

## МОДЕЛЬ ДЛЯ ПРОГНОЗИРОВАНИЯ ДОЗЫ ВНУТРЕННЕГО ОБЛУЧЕНИЯ НАСЕЛЕНИЯ ПРИ ПОЧВЕННОМ ПУТИ ВКЛЮЧЕНИЯ ДОЛГОЖИВУЩИХ РАДИОНУКЛИДОВ В ПИЩЕВЫЕ ЦЕПИ

**Б. С. Пристер, В. Д. Виноградская**

*Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, Киев*

На основании современных представлений о механизмах сорбции ионов цезия и стронция почвенным поглощающим комплексом построена кинетическая модель миграции радионуклидов из почвы в растения. Найдена связь параметров модели с агрохимическими свойствами почвы, представленными комплексной оценкой свойств почвы  $S_{ef}$ . Приведен пример применения модели для прогнозирования дозы внутреннего облучения населения за счет потребления молока, производимого при выпасе коров на пастбище, при почвенном пути включения долгоживущих радионуклидов в пищевые цепи.

### Введение

Внутреннее облучение от поступления радионуклидов с рационом питания является значимым, а в ряде ситуаций основным фактором радиационной опасности для населения в случае радиационной аварии с поступлением активности в окружающую среду [1]. Вклад внутреннего облучения в полную дозу, как видно из табл. 1, особенно велик на низкоплодородных песчаных и торфяных почвах. Следует отметить, что в острый период после аварии величина дозы от внешнего облучения более управляемая по сравнению с дозой внутреннего облучения, так как может быть снижена путем проведения достаточно простых контрмер – укрытие в убежищах во время прохождения облака, сокращение времени пребывания на открытом воздухе и т.п.

*Таблица 1. Средние эффективные дозы суммарного облучения населения районов с плотностью загрязнения  $\sigma = 25$  кБк·м<sup>-2</sup> (по данным общегосударственной паспортизации [2])*

| Область, тип почвы  | Доза          | 1986 г.      |                 | 1987 - 1990 гг. |                 | 1991 - 2000 гг. |                 | 1987 - 2000 гг. |                 |
|---------------------|---------------|--------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
|                     |               | внеш-<br>нее | внутрен-<br>нее | внеш-<br>нее    | внутрен-<br>нее | внеш-<br>нее    | внутрен-<br>нее | внеш-<br>нее    | внутрен-<br>нее |
| Винницкая, чернозем | % от $\Sigma$ | 31           | 69              | 94              | 6               | 92              | 8               | 52              | 48              |
| Волынская, торфяная |               | 31           | 69              | 10              | 90              | 8               | 92              | 12              | 88              |
| Винницкая, чернозем | мЗв           | 1,8          |                 | 0,55            |                 | 0,45            |                 | 2,8             |                 |
| Волынская, торфяная |               | 2,1          |                 | 5,0             |                 | 4,9             |                 | 12              |                 |

Основная часть дозы в остром периоде связана с внекорневым (аэральным) загрязнением растений, скорость очищения растений от которого достаточно высока - периоды полуочищения составляют 4 - 6 сут. Эффективный период полуочищения для <sup>131</sup>I составляет 1,1 сут, примерно с такой же скоростью радиоактивный йод выводится из организма коров с молоком. Таким образом, предотвратить формирование дозы в остром периоде можно запретительными контрмерами – прекращение выпаса коров на пастбище, запрет на потребление свежего молока и овощей в первые три дня после радиоактивных выпадений и др. Значительная часть дозы – до 80 % и более на торфяных почвах – формируется в отдаленном периоде. Контрмеры, направленные на уменьшение перехода радионуклидов из почвы в растения менее эффективны и требуют значительных ресурсных затрат. Понятно, что прогнозирование накопления долгоживущих радионуклидов <sup>90</sup>Sr и <sup>137</sup>Cs в растениях является неотъемлемым элементом системы обеспечения радиационной безопасности населения.

