

РАДОН ПОЧВЕННОГО И АТМОСФЕРНОГО ВОЗДУХА И ДЕГАЗАЦИЯ ЗЕМЛИ

В.Н Шулейкин

Институт проблем нефти и газа РАН, e-mail: shvn@front.ru

Результаты многочисленных экспериментальных наблюдений показали, что концентрация эманации радия – радона, Rn-222, – в почвенном воздухе возрастает с глубиной отбора пробы. В среднем в рыхлых однородных осадочных породах максимум объемной концентрации почвенного радона достигается на глубине порядка 5м. Увеличение содержания радона с глубиной относительно дневной поверхности – результат сброса (эксхалации) газа-эманации в приповерхностные слои атмосферы. Наблюдаемая закономерность при достаточно широком разбросе абсолютных значений знакопостоянна (см. табл. 1, рис. 1) [1].

Аналитические решения задачи распределения радона в грунте получены для ряда модельных представлений [1]: 1) для бесконечного однородного пласта, выходящего на дневную поверхность; 2) для нерадиоактивного слоя, покрывающего радиоактивный слой бесконечной мощности; 3) для нерадиоактивного слоя и коренной породы; 4) для эманлирующей сферы в нерадиоактивной породе; 5) для цилиндрического эманлирующего тела в нерадиоактивной породе; 6) для распространения газа-эманации в нерадиоактивном слое при наличии конвективного переноса от эманлирующего источника.

С учетом результатов, представленных на рис. 1, последнее приближение достаточно полно охватывает реальные грунтовые ситуации; позволяет оценить глубины поступления радона в приповерхностные слои грунта для случаев диффузионного и конвективного механизмов транспорта. Решение уравнения переноса для него имеет вид

$$Q = Q_0 * \exp \{z * [v/2r - (v^2/4r^2 + \lambda/r)^{1/2}]\}, \quad (1)$$

где r – коэффициент диффузии; Q, Q_0 – количество газа-эманации в одном кубическом сантиметре почвенного воздуха; λ – радиоактивная постоянная [1/с]; v – скорость переноса радона [см/с]; z – вертикальная координата, начало которой лежит на границе эманлирующего слоя [см].

Таблица 1

**Относительные предельные колебания концентрации
радона в грунте на глубинах 0.25 – 2.0 м**

Глубины, м	0.25	0.5	1.0	2.0
Отношение предельных концентраций	320 : 1	80 : 1	10 : 1	1 : 1

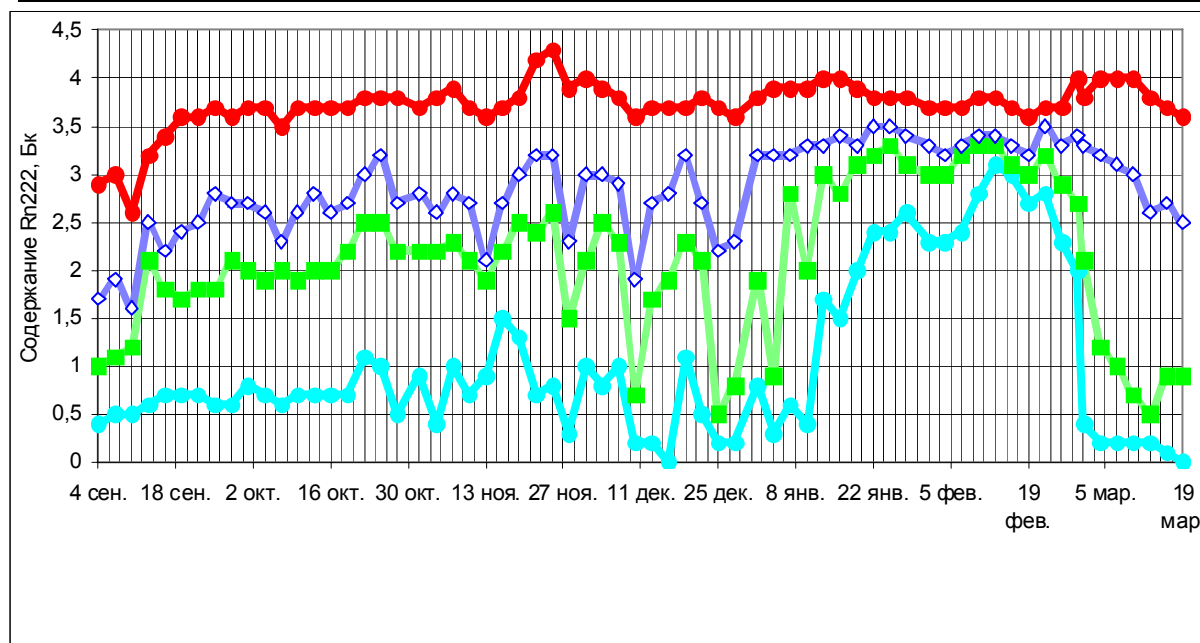


Рис. 1 Результаты режимных наблюдений за концентрацией радона в грунте на глубинах 0.25 м, 0.5 м, 1.0 м и 2.0 м.

