

УДК 631.416.8

В. Ф. ДРИЧКО, Б. Э. КРИСЮК, И. Г. ТРАВНИКОВА,  
Э. П. ЛИСАЧЕНКО, М. А. ДУБЕНСКАЯ

### ЧАСТОТНОЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЕ КОНЦЕНТРАЦИЙ РАДИЯ-226, ТОРИЯ-228 И КАЛИЯ-40 В РАЗЛИЧНЫХ ПОЧВАХ

Показано, что концентрации радия-226 и тория-228 в пахотных почвах трех типов (подзолы, черноземы, солонцы), исследованных в данной работе, распределяются по логарифмически-нормальному закону, а распределение концентраций калия-40 можно описать логарифмически-нормальным и нормальным законами. Для характеристики радиоактивности почв исследуемого района недостаточно указывать средние значения концентраций радионуклидов, а необходимо приводить величину среднего квадратичного отклонения и вид распределения.

Исследования естественной радиоактивности почв расширяют наши знания об их генезисе и имеют важное радиэкологическое значение, так как почва является основным источником поступления естественных радионуклидов в растения и далее — в организм животного и человека.

Уровень радиоактивности почв, создаваемый излучением естественных радионуклидов (ЕРН), определяется в первую очередь содержанием этих нуклидов в материнских породах [1, 2]. Кроме того, он зависит от ландшафта, климатических условий, типа почвы, процессов вертикальной и горизонтальной миграции ЕРН в почвах, их биологической аккумуляции и т. д. [2, 10, 11, 4, 6].

Дополнительным фактором, влияющим на радиоактивность почв, является сельскохозяйственная деятельность человека [3]. Например, в одном из штатов США наблюдалось удвоение концентрации урана в результате длительного внесения удобрений [12].

В связи с реальной возможностью искусственного изменения уровня радиоактивности почв появляется необходимость контроля за изменением концентраций радионуклидов в пахотных почвах. Для того чтобы наблюдать эти изменения, необходимо прежде всего знать «фоновые уровни» концентраций естественных радионуклидов в почвах. Многочисленными исследованиями определены средние значения и интервалы изменения концентраций радионуклидов в зависимости от состава материнских пород, типа почвы, ландшафта, растительного покрова, обработки почв и т. д. Параметров, определяющих уровень естественной радиоактивности почв, очень много, и количественные закономерности, выражающие этот уровень, разумно оценивать на наш взгляд в рамках вероятностного подхода. Так, «фоновые уровни» концентраций элементов можно считать известными, если определен закон, описывающий частотное распределение концентраций этого элемента.

При описании распределения концентраций элементов в геологических образцах используются обычно либо нормальный, либо логнормальный закон [7, 8]. В образцах почв распределение свинца

подчиняется нормальному закону [5], а распределение цезия-137 глобального происхождения — логнормальному закону [13].

Естественная радиоактивность почв практически целиком определяется изучением калия-40 и изотопов уранового и ториевого рядов, среди которых наиболее экологически значимыми являются изотопы радия и тория.

В настоящем сообщении рассматриваются результаты определения законов, которым подчиняется распределение концентраций радия-226, тория-228 и калия-40 в подзолистой, черноземной и солонцевой почвах.

Образцы пахотного слоя почвы отбирали радиологические группы областных и республиканских санэпидстанций РСФСР по общепринятой в агрохимии методике. Образцы отобраны в 25 областях: Подзолистые почвы представлены 180, а черноземы — 85 образцами. Кроме того, 38 образцов солонцов черноземных были отобраны в Казахстане и 230 образцов в совхозе «Бокситогорский» Ленинградской обл.