### Материал и методы исследований

Для разработки модели поведения  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в системе «почва – растение» использовали данные радиационного мониторинга, проводимого начиная с 1987 г. на наиболее загрязненных после аварии на ЧАЭС территориях Украины. Схема мониторинга охватывала все основные типы почв зоны загрязнения, которые представительны практически для всей европейской части бывшего СССР (черноземы, серые лесные, дерново-подзолистые и торфяные), и сельскохозяйственные культуры, входящие в состав рациона человека и животных – природные и сеяные травы, 14 пропашных и полевых культур [3].

Важной особенностью было соблюдение пространственной сопряженности при отборе проб почвы и растений, единой методологии, методов отбора и анализа проб на протяжении всего периода мониторинга, что обеспечило сопоставимость и равную точность данных на протяжении всего периода наблюдений.

В настоящее время база данных (БД) насчитывает более 3500 пар значений «почва – растение» для  $^{137}\text{Cs}$  и более 500 пар для  $^{90}\text{Sr}$ . Распределение количества пар «почва – растение» в базе данных по видам культур и типам почв и годам исследований достаточно равномерное, что обеспечивает более высокую точность определения параметров модели. В пределах каждой классификационной группы свойства почвы (рН, гумус, сумма поглощенных оснований и др.) изменяются в широком диапазоне (табл. 2), что требует более детальной группировки их с целью выявления влияния на биологическую доступность для усвоения растениями.

Таблица 2. Интервал значений агрохимических характеристик основных типов почв Украинского Полесья в зоне радиационного мониторинга

| Тип почвы                             | рН        | Гумус, %    | Сумма поглощенных оснований, мг-экв./100г почвы |
|---------------------------------------|-----------|-------------|---|
| Торфяно-болотная                      | 3,8 - 6,6 | -           | 2,3 - 19  |
| Дерново-подзолистая песчаная          | 4,4 - 6,0 | 0,40 - 0,95 | 6,1 - 18  |
| Дерново-подзолистая супесчаная        | 4,4 - 6,0 | 0,48 - 0,97 | 6,0 - 17  |
| Дерново-подзолистая глинисто-песчаная | 5,4 - 7,2 | 0,85 - 3,2  | 5,6 - 19  |
| Дерново-подзолистая глеевая           | 5,1 - 6,5 | 0,96 - 1,8  | 16 - 20   |
| Чернозем типичный                     | 5,4 - 7,5 | 1,5 - 3,9   | 10 - 33   |

Для статистической обработки и анализа данных был разработан специальный алгоритм [4]. Оценивали соответствие агрохимических свойств почвы ее классификационному названию, достоверность абсолютных значений удельной активности почвы и растений. После формирования выборок по критериям «тип почвы», «вид растения», «время после поступления радионуклида в почву» проверяли нормальность распределения внутри каждой выборки, выбраковывали аномальные значения по критерию Стьюдента, проверяли линейность зависимости между удельной активностью растения и почвы. При анализе функциональных зависимостей между исследованными параметрами и коэффициентом перехода радионуклида из почвы в растения ТФ использовали линейный и нелинейный методы наименьших квадратов.

### Результаты и обсуждение

Обработка около 900 выборок показала, что значение ТФ радионуклидов не зависит от плотности загрязнения почвы для всех видов культур на всех типах почвы не зависимо от времени после поступления радионуклидов  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в почву.

Динамика доступности радионуклидов для усвоения растениями из почвы по результатам обработки 57 выборок может быть аппроксимирована экспоненциальной функцией – однокомпонентной для  $^{90}\text{Sr}$  и двухкомпонентной для  $^{137}\text{Cs}$ :

$$TF(t) = TF_0^{q+s} \cdot \left[ a_0^q \cdot \exp\left(-0.693 \cdot \frac{t}{T_e^q}\right) + a_0^s \cdot \exp\left(-0.693 \cdot \frac{t}{T_e^s}\right) \right], \quad (1)$$

где –  $TF_0$  – экстраполированный на 1986 р. коэффициент перехода;  $a_0^q, a_0^s = 1 - a_0^q$  – вклады начального содержания нуклида в почве с периодами полууменьшения  $T_e^q$  и  $T_e^s$  (обменная и фиксированная формы).