На рис. 2 представлены графики относительного уровня концентрации газ-эманации в зависимости от расстояния от источника и скоростей диффузионного и конвективного переноса. На левом графике скорость транспорта $v = 5 \cdot 10^{-4}$ см/с характерна для скорости диффузионного переноса радона в осадочных породах.

Полученный результат показывает, что конвективный механизм транспорта радона к дневной поверхности существенно увеличивает возможную глубину расположения эманлирующего слоя. Следует уточнить, что во всех рассматриваемых случаях полагалось равенство нулю его концентрации на уровне дневной поверхности. Это формальное математическое ограничение допустимо с физической точки зрения – концентрация эксхалации почвенного радона в приповерхностной атмосфере минимум на 2 порядка ниже концентрации почвенного радона в грунте [2, 3], что можно видеть и по первым столбцам таблицы 1.

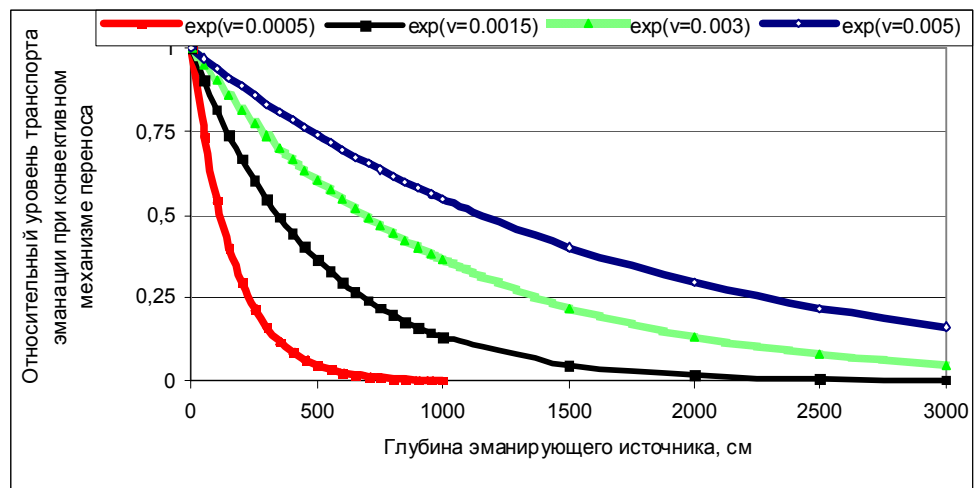


Рис. 2. Относительные вариации концентрации эманации в зависимости от скорости диффузионного и конвективного переноса $v = 0.0005$ см/с, $v = 0.0015$ см/с, $v = 0.003$ см/с, $v = 0.005$ см/с и расстояния от источника.

Оценка скорости транспорта радона в грунте при работе диффузионного механизма переноса проводилась экспериментально. В течение нескольких дней осуществлялся контроль объемной активности радона грунта и атмосферы на глубинах 0.5 м, 0.6 м, 1.25 м и 1.9 м. Коэффициент корреляции радона грунта на глубине 0.5 м и радона атмосферы $k[\text{Rn}(0.5), \text{Rn}(a)] = 0.88$; радона грунта на глубине 0.6 м и радона атмосферы $k[\text{Rn}(0.6), \text{Rn}(a)] = 0.42$. На больших глубинах коэффициенты корреляции незначительные. Полученный результат позволяет заключить, что активный транспорт радона в атмосферу в течение суток идет с глубин ~ 0.5 м. За три периода полураспада газа-эманации (3.825 дня $\times 3 \sim 12$ дней) его содержание упадет в 8 раз – практически на порядок. Этот временной интервал позволяет рассчитывать на перенос радона к дневной поверхности с глубин ~ 6 м.

Присутствие радона в земной коре будет определяться распространением материнского вещества. В таблице 2 приведены данные исследований Биогеохимической лаборатории академика В.И. Вернадского по распространению радия в биосфере Земли.

Таблица 2

Содержание радия в биосфере Земли

	Концентрация радия, %
1. Горные породы	$10^{-9} - 10^{-10}$
2. Почвы	$10^{-10} - 10^{-11}$
3. Растения	10^{-12}
4. Животные	10^{-13}
5. Воды рек и морей	$10^{-12} - 10^{-14}$

Присутствие радия естественно гарантирует наличие в среде продуктов его распада. Другими словами, осадочный чехол оказывается достаточно насыщен газом-эманацией Rn-222; в частности, содержание радия в глинах всего лишь в два раза меньше, чем в гранитах.

Высокий молекулярный вес радона исключает возможность его самопроизвольной субвертикальной миграции. Долгое время считалось, что перенос газа-эманации осуществляется пузырьковыми образованиями всех летучих газов [4, 5].

