletin). The State of Greenhouse Gases in the Atmosphere Based on Global Observations through 2009. World Meteorological Organization – WMO. №6. 2010.
141. Wu Z., Wang X., Chen F. et al. Evaluating the calculated dry deposition velocities of reactive nitrogen oxides and ozone from two community models over a temperate deciduous forest. // *Atmospheric Environment.* 2011. V. 45. P. 2663-2674. doi:10.1016/j.atmosenv.2011.02.063.
142. Yakovleva V.C.: The radon flux density from the Earth's surface as an indicator of a seismic activity // *Proceedings of 7th International Conference on Gas Geochemistry.* 2003. Freiberg, Germany, September 22-26, P. 28-30.
143. Jakovleva V.S. A method for estimating the convective radon transport velocity in soils / V.S. Jakovleva, N.K. Ryzhakova // *Radiation Measurements.* 2003. V. 36. P. 389-391.
144. Yver C., Schmidt M., Bousquet P., Zahorowski W., and Ramonet M.: Estimation of the molecular hydrogen soil uptake and traffic emissions at a suburban site near Paris through hydrogen, carbon monoxide, and radon-222

semicontinuous measurements, *J. Geophys. Res.* 2009. 114. 12 pp. D18304, doi:10.1029/2009JD012122.

145. Zahorowski W., Chambers S., and Henderson-Sellers A.: Ground based radon-222 observations and their application to atmospheric studies, *J. Environ. Radioact.* 2004. 76. P. 3–33.

146. Zhang L., Brook J., Vet R. On ozone dry deposition with emphasis on non-stomatal uptake and wet canopies. // *Atmospheric Environment*. 2002. V. 36. Issue 30. P. 4787–4799. doi:10.1016/S1352-2310(02)00567-8.