Периоды полууменьшения TF на одной и той же почве в пределах точности их определения совпадают для всех исследованных культур (табл. 3). Это показывает, что уменьшение доступности ионов радионуклидов для усвоения растениями определяется практически только процессами трансформации форм связи ионов с почвенным поглощающим комплексом (ППК).

Таблица 3. Средние значения периодов полууменьшения TF обменной  $T_e^q$  и фиксированной  $T_e^s$  форм  $^{137}\text{Cs}$ , годы

| Группа культур            | Тип почвы        |         |                     |         |
|---------------------------|------------------|---------|---------------------|---------|
|                           | Торфяно-болотная |         | Дерново-подзолистая |         |
|                           | $T_e^q$          | $T_e^s$ | $T_e^q$             | $T_e^s$ |
| Сено естественных трав    | 0,87             | 5,7     | 2,1                 | 28      |
| Сено сеяных злаковых трав | 0,92             | 6,6     | 2,0                 | 11      |
| Зеленые корма             | 0,97             | 7,1     | 1,8                 | 20      |
| Клубни, корнеплоды        | 0,88             | 6,4     | 2,2                 | 21      |
| Зерновые                  | 0,88             | 6,9     | 1,8                 | 39      |
| Среднее по всем культурам | 0,89             | 6,6     | 1,8                 | 20      |

Основным процессом иммобилизации  $^{90}\text{Sr}$  в почве являются изоморфное замещение кальция в минералах и образование нерастворимых соединений (фосфатов, сульфатов) и слабодиссоциирующих комплексов с органическим веществом. Этот процесс назван «старением» [5].

Двухкомпонентный характер экспоненциальной функции для  $^{137}\text{Cs}$  может быть объяснен на основе современных представлений о механизмах сорбции ионов глинистыми минералами почв [6], схематично показанных на рис. 1.

Сильногидратированные ионы  $\text{Cs}^+$  обменно сорбируются на заряженных поверхностях почвенных коллоидов (RES) и в устьевых зонах слоистых минералов (FES). При этом гидратная оболочка ионов теряется и маленький ионный радиус позволяет иону цезия проникнуть в межпакетные пространства, где он закрепляется практически необменно (HAS). Аналогично взаимодействует с почвой и ион  $\text{Sr}^{2+}$ , однако из-за большого радиуса он не в состоянии проникнуть в межпакетные пространства. Схематически процесс поглощения ионов  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  ППК представлен на рис. 2.

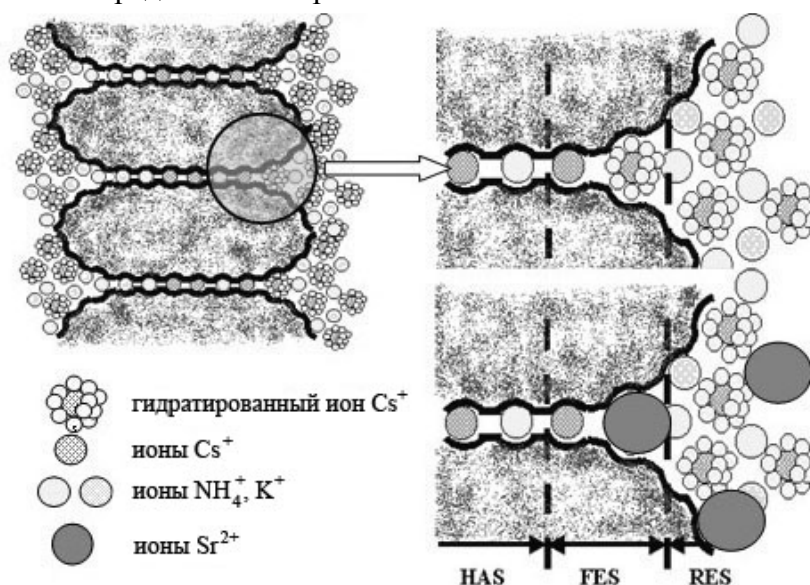


Рис. 1. Современное представление процесса взаимодействия ионов радионуклидов с почвенным поглощающим комплексом.