Объемная концентрация Rn-222 существенно меньше объемных концентраций любого из тривиальных летучих газов подземных водно-газовых систем – CO₂, N₂, паров H₂O, He, H₂, CH₄ и гомологов и т. д.

По мере субвертикального подъема водно-газовых систем, особенно в зонах повышенной проницаемости горных пород, растворенные в воде газы стремятся обособиться в отдельные фазы [4, 5]. В результате те же газы, но уже в виде отдельных пузырьков начинают всплывать к дневной поверхности. Подъем пузырьков сопровождается падением давления в их объеме, т. е. увеличением площади контакта пузырьков с горной породой и жидкостью: с одной стороны, это увеличивает вероятность захвата радона; с другой – подъемную силу, т. е. увеличивается вероятность переноса газа-эманации в приповерхностные слои грунта и приземную атмосферу.

В геологической среде обособленные пузырьки летучих газов становятся природными дегазаторами, собирающими на себя, наряду с другими газами, радон. В конечном итоге с поверхности уровня грунтовых вод в рыхлые неоген-четвертичные отложения и в отложения почв поступают обогащенные эманациями субвертикальные потоки летучих природных газов.

Ретроспективный анализ материалов, полученных в ходе полевых исследований [4], привел к неожиданным результатам. В работах на Калужской кольцевой структуре, помимо оперативных измерений водорода и радона, на 8 наблюдательных пикетах отбирались пробы почвенного воздуха для последующего лабораторного анализа. Результаты этого анализа на содержание метана, водорода, азота и двуокиси углерода представлены на рис. 3.

Содержания летучих газов (рис. 3) правильнее было бы представить в виде гистограмм – наблюдательные пикеты 1 – 8 (взяты с разных профилей) расположены

друг от друга на расстоянии от 0.5 до 18 км. Ломаные кривые на рисунке приведены для выделения наблюдаемых корреляционных связей или их отсутствия.

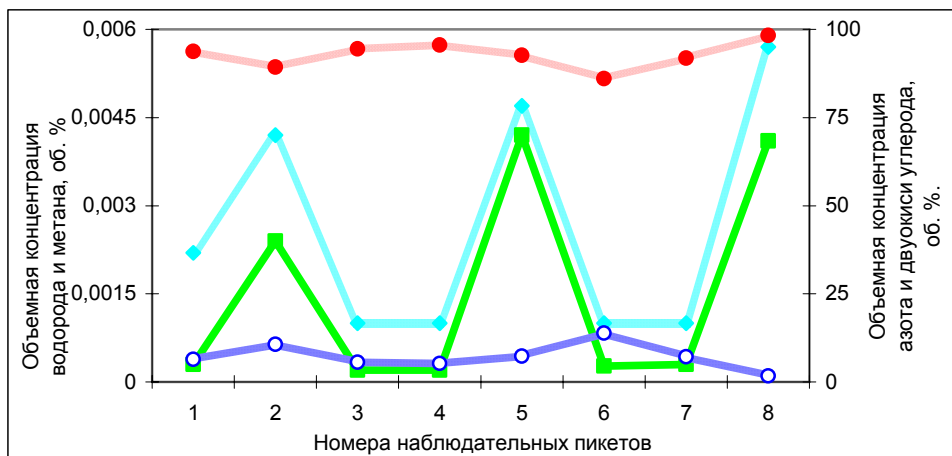


Рис. 3. Концентрации летучих газов почвенного воздуха, полученные при лабораторном анализе 8 проб, отобранных на Калужской кольцевой структуре [4]

Полученные результаты убеждают в синфазности вариаций содержаний метана и водорода в отобранных пробах. Связи этих двух летучих газов с изменениями содержаний двуокси углерода и азота, концентрации которых на порядки выше, полностью отсутствуют. Концентрации азота и двуокси углерода меняются в противофазе и охвачены жесткой корреляционной связью $k(N_2;CO_2) = (-0.99)$ при отсутствии корреляционной связи с метаном и водородом $|k(H;N_2,CO_2)| = 0.28; 0.29$.