Концентрации радия-226, тория-228 и калия-40 определяли гамма-спектрометрическим методом с точностью до 15%. Почвенные образцы помещали в алюминиевые стаканы объемом 200 см<sup>3</sup> и герметизировали, чтобы исключить эманирование радона и торона из образцов. Количество радионуклидов измеряли после установления радиоактивного равновесия между радием-226 и радоном-222. Активности калия-40, радия-226 и тория-228 определяли по фотопикам с энергиями 1,46, 1,76 и 3,20 мэв соответственно. Чувствительность прибора ( $n \cdot 10^{-12}$  кюри/см<sup>3</sup>) при часовой экспозиции и 10%-ной погрешности равна 1,17 для калия-40, 0,31 для радия-226 и 0,22 для тория-228. Результаты измерений показали, что частотные распределения концентраций радионуклидов от асимметричного вида в нормальных координатах переходят в симметричный в логарифмических координатах. Из рисунка видно, что асимметрия распределения калия-40 значительно меньше, чем асимметрия распределений радия-226 и тория-228. Следовательно, частотные распределения калия-40, выраженные нормальным и логнормальным законами, различаются меньше, чем частотные распределения радия-226 и тория-228.

Хайльд [9] отмечает, что нормальный и логнормальный законы распределения неразличимы, если неразличимы логарифмическая и линейная функции, что справедливо в узком интервале значений аргумента.

Можно показать, что общее условие неразличимости имеет вид

$$\frac{K_i \sigma_c}{\bar{c}} \ll 1, \quad (1)$$

где  $\bar{c}$  — среднее арифметическое значение концентраций радионуклидов,  $\sigma_c$  — среднее квадратичное отклонение нормального распределения,  $K_i$  — коэффициент пропорциональности, показывающий, сколько  $\sigma_c$  содержится в отклонении  $i$ -й концентрации от  $\bar{c}$ . Разумно поставить условие, чтобы общая относительная погрешность за счет ошибок линеаризации и измерений ( $\delta_{\text{изм}}$ ) не превышала заданной величины  $\delta_0$ , т. е.

$$\sqrt{\delta_{\text{изм}}^2 + \left[ \frac{\delta(x)}{x} \right]^2} \ll \delta_0. \quad (2)$$

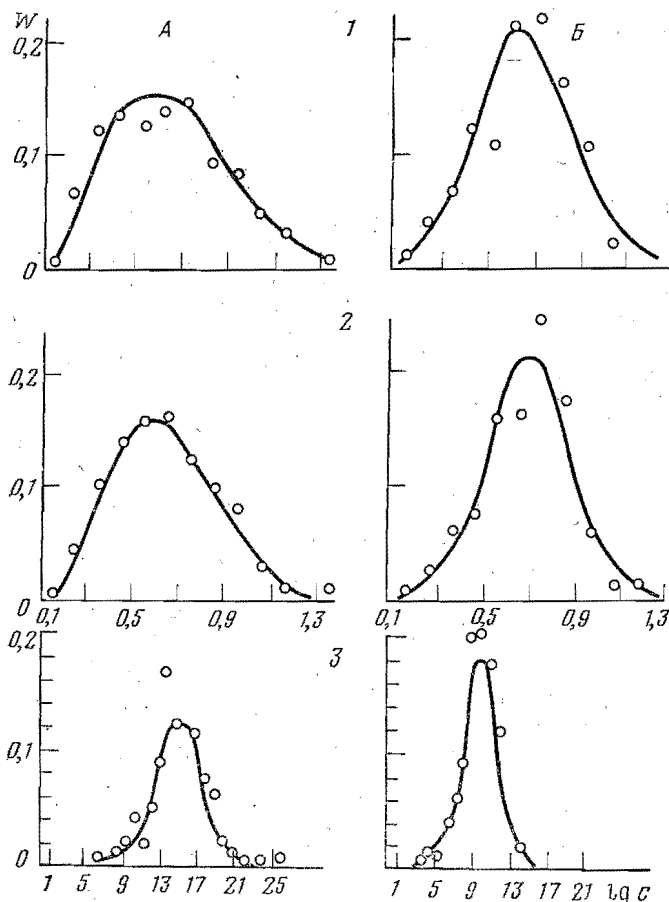
Ошибка определения концентраций радионуклидов в большинстве образцов не превышала 10% и лишь в отдельных случаях достигала 15%. Поэтому, приняв  $\delta_0 \leq 15\%$ , а  $\delta_{\text{изм}} = 10\%$ , из (2) получаем, что  $\frac{\delta(x)}{x} \ll 10\%$ . Как следует из расчетов, ошибка линеаризации меньше 10%