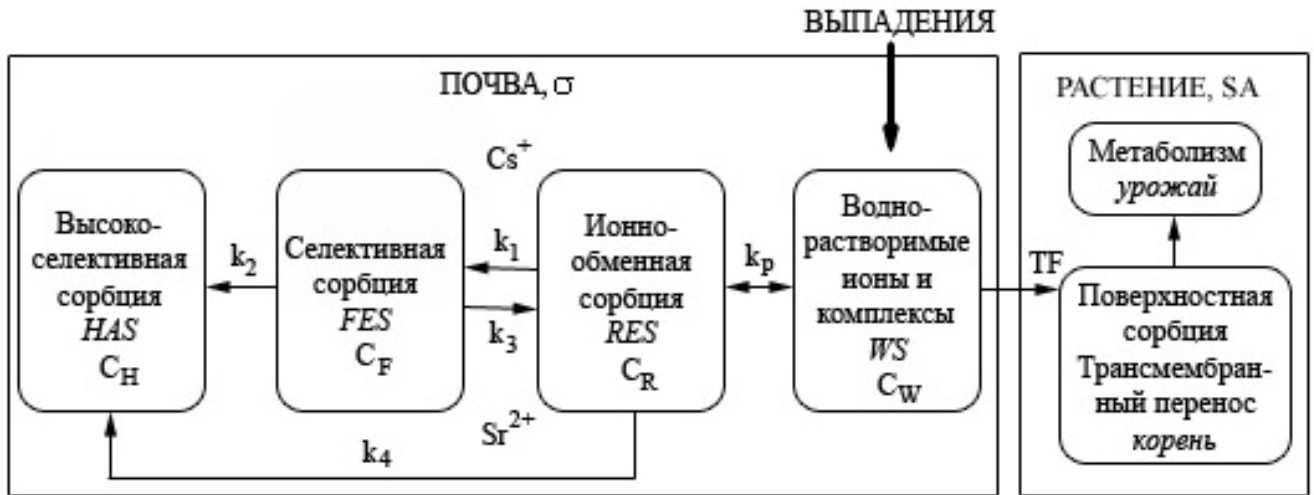


Рис. 2. Схема процесса поведения ионов радионуклидов  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в системе «почва – растение».

В соответствии с приведенной схемой динамика TF может быть описана кинетическими уравнениями:

$$^{137}\text{Cs:} \quad TF(t) = TF(0) \cdot \left\{ \frac{k_1 - (2 \cdot k_2 + \frac{k_3}{2})}{k_1 - k_2} \cdot e^{-(k_1 + \frac{k_3}{2}) \cdot t} + \frac{k_2 + \frac{k_3}{2}}{k_1 - k_2} \cdot e^{-(k_2 + \frac{k_3}{2}) \cdot t} \right\}, \quad (2)$$

$$^{90}\text{Sr:} \quad TF(t) = TF(0) \cdot e^{-k_4 \cdot t}, \quad (3)$$

где  $k_1, k_2, k_3,$  и  $k_4$  скорости сорбции и десорбции радионуклидов на разных местах сорбции ППК.

Величины экстраполированных на нулевой момент времени коэффициентов перехода радиоцезия и радиостронция, которые характеризуют биологические особенности растений, значительно отличаются для разных почвенных групп (табл. 4).