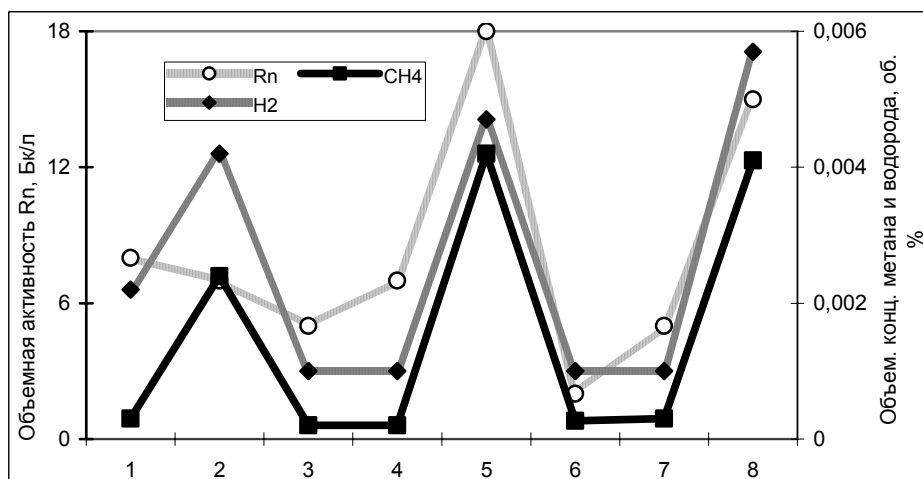


Рис. 4. Вариации концентраций водорода, метана и объемной активности радона на 8 пикетах на Калужской кольцевой структуре

На рис. 4 представлены те же результаты анализа проб почвенного воздуха на содержание метана и водорода и данные оперативного определения объемной активности радона грунта на тех же пикетах. Коэффициент корреляции водорода и метана очень высок: $k(\text{H}; \text{CH}_4) = 0.96$ (см. рис. 3, 4). Коэффициенты корреляции между концентрациями двух летучих газов и объемной активностью радона на рассматриваемых 8 пикетах тоже достаточно велики: $k(\text{Rn}; \text{H}_2) = 0.84$, $k(\text{Rn}; \text{CH}_4) = 0.89$.

Их незначительный спад по сравнению с коэффициентом корреляции летучих газов имеет понятное физическое объяснение – точность лабораторного определения концентрации водорода и метана существенно выше точности полевых измерений объемной активности радона.

Полученный результат заставляет уточнить модельное представление связей исследуемых характеристик Земли и атмосферы. Корреляционный анализ данных измерений позволяет ограничить количество носителей двумя газами – водородом и метаном.

Экспериментальная проверка уточненного модельного представления связей метана, водорода и радона выполнялась в 1999 году на территории Щелковского газохранилища. На рис. 5 приведены объединенные результаты анализа проб, отобранных на Калужской кольцевой структуре и на территории Щелковского ПХГ.

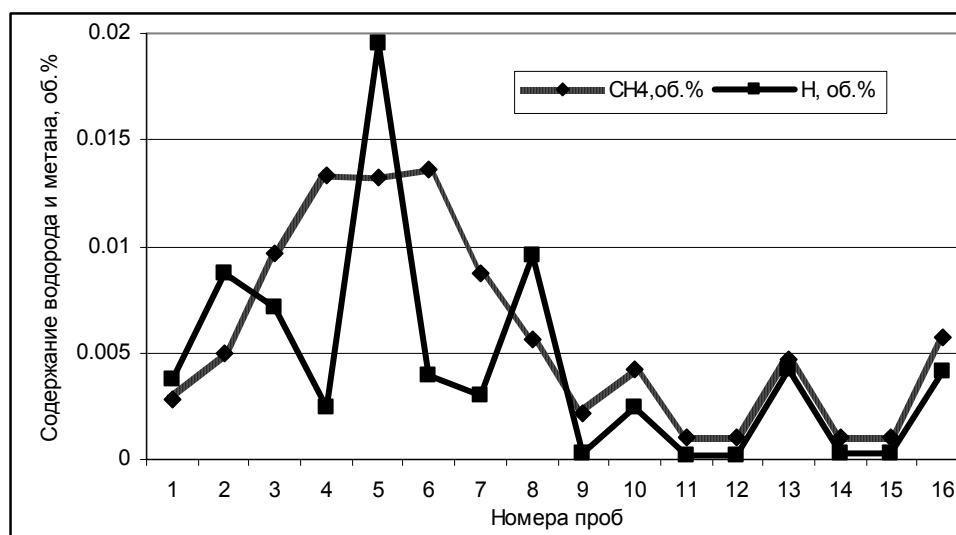


Рис. 5. Результаты анализа проб почвенного воздуха с территории Щелковского ПХГ – (1– 8) и с Калужской кольцевой структуры – (9–16)

Коэффициент корреляции между двумя 16 – точечными массивами данных значим, но достаточно мал: $k(Rn;H)_{16} = 0.56$. Он возрастает до величины $k(Rn;H)_{12} = 0.96$, если из массивов отбросить результаты анализа 3, 4 и 6, 7 проб.

Исключение из массивов 4 пар точек оправдано еще и тем, что на наблюдательных пикетах был зарегистрирован рост объемной активности радона грунта и атмосферы. Измерения проводились на территории ПХГ, где в транспорте ионизатора в приповерхностные слои грунта и атмосферу могли участвовать не только метан и водород глубинного субвертикального потока – продукты естественной дегазации Земли, – но и метан из пласта-коллектора – метан мелкого субвертикального потока.

