

УДК 504.054:631.4:633

В. Д. Виноградська

к. с.-г. н.

Інститут проблем безпеки АЕС НАН України

**ПРОГНОЗУВАННЯ ЗАБРУДНЕННЯ СІЛЬСЬКОГОСПОДАРСЬКОЇ ПРОДУКЦІЇ
¹³⁷CS З ВИКОРИСТАННЯМ МОДЕЛІ ПОВЕДІНКИ РАДІОНУКЛІДУ
В СИСТЕМІ «ГРУНТ–РОСЛИНА»**

*Обґрунтовано і параметризовано кінетичну модель поведінки ¹³⁷Cs в системі «грунт–рослина» для прогнозування забруднення сільськогосподарської продукції. Відзначено, що основними факторами, що впливають на забруднення ¹³⁷Cs сільськогосподарських культур, є тип ґрунту, вид культури та час після радіоактивних випадів. Встановлено кількісну залежність між кінетичними параметрами моделі і фундаментальними агрохімічними властивостями ґрунту, вираженими через комплексну оцінку властивостей ґрунту *Sef*. Запропоновано для забезпечення високої точності прогнозування забруднення рослинницької продукції використовувати представлену модель.*

Ключові слова: прогнозування, модель, ¹³⁷Cs, ґрунт, сільськогосподарські культури.

Постановка проблеми

Після аварії на Чорнобильській АЕС проблема перевищення державних нормативів за вмістом радіонуклідів РН у сільськогосподарській продукції особливо гостро постала для значних територій 5 областей України, розміщених у зоні Українського Полісся. У ході планування захисних заходів, з метою отримання екологічно чистої продукції на радіоактивно забруднених територіях, часто не дотримувалися принципів пріоритетності та оптимізації, внаслідок чого використовувалися невиправдано великі обсяги матеріальних й трудових ресурсів [8]. Попередити такі проблеми можна при проведенні превентивної оцінки забруднення РН сільськогосподарської продукції за допомогою моделей їх міграції в навколишньому середовищі і харчових ланцюгах. Вагоме значення для прогнозування має вибір моделі. На забрудненій внаслідок аварії на ЧАЕС території Українського Полісся градієнт просторового розподілу дози опромінення населення [2] сформувався практично протилежно до градієнту рівнів забруднення ґрунту радіонуклідами і відображав розповсюдженість критичних типів ґрунту та ландшафтів. Це свідчить про те, що радіаційна ситуація формується не тільки за рахунок щільності забруднення території, а і за рахунок просторового розподілу екологічних особливостей. Встановлено також, що з часом після аварії кількість населених пунктів, де доза опромінення населення перевищувала норматив, зменшувалася [8]. Це вказує на значний вклад процесів перетворення форм радіонуклідів у ґрунті у зменшення швидкості міграції РН у системі «грунт–рослина» і далі за харчовими ланцюгами. Тому, для прогнозування забруднення РН сільськогосподарської продукції необхідно використовувати моделі, що враховують час після радіоактивних випадів та екологічні особливості території.

Аналіз останніх досліджень і публікацій

Ще до аварії на ЧАЕС, на основі даних глобальних випадіннь, лабораторних експериментів і радіаційних аварій в Уіндскейлі (Великобританія, 1957 р.) та АЕС Три-Майл-Айленд (США, 1979 р.) були створені моделі міграції радіонуклідів за харчовими ланцюгами. Серед них: NRC (США, 1977 р.), AIRDOS/EPA (США, 1979 р.), IAEA (МАГАТЕ, 1982 р.) [9]. Всі ці моделі представлені у вигляді простих математичних рівнянь, що включають характеристики випадіннь: величину та швидкість випадіннь на поверхню ґрунту, ефективну щільність і ефективну швидкість видалення з кореневої зони; та рослин: тривалість вегетаційного сезону і коефіцієнт накопичення. При цьому, передбачається, що коефіцієнт накопичення радіонуклідів рослинами з ґрунту не змінюється у часі.

Пізніші моделі, серед яких SPADE (Великобританія, 1979 р.), RADFOOD (Ізраїль, 1986 р.), ECOSYS (ФРН, 1988 р.), LINDOZ (Румунія, 1994 р.), вже враховують зміну величини накопичення рослинами радіонуклідів з ґрунту з часом [9]. Ці моделі є динамічними моделями, а кінетика процесів перетворення РН описується системою лінійних диференціальних рівнянь. Проте, основними процесами, за рахунок яких відбувається зменшення накопичення ^{137}Cs рослинами, прийняті: міграція РН за кореневий шар (вертикальна міграція), винесення РН з урожаєм і радіоактивний розпад. Процеси трансформації форм РН в ґрунті не враховуються.

У моделях, створених вже з урахуванням досвіду аварії на ЧАЕС, таких як NRPB (Великобританія), RadCon (Австралія), SENES (США), LIETDOS (Латвія), CLRP (Польща), TAMDYN (Угорщина), ECOMOD (Росія), ґрунтовий блок розглядається детальніше і враховується фіксація радіонуклідів ґрунтом [12, 13]. У деяких з них динаміка накопичення ^{137}Cs з ґрунту рослинами описується двоекспоненціальним рівнянням, де перша експонента представляє процес фіксації, а друга – десорбції з фіксованої форми [10].

Основними недоліками представлених вище моделей є те, що в них не враховується вплив екологічних особливостей території на швидкість перетворення форм РН у харчових ланцюгах. Врахування ж виду рослин, типу ґрунту і його основних агрохімічних властивостей в прогнозних моделях може значно зменшити неточності прогнозу і покращити розрахунок матеріальних витрат на проведення захисних заходів.

Мета, завдання та методика досліджень

Для розробки моделі прогнозування забруднення радіонуклідами сільськогосподарської продукції використано дані багаторічного (1986–2003 рр.) радіоекологічного моніторингу сільськогосподарських угідь 33 господарств п'яти найбільш забруднених внаслідок аварії на ЧАЕС областей України: Київської, Житомирської, Чернігівської, Рівненської і Волинської [6, 8].

Програма моніторингу була розроблена і реалізована під керівництвом академіка НААН України Б. С. Прістера з метою оцінки радіаційної ситуації та встановлення радіоекологічних закономірностей її формування. У ході моніторингу досліджували 3 типи мінеральних ґрунтів і 14 видів рослин, характерних для зон Українського Полісся і Лісостепу. Дані моніторингу було організовано в базу даних (більше 3,5 тис. записів) і проведено їх обробку за спеціальним 4-ступінчатим алгоритмом, що включає набір експертних, статистичних і математичних методів обробки даних [1].

Наявність великого масиву даних про накопичення радіонуклідів сільськогосподарськими культурами з ґрунту з певними агрохімічними властивостями дозволила відслідкувати зв'язок між величиною коефіцієнтів переходу $TF^{137}\text{Cs}$ у рослини і комплексною оцінкою властивостей ґрунту Sef [5, б]. Мірою Sef прийнято площу перерізу тривимірного простору з осями значень фундаментальних властивостей ґрунту: реакція ґрунтового розчину рН, вміст органічної речовини ОР (гумусу), сума поглинутих основ