Таблица 4. Значения  $TF(t = 0)$   $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$ , экстраполированные на момент выпадений,  $\text{кг}^{-1} \cdot \text{м}^2$

| Культура  | Тип почвы        |                     |                   |                  |                   |                  |                   |
|---|------------------|---------------------|-------------------|------------------|-------------------|------------------|-------------------|
|   | торфяно-болотная | дерново-подзолистая |                   | серая лесная     |                   | чернозем         |                   |
|   |                  | $^{137}\text{Cs}$   | $^{137}\text{Cs}$ | $^{90}\text{Sr}$ | $^{137}\text{Cs}$ | $^{90}\text{Sr}$ | $^{137}\text{Cs}$ |
| Природные травы                                     | 223              | 29                  | -                 | 10               | -                 | -                | -                 |
| Сеяные злаковые травы                               | 95               | 5,8                 | -                 | 4,9              | -                 | 3,3              | -                 |
| Зеленые корма<br><i>клевер, люцерна, кукуруза</i>   | 39               | 2,5                 | -                 | 1,9              | -                 | 1,6              | -                 |
| Овощи<br><i>капуста, томаты, огурец</i>             | -                | 2,9                 | 0,52              | 2,0              | 0,14              | 1,2              | 0,033             |
| Клубни, корнеплоды<br><i>свекла, картофель, лук</i> | 10               | 1,6                 | 0,79              | 0,63             | 0,23              | 0,60             | 0,10              |
| Зерновые  | 7,3              | 0,90                | 3,5               | 0,66             | 0,72              | 0,36             | 0,32              |
| Кратность различий                                  | 31               | 32                  | 6,7               | 15               | 5,1               | 10               | 10                |

Этот факт позволяет управлять поступлением радионуклидов в организм человека и сельскохозяйственных животных путем подбора соответствующего состава рациона. Анализ

значений кинетических параметров модели показывает, что снижение TF во времени определяется процессами трансформации радионуклидов в почвах и практически не зависят от биологических особенностей растений (табл. 5).

Таблица 5. Значения параметров кинетической модели перехода <sup>137</sup>Cs из почвы в сельскохозяйственные культуры на дерново-подзолистой почве (δ ≤ 5 %)

| Группа культур                                      | Скорости процесса сорбции, год <sup>-1</sup> |                |                |
|---|--|----------------|----------------|
|   | k <sub>1</sub>                               | k <sub>3</sub> | k <sub>2</sub> |
| Естественные травы                                  | 0,35   | 0,032          | 0,0031         |
| Сеяные злаковые травы                               | 0,34   | 0,036          | 0,0025         |
| Кормовые травы<br><i>клевер, люцерна, кукуруза</i>  | 0,33   | 0,041          | 0,0022         |
| Овощи<br><i>капуста, томаты, огурец</i>             | 0,35   | 0,037          | 0,0023         |
| Клубни, корнеплоды<br><i>свекла, картофель, лук</i> | 0,33   | 0,037          | 0,0029         |
| Зерновые  | 0,34   | 0,0039         | 0,0028         |
| Среднее для всех культур                            | 0,34   | 0,038          | 0,0026         |
| Кратность различий                                  | 1,2  | 1,5            | 1,7            |

Это позволяет вычислять средние значения параметров по всем культурам как характеристику каждого типа почвы (табл. 6).

Таблица 6. Средние по всем культурам значения параметров кинетической модели перехода <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr из почвы в сельскохозяйственные культуры (δ ≤ 5 %)

| Тип почвы           | <sup>137</sup> Cs |                |                | <sup>90</sup> Sr |
|---------------------|-------------------|----------------|----------------|------------------|
|                     | k <sub>1</sub>    | k <sub>2</sub> | k <sub>3</sub> | k <sub>4</sub>   |
| Торфяно-болотная    | 0,76              | 0,082          | 0,0085         | -                |
| Дерново-подзолистая | 0,34              | 0,038          | 0,0026         | 0,074            |
| Серая лесная        | 0,38              | 0,026          | 0,0017         | 0,081            |
| Чернозем            | 0,48              | 0,013          | 0,0011         | 0,11             |