Наличие данных лабораторных исследований содержания водорода и метана в пробах, полученных на Калужской кольцевой структуре, в Щелкове и Ставропольском крае, – всего 68 пар значений – позволяет проанализировать массивы в целом [6]. Коэффициент корреляции $k(CH_4,H)_{68} = 0.76$ достаточно высок. Однако, если рассмотреть коэффициент корреляции между логарифмами $Ln(H)$, $Ln(CH_4)$, то его величина возрастает: $k[Ln(H), Ln(CH_4)] = 0.96$. Построение линейной аппроксимации логарифмов измеренных значений содержаний водорода и метана в грунте позволяет с достоверностью $D = 0.92$ рассчитать уравнение связи исследуемых параметров:

$$CH_4 = \exp[1,675Ln(H) + 2,762]. \quad (2)$$

На рис. 6 построены графики измеренных и рассчитанных по формуле (2) значений содержания метана грунта по 68 парам точек.

Принимая во внимание диапазон перепада рассматриваемых концентраций метана – 4 порядка, $(10^{-6} - 10^{-2})$ процентов объема – совпадение измеренных и расчетных значений можно считать идеальным. Самый большой разброс пар значений наблюдается в 25, 28, 32 и 37 пробах (Ставропольский край, 2006 год). Однако измеренные концентрации водорода в этих пробах были на пределе чувствительности лабораторной аппаратуры – правильнее, видимо, вместо числовых значений использовать принятый термин «следы».

Полученная экспоненциальная связь между метаном и водородом понятна с физической точки зрения. В квазистационарном случае распределение газов глубинного субвертикального потока в геологической среде по мере приближения от источника к дневной поверхности, как и в атмосфере, будет описываться «барометрической

формулой». Естественно, что в пористой среде процесс выхода распределения в

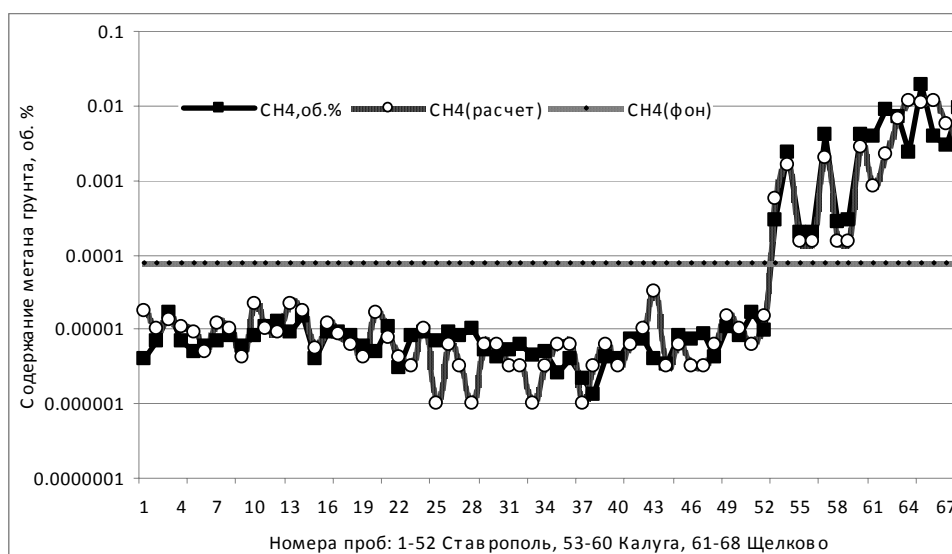


Рис. 6. Рассчитанные согласно (2) и измеренные значения содержания метана грунта – 68 пар точек. Прямая линия – средний фоновый уровень метана грунта

квазистационарное состояние займет существенно большее время.

При незначительных перепадах концентраций (в пределах порядка), как при малых содержаниях (52 пробы, отобранные на территории Северо-Ставропольского газохранилища, $10^{-6} - 10^{-5}$ об.%), так и при больших содержаниях (16 проб с Калужской кольцевой структуры и Щелковского ПХГ, $10^{-3} - 10^{-2}$ об.%), экспоненту достоверно можно аппроксимировать первыми членами разложения в ряд – линейной зависимостью. Например, коэффициент корреляции расчетных значений содержания метана грунта, полученных по формуле (2) и при линейной аппроксимации для 52 пар проб, отобранных в Ставропольском крае, очень велик: $k\{CH_4[\exp(H)], CH_4(H)\} = 0.98$.

Полевой материал, использованный при выводе формулы (2), был собран в разное время и в разных местах; абсолютные значения водорода и метана получены на различном лабораторном оборудовании. Это позволяет утверждать, что выведенная закономерность носит фундаментальный характер. Естественно, что выражение (2) требует дальнейшей проверки и уточнения: в частности, необходимо получить дополнительный полевой материал в диапазоне концентраций метана грунта ($10^{-5} - 10^{-3}$) об.%.

В связи с уточненным представлением о механизме переноса радона возникает естественный вопрос о степени участия каждого летучего газа в транспорте газа-эманации. Принимая во внимание молекулярный вес летучих газов, можно предположить,

что на долю водорода приходится перенос 89% радона. Помимо веса газа-эманации пузырьковое образование имеет еще и собственный вес, который у водорода в 8 раз меньше.