возможна при  $x \leq 0,25$ . Следовательно, при введении конкретных требований к ошибкам, критерий (1) переходит в более жесткое условие:

$$\frac{K\sigma_c}{c} \leq 0,25. \quad (3)$$

По критерию (3) оценена применимость нормального или логнормального закона к нашим результатам. Из табл. 1 видно, что если в формуле (3) принять  $K=3$ , то все распределения оказываются резко отличными от нормального, т. е. в интервале  $\bar{c}-3\sigma_c$ ,  $\bar{c}+3\sigma_c$  все полученные частотные распределения строго логнормальны.

Точность, с которой нормальный или логнормальный закон описывает данную совокупность случайных величин, можно оценить по критерию Пирсона ( $\chi^2$ ). Однако на расстоянии от среднего  $+3\sigma$  ошибка определения плотности вероятности, равная даже 100%, вносит в величину  $\chi^2$  очень малую добавку. Следовательно, разумно использовать неразличимость нормального и логнормального законов на отклонении



Содержание (пикокюри/г) тория-228 (1), радия-226 (2) и калия-40 (3)

А — в линейных координатах, Б — в полулогарифмических координатах

от среднего на величину  $\sigma$ , т. е. в критерии (3) принять  $K=1$ . Тогда из табл. 1 следует, что нормальное и логнормальное распределения неразличимы для калия-40 везде, кроме выборки солонцов, а для тория-228 и радия-226 — в выборке черноземов.

Разумовский [7] отмечает, что при описании частотных распределений большого класса физических величин, в том числе концентраций элементов, естественнее использовать логнормальный закон, так как нормальный закон не противоречит в силу своей симметричности существованию отрицательных значений концентраций. Поэтому во всех случаях мы предпочитаем пользоваться для описания частотных распределений концентраций радионуклидов в почвах логнормальным законом, параметрами которого являются  $\overline{\ln c}$  — средний логарифм концентраций (его антилогарифм равен  $\bar{c}$  — среднему геометрическому значению) и  $\sigma_{\ln}$  — среднее квадратичное отклонение логнормального распределения.

В табл. 2 приведены параметры частотных распределений логарифмов концентраций радия-226, тория-228 и калия-40 в пахотных поч-

Таблица 1

Величина параметра  $\frac{\sigma_c}{c}$

Радионуклид	Подзолы (РСФСР)	Подзолы (совхоз)	Черноземы	Солонцы
Торий-228	0,47	0,32	0,24	0,28
Радий-226	0,45	0,38	0,23	0,27
Калий-40	0,25	0,19	0,16	0,30

Таблица 2

Параметры распределений концентраций радионуклидов в почвах

Почва. Пункт	Параметр распределения	Значения параметра распределения радионуклида *		
		торий-228	радий-226	калий-40
Подзолы. Нечерноземная зона РСФСР	$\overline{\ln c}$	-0,546	0,516	2,671
	$\sigma_{\ln}$	0,451	0,431	0,251
	$c$	(0,37 ÷ 0,91) 0,58	(0,39 ÷ 0,92) 0,60	(11,2 ÷ 18,7) 14,5
Подзолы. Совхоз «Бокситогорский»	$\overline{\ln c}$	-0,516	-0,523	2,584
	$\sigma_{\ln}$	0,316	0,371	0,189
	$c$	(0,44 ÷ 0,82) 0,60	(0,41 ÷ 0,86) 0,59	(11,0 ÷ 16,1) 13,3
Черноземы	$\overline{\ln c}$	-0,191	-0,313	2,653
	$\sigma_{\ln}$	0,228	0,235	0,154
	$c$	(0,66 ÷ 1,05) 0,83	(0,58 ÷ 0,92) 0,73	(12,1 ÷ 16,6) 14,2
Солонцы	$\overline{\ln c}$	-0,198	-0,236	2,565
	$\sigma_{\ln}$	0,274	0,265	0,297
	$c$	(0,62 ÷ 0,08) 0,82	(0,61 ÷ 1,03) 0,79	(9,6 ÷ 17,7) 13,0

\* Концентрации  $\bar{c}$  даны в единицах *пкюри/г*.