Связь параметров кинетической модели с комплексной оценкой свойств минеральных почв S<sub>ef</sub> может быть аппроксимирована уравнением убывающей степенной функции:

$$TF_{ij}(0) = TF_{0j}(0) \cdot e^{-\lambda_j \cdot S_{ef}}, \quad (4)$$

$$k_1 = a \cdot S_{ef} + b, \quad (5)$$

$$k_2 = c \cdot (1 + S_{ef}), \quad (6)$$

$$k_3 = c \cdot (1 - S_{ef}). \quad (7)$$

Тогда прогноз изменения удельной активности <sup>137</sup>Cs во времени может быть сделан по уравнению

$$SA_{ij} = \sigma(0) \cdot e^{-\frac{0.693}{T_{1/2}} \cdot t} \cdot TF_{0j}(0) \cdot e^{-\lambda_j \cdot S_{ef}} \cdot \left\{ \left[ 1 + 0.03 \cdot \ln(S_{ef,i}) \right] \cdot e^{-0.31 \cdot (1 + S_{ef,i}) \cdot t} + \left[ -0.03 \cdot \ln(S_{ef,i}) \right] \cdot e^{-0.055 \cdot (1 - S_{ef,i}) \cdot t} \right\}. \quad (8)$$

Параметр λ представляет собой показатель степенной функции в уравнении (8) и, предположительно, характеризует изменение способности растений вытеснять ионы радионуклидов из обменнопоглощенного почвой состояния (RES, FES) при изменении свойств почвы в ряду от кислых слабо гумусированных и легких по гранулометрическому составу до нейтральных, высоко гумусированных и тяжелых черноземов.

В табл. 7 приведены значения параметров кинетической модели, которая позволяет прогнозировать накопление радионуклидов растениями на минеральных почвах с использованием комплексной оценки свойств почвы.

Таблица 7. Параметры модели поведения радионуклидов в системе «почва - растение» для минеральных почв с использованием  $S_{ef}$

| Культура              | $^{137}\text{Cs}$                        |           | $^{90}\text{Sr}$                         |           |
|-----------------------|--|-----------|--|-----------|
|                       | $TF_0(0), \text{кг}^{-1}\cdot\text{м}^2$ | $\lambda$ | $TF_0(0), \text{кг}^{-1}\cdot\text{м}^2$ | $\lambda$ |
| Природные травы       | 55                                       | 6,1       |  |           |
| Сеяные злаковые травы | 7,2                                      | 2,2       |  |           |
| Клевер                | 9,2                                      | 5,6       |  |           |
| Люцерна               | 6,2                                      | 3,3       |  |           |
| Кукуруза              | 4,2                                      | 4,2       |  |           |
| Капуста               | 4,5                                      | 3,0       | 0,93                                     | 8,7       |
| Томаты                | 4,0                                      | 4,9       | 0,96                                     | 9,1       |
| Огурец                | 2,7                                      | 1,9       |  |           |
| Лук                   | 2,9                                      | 1,9       |  |           |
| Свекла                | 2,2                                      | 2,6       | 1,7                                      | 6,6       |
| Картофель             | 2,0                                      | 5,3       | 0,74                                     | 6,6       |
| Озимая пшеница        | 1,7                                      | 6,8       | 5,6                                      | 6,1       |
| Ячмень                | 1,0                                      | 1,6       |  |           |
| Рожь                  | 0,91                                     | 2,2       |  |           |
| Кратность различий    | 61                                       | 4,3       |  |           |

Серьезные трудности возникают при прогнозировании накопления радионуклидов растениями с использованием в качестве аргумента  $S_{ef}$  на торфяных почвах. Это связано с неопределенностью в оценке содержания гумуса в почвах этого типа, так как органическое вещество в них разнородно по составу и содержание его очень высокое. Этот вопрос требует детальной проработки в дальнейших исследованиях.

На рис. 3 приведены трехмерные диаграммы зависимости  $TF$   $^{137}\text{Cs}$  (а) и  $^{90}\text{Sr}$  (б) от времени пребывания радионуклидов в почве и комплексной оценки ее свойств. Значения  $TF$  расположены на плоскости, огибающей значения функции  $TF = f(t, S_{ef})$ . Легко заметить, что абсолютные значения  $TF$  быстро уменьшаются на протяжении первых 3 - 6 лет после загрязнения почвы и очень сильно убывают при переходе от низко плодородных дерново-подзолистых почв до черноземов.