Для решения этой задачи на 16 наблюдательных пикетах были проведены синхронные наблюдения водорода и радона почвенного и атмосферного воздуха [7].

Результаты эксперимента обрабатывались по следующей схеме:

- 1) Полагалось, что процентное содержание (N) радона атмосферы обязано переносу пузырьковыми образованиями водорода. Эти зарегистрированные значения $Rn(a)$ представлялись как линейная функция $Rn(N,a) = [A + B \cdot Rn \cdot H]$;
- 2) Оставшийся радон $(100 - N)\%$ выносится в атмосферу пузырьковыми образованиями метана. Разность $[Rn(a) - Rn(N,a)]$ представлялась как линейная функция $Rn[(100-N),a] = [C + D \cdot Rn \cdot CH_4]$;
- 3) Расчетные значения $Rn(N,a)$ и $Rn[(100-N),a]$ суммировались, после чего оценивался коэффициент корреляции между измеренными и расчетными значениями радона атмосферы;
- 4) Меняя величину N в пределах $(0 - 100)\%$, можно выбрать соотношение между водородом и метаном, при котором коэффициент корреляции измеренных и расчетных значений радона атмосферы был максимальным. Это соотношение и определяло степень участия исследуемых летучих газов (водорода и метана) в переносе радона в приповерхностные слои грунта и атмосферу.

Результаты расчетов по описанной схеме представлены на рис. 7.

Максимальный коэффициент корреляции между расчетными и измеренными значениями объемной активности радона атмосферы достигается приблизительно при 15% - ном участии в транспорте метана и 85% - ном участии водорода. Таким образом, сделанная выше грубая оценка о доминирующем вкладе водорода в перенос радона в приповерхностные слои грунта и в атмосферу подтверждается и количественной оценкой.

Более подробная оценка коэффициента корреляции участия метана в переносе радона не представляется целесообразной. Относительная погрешность единичного отсчета объемной активности радона 30%; реализуемое в процессе расчетов усреднение по 3-м последовательным отсчетам уменьшает эту погрешность до $\sim 17\%$. Выделение максимума коэффициента корреляции на уровне сотых долей будет явно ошибочным.

Корреляция измеренных и расчетных значений радона в атмосфере

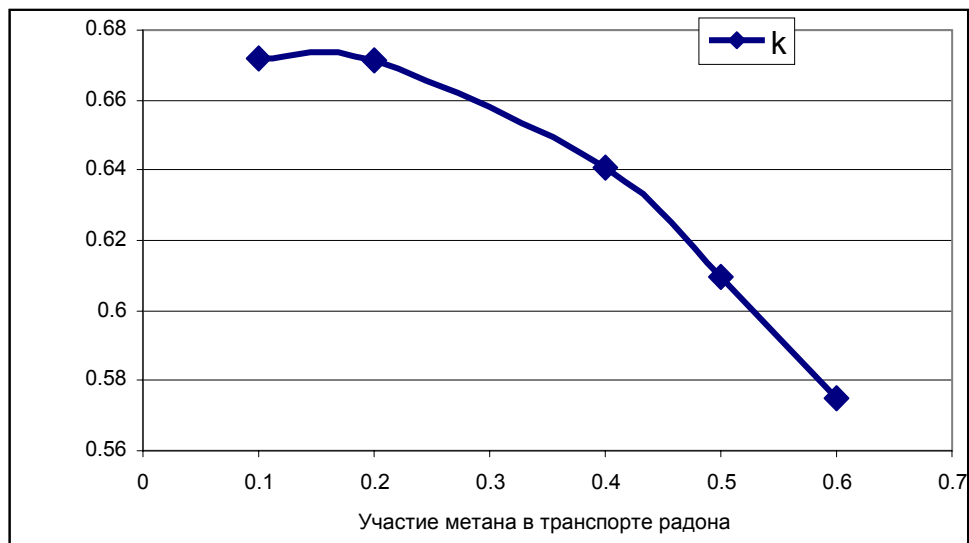


Рис. 7. Коэффициент корреляции измеренных и расчетных значений объемной активности радона атмосферы по 16 наблюдательным пикетам

Рабочая формула, описывающая объемную активность радона атмосферы, как функции измеренных значений радона в грунте, содержания водорода и метана, для вклада водорода в перенос радона 80%, метана – 20% представлена ниже

$$Rn(a-H,CH_4) = 35.091Rn \cdot H + 369.13Rn \cdot CH_4 + 0.2657. \quad (3)$$

Введенное выражение безразмерно; значения объемной активности радона, концентрации водорода и метана нормированы на 1 Бк/л и 1 см³/л.