вах. Так как 67% ( $K=1$ ) всех значений логарифмов концентраций попадает в интервал  $\overline{\ln c} \pm \sigma_{\ln}$ , то 67% всех значений концентраций оказывается в интервале

$$c\overline{\ln c} - \sigma_{\ln} \div c\overline{\ln c} + \sigma_{\ln},$$

численное значение которого приведено в табл. 2 (в скобках).

Ошибка определения  $\overline{I_{nc}}$  вычисляется по формуле

$$\sigma_{\overline{I_{nc}}} = \frac{\sigma_{I_{nc}}}{\sqrt{n}},$$

где  $n$  — число образцов. Она составляла  $\sim 0,1\%$  для калия и  $\sim 2\%$  для радия и тория.

Из табл. 2 видно, что по степени уменьшения концентрации тория и радия почвы располагаются в ряд: черноземы — солонцы > подзолы, который совпадает с рядом, приведенным ранее [4, 6]: сероземы > каштановые > черноземы > серые лесные > подзолистые > торфяные.

Отмеченное Ястребовым [11] закономерное увеличение радиоактивности почв с изменением климатических условий с севера на юг не противоречит полученному ряду, поскольку наше разделение образцов по трем типам почв практически эквивалентно разделению по климатическим зонам.

Далее оказалось, что при уровне значимости  $q=0,05$  концентрации тория и радия как в подзолах, так и в солонцах совпадают между собой, а в черноземах достоверно различаются.

По критерию Фишера оценена допустимость рассеяния средних квадратичных отклонений (СКО) имеющихся групп наблюдений. При  $q=0,05$  СКО распределений тория и радия в каждом из трех типов почв совпадают между собой. Достоверно различные значения  $\sigma_{I_{nc}}$  распределений радия и тория получены в выборке почв совхоза «Бокситогорский». Эти почвы характеризуются меньшим разнообразием состава почвообразующих пород, чем почвы, относящиеся ко всей выборке подзолистых почв РСФСР. Как видно из табл. 2, уменьшение величины обследуемой площади, равнозначное увеличению однородности выборки, приводит к сужению частотных распределений всех рассматриваемых радионуклидов при неизменности средних значений и выявляет различие между величинами распределений радия и тория. По-видимому, имеется некая минимальная величина обследуемой площади, уменьшение которой не приводит к уменьшению СКО. По величине  $\sigma_{I_{nc}}$ , вероятно, можно судить об однородности не только различающихся по площади выборок одного типа почв, но и сравнивать однородность равных выборок различных типов почв. Например, по степени увеличения  $\sigma_{I_{nc}}$  распределений, т. е. уменьшения однородности выборки, почвы можно расположить в ряд солонцы  $\simeq$  черноземы > подзолы.

В выборках подзолов и черноземов величина  $\sigma_{I_{nc}}$  распределений калия-40 меньше, чем  $\sigma_{I_{nc}}$  распределений радия-226 и тория-228, а в выборке солонцов СКО распределений всех радионуклидов примерно одинаковы. Поскольку солонцы черноземные образуются на черноземах, можно ожидать сходства параметров распределений радионуклидов в этих выборках. Действительно, средние значения концентраций соответствующих радионуклидов в черноземах и солонцах практически одинаковы. Но, по-видимому, из-за того, что образование солонцов сопровождается выносом на поверхность легкорастворимых солей грунтовыми водами, наблюдается незначительное уширение распределений концентрации тория и радия и резкое уширение распределения концентраций калия, так как соли калия растворяются в воде лучше солей радия и тория.