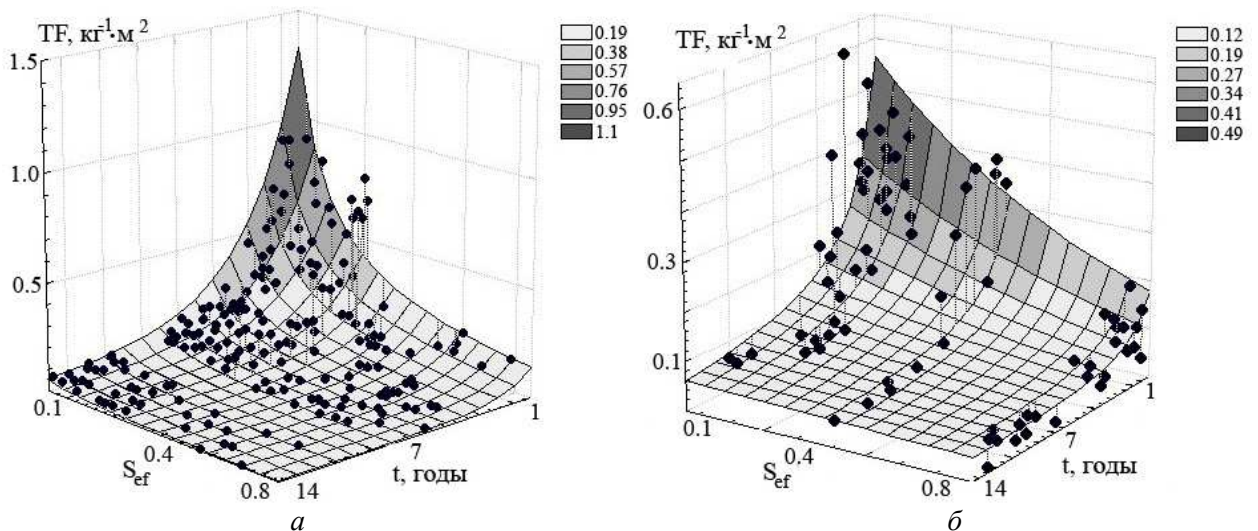


Рис. 3. Зависимость  $TF$   $^{137}\text{Cs}$  и (а)  $^{90}\text{Sr}$  (б) в клубни картофеля от свойств почвы и времени после поступления в нее радионуклида.

Составлена программа расчета полей концентрации долгоживущих радионуклидов в растениях на базе ГИС-карты почв, отображающей комплексную оценку их свойств, вычисленную по разработанной нами методике [7]. На рис. 4 приведен пример применения модели для прогнозирования дозы внутреннего облучения населения за счет потребления молока, производимого при выпасе коров на пастбище, при почвенном пути включения долгоживущих радионуклидов в пищевые цепи. Рассмотрен случай с равномерной плотностью загрязнения территории  $^{137}\text{Cs}$   $1 \text{ Ки}\cdot\text{км}^{-2}$ . Карта отображает интервал вероятных значений поглощенных доз от потребления молока, обусловленный вариабельностью агрохимических свойств почвы.