Выносимый в приземную атмосферу пузырьрьковыми образованиями водорода и метана почвенный радон является единственным естественным ионизатором воздуха [8, 9]. Полярные проводимости воздуха и атмосферное электрическое поле – АЭП (по терминологии общей физики – вертикальный градиент потенциала) являются функцией произведения радона грунта на содержание водорода и метана.

В цикле ионизации образуется пара легких ионов, которые определяют полярные проводимости атмосферного воздуха. Легкие ионы рекомбинируют между собой, с тяжелыми ионами противоположного знака и залипают на нейтральные ядра конденсации с образованием тяжелых ионов. Тяжелые ионы, концентрация которых на порядок больше легких, определяют АЭП.

Земля несет на себе отрицательный заряд. Поэтому на высотах первых метров относительно дневной поверхности проявляется электродный эффект [10]: концентрация

отрицательного заряда нулевая, положительного – максимальная. При нормальной скорости ионизации 7 – 9 циклов в кубическом сантиметре в секунду поле находится на фоновом уровне; при дефиците ионизатора поле растет относительно фона – классический электродный эффект; при избытке оно падает вплоть до отрицательных значений – «реверсивный» электродный эффект.

Используя описанные связи концентрации эксхалации почвенного радона в атмосфере с элементами приземного атмосферного электричества, проиллюстрируем введенные модельные представления примерами. На рис. 8 даны результаты комплексных наблюдений АЭП, полярных проводимостей воздуха, водорода и радона грунта и атмосферы на профиле протяженностью 23.5 км. Помимо измеренных значений АЭП и полярной проводимости на графиках представлены их расчетные значения как функции произведения объемной активности радона грунта и содержания водорода грунта.

Коэффициенты корреляции измеренных и расчетных значений $k[E, E(Rn, H)] = 0.53$, $k[L, L(Rn, H)] = 0.71$. С учетом того, что газовые и электрические наблюдения выполнялись в разные дни, величины коэффициентов корреляции очень высоки.

На исследуемом профиле в транспорте радона принимает участие только глубинный субвертикальный поток метана и водорода. Вариации содержания водорода и метана грунта синфазны, и, соответственно, расчетные значения электрических характеристик достоверно представимы как функции только одного параметра – содержания водорода почвенного воздуха.

Обратный пример можно видеть на рис. 9, где представлены результаты повторных наблюдений АЭП, выполненных на одном и том же профиле с интервалом год в зоне куста нагнетательных скважин одного из старейших газохранилищ.

Причина спада поля в зоне пикетов 1–22 – избыточная эксхалация почвенного радона. В рассматриваемом случае газом-носителем ионизатора в приземную атмосферу является мелкий субвертикальный поток метана из пласта-коллектора.

Приведенный выше экспериментальный материал позволяет уточнить существующие представления о механизме переноса радона в приповерхностные слои грунта и приземную атмосферу. В качестве носителей радоновой эманации выступают пузырьковые образования только двух летучих газов – водорода и метана. При этом из-за малого молекулярного веса 80 – 90% радона переносится водородом.