### Выводы

1. Концентрации радия-226 и тория-228 в почвах распределяются логнормально. Распределения концентраций калия-40 удовлетворяют как логнормальному, так и нормальному закону.

2. С уменьшением обследуемой площади при равном объеме выборки увеличивается однородность совокупности, на что указывает уменьшение величины среднего квадратичного отклонения.

3. По степени уменьшения средних концентраций радия-226 и тория-228 почвы располагаются в ряд: черноземы=солонцы черноземные>подзолы. По степени уменьшения среднеквадратичного отклонения распределения радия-226 и тория-228 почвы располагаются в ряд: подзолы>черноземы=солонцы. Совокупность почв черноземной зоны более однородна, чем совокупность подзолистых почв.

4. Для характеристики радиоактивности почв исследуемого района недостаточно указывать средние значения концентраций радионуклидов. Необходимо приводить величину среднего квадратичного отклонения и вид распределения.

#### Литература

1. Баранов В. И., Морозова Н. Г., Кунашева К. Г., Григорьев Г. И. Геохимия некоторых естественных радиоактивных элементов в почвах. Почвоведение, 1963, № 8.
2. Баранов В. И., Морозова Н. Г. Поведение естественных радионуклидов в почвах. В кн.: Радиоэкология. Атомиздат, 1971.
3. Дричко В. Ф., Крисюк Э. М., Лисаченко Э. П., Поникарова Г. М., Попов Д. К., Шамов В. П. Пути формирования доз облучения современного человека в связи с его хозяйственной деятельностью. Радиационная гигиена. Л., 1975, вып. 5.
4. Коган Р. М., Назаров И. М., Фридман Ш. Д. Основы гамма-спектрометрии природных сред. Атомиздат, 1976.
5. Пейве Я. В., Холлендорф А. Ф. Краткий обзор результатов исследований по проблеме «Микроэлементы в растениеводстве и животноводстве» за 1973 г. В кн.: Микроэлементы в СССР. Рига, 1974.
6. Природные источники излучения. НК ООН ДАР. 1975, А(АС.82). 297.
7. Разумовский Н. К. Логарифмически-нормальный закон распределения вещества и его свойства. Зап. ЛГИ, т. 20, 1948.
8. Родионов Д. А. Функции распределения содержания элементов и минералов в изверженных горных породах. «Наука», 1964.
9. Хайльд А. Математическая статистика с техническими приложениями. М., 1956.
10. Ястребов М. Т. Естественная радиоактивность некоторых почв, сформировавшихся в различных ландшафтах дерново-подзолистой зоны. Изд. АН СССР. Сер. биол., 1971, № 3.
11. Ястребов М. Т. Естественная радиоактивность зональных почв Европейской части СССР. Докл. АН СССР, 1956, т. 119, № 3.
12. Menzel R. G. Uranian radium and thorium content in phosphate Rocks and their possible radiation hazard. J. Agric. and Food Chem., 1968, v. 16, № 2.
13. Pinder J. F., Smith M. H. Frequency distributions of radiocesium on the AEC Savannah river plant. Radiat. Res., 1974, v. 59, № 1.

Ленинградский НИИ  
радиационной гигиены

Дата поступления  
18.III.1977 г.

V. F. DRICHKO, B. E. KRISYUK, I. G. TRAVNIKOVA,  
E. P. LISACHENKO, M. A. DUBENSKAYA

#### FREQUENCY DISTRIBUTION OF RADIUM-226, THORIUM-228, AND POTASSIUM-40 CONCENTRATIONS IN PLOUGHED SOILS

It has been found that the concentration of radium-226 and thorium-228 in ploughed soils of three types (podzols, chernozems and solonchaks) are distributed according to the logarithmic-normal law and the distribution of potassium-40 concentration may be described both by logarithmic-normal and normal laws.