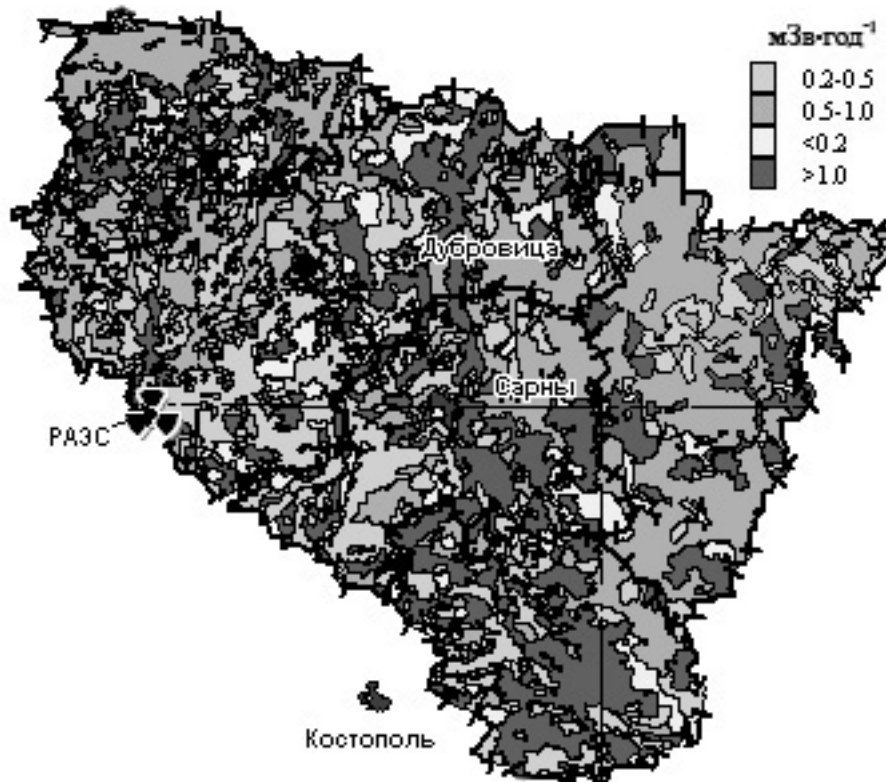


Рис. 4. Распределение дозы внутреннего облучения населения Дубровицкого и Сарненского районов Ровенской области за счет потребления молока (рассчитано с использованием модели; коровы на пастбище; плотность загрязнения территории  $^{137}\text{Cs}$   $1 \text{ Ки}\cdot\text{км}^{-2}$ ).

Модель дает возможность обоснованно выбирать уголья под пастбища для молочного скота и размещать культуры на почвах с разным уровнем загрязнения и агрохимическими свойствами с целью уменьшения концентрации радионуклидов в продукции растениеводства до заданных пределов.

Верификация модели показала, что точность прогноза составляет от 20 % до двух раз. Разработанная модель позволяет прогнозировать не только абсолютные значения ТФ и удельную активность радионуклидов в урожае растений, но и ожидаемую эффективность агрохимических контрмер по изменению величины комплексной оценки свойств почвы под влиянием контрмеры.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Пристер Б.С., Алексахин Р.М., Бебешко В.Г. и др. Чернобыльская катастрофа: эффективность мер защиты населения, опыт международного сотрудничества // Под ред. Б. С. Пристера. - К.: Энергетика и электрификация, 2007. – 100 с.
2. Загальнодозиметрична паспортизація населених пунктів України, які зазнали радіоактивного забруднення після Чорнобильської аварії. – К.: МОЗ України., 1997. - Збірка 6. - 103 с.

3. *Методика* відбору ґрунтових і рослинних проб для визначення в них вмісту радіоактивних речовин. - К.: МінАПК, УкрНДІСГР, 1987. - 48 с.
4. *Ильязов Р.Г., Шакиров Ф.Х., Пристер Б.С. и др.* Адаптация агроэкоферы к условиям техногенеза. – Казань: Академия наук РТ, 2006. – С. 78 - 125.
5. *Павлоцкая Ф.И.* Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах. - М.: Атомиздат, 1974.
6. *Коноплев А.В., Коноплева И.В.* Параметризация перехода  $^{137}\text{Cs}$  из почвы в растения на основе ключевых почвенных характеристик // Радиационная биология. Радиэкология. – 1999. - Т. 39, № 4. - С. 455 - 461.
7. *Prister B.S., Baryakhtar V.G., Perepelyatnikova L.V. et al.* Experimental Substantiation and Parameterization of the Model Describing  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  Behavior in a Soil-Plant System // Environmental Science and Pollution Research. - 2003, Special Issue No. 1. - P. 126 - 136.

Поступила в редакцию 20.01.09