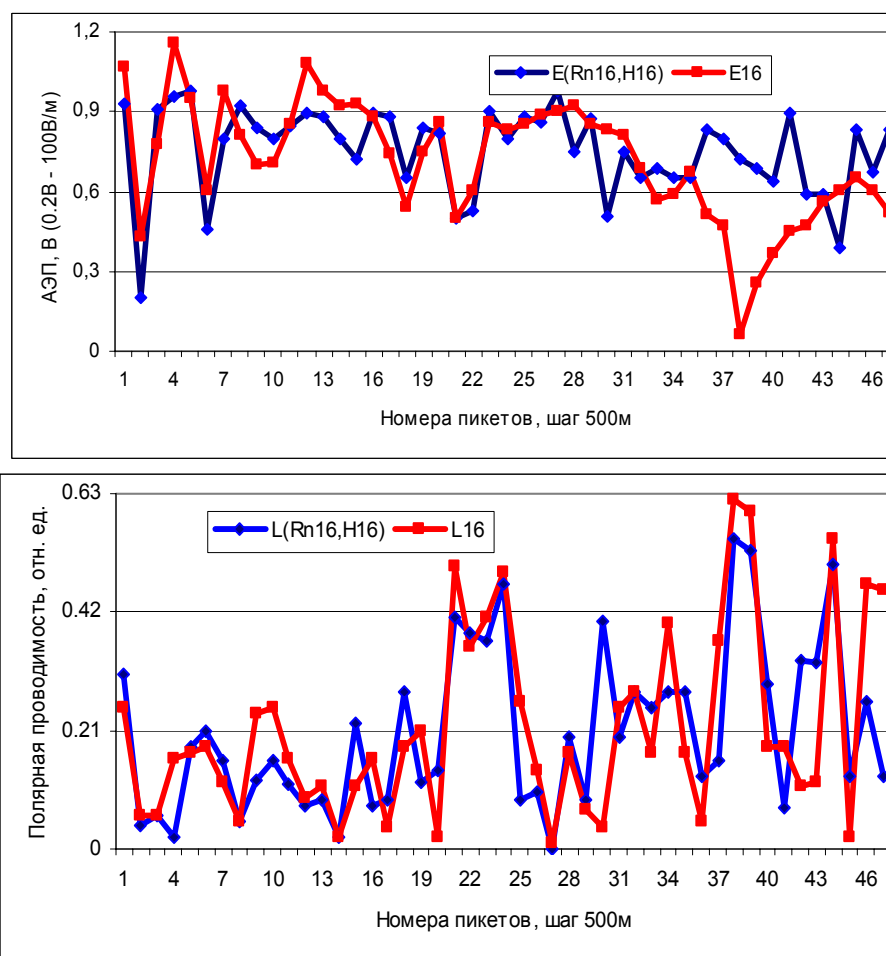


Рис. 8. Результаты наблюдений АЭП, полярных проводимостей воздуха, радона и водорода почвенного воздуха на профиле длиной 23.5 км

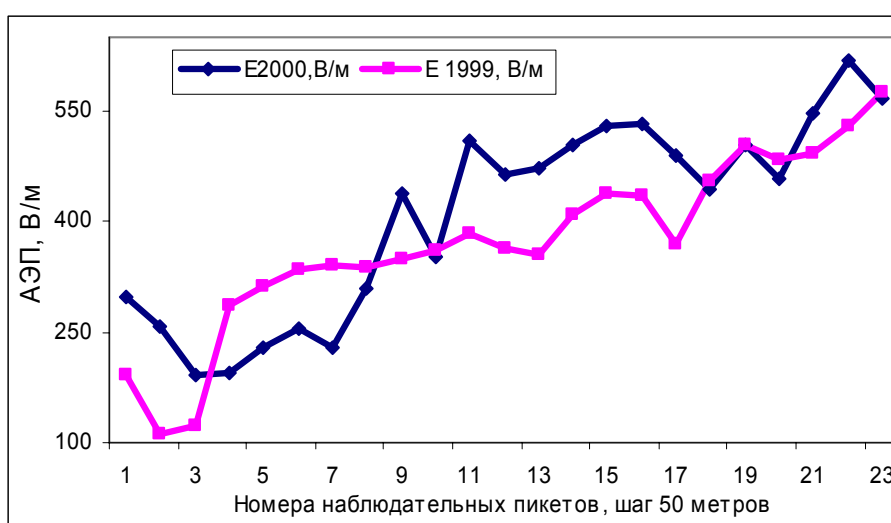


Рис. 9. Результаты профильных наблюдений АЭП на территории газохранилища

Вне углеводородных скоплений, которые могут выступить в роли дополнительного источника метана, в ходе естественной дегазации Земли содержания водорода и метана жестко связаны между собой. Эта связь позволяет говорить о единых глубинах их генерации.

ЛИТЕРАТУРА

1. Баранов В.И. Радиометрия. М.: Изд-во АН СССР, 1965. 343 с.
2. Сисигина Т.И. Измерения эксхалиции радона с поверхности горных пород // Вопросы ядерной метеорологии. М.: Госатомиздат, 1962. С. 104-111.
3. Сисигина Т.И. Эксхалиция радона с поверхности нескольких типов почв европейской части СССР и Казахстана // Радиоактивные изотопы в атмосфере и их использование в метеорологии. М.: Атомиздат, 1965. С. 40-48.
4. Войтов Г.И., Рудаков В.П., Шулейкин В.Н., Козлова Н.С., Баранова Л.В. Эманиационные и электрические эффекты в атмосфере подпочв над Калужской кольцевой структурой // Рос. журн. наук о Земле. 1999. Т.1, № 6. С. 503-510.
5. Козлова Н.С., Войтов Г.И., Гусев А.С., Шулейкин В.Н., Рудаков В.П. Эманиационные (водород-радон-тороновые) и электрические эффекты над сложно построенными тектоническими структурами (на примере Александровской зоны предразломных поднятий, Белоруссия) // Докл. РАН. 2000. Т. 370, № 1. С. 105-108.
6. Шулейкин В.Н., Резниченко А.П., Пущина Л.В. О связях метана, водорода и радона почвенного воздуха // Дегазация Земли: геодинамика, геофлюиды, нефть, газ и их парагенезы: материалы Всерос. конф. М.: ГЕОС, 2008. С. 544-547.
7. Шулейкин В.Н. Атмосферное электричество и физика Земли. М.: ООО «ФЭД», 2006. 159 с.
8. Тверской П.Н. Курс метеорологии. Л.: Гидрометиздат, 1951. 887 с.
9. Чалмерс Дж. Атмосферное электричество. Л.: Гидрометиздат, 1974. 247 с.
10. Куповых Г.В., Морозов В.Н., Шварц Я.М. Теория электродного эффекта в атмосфере. Таганрог: Изд-во ТРТУ, 1998. 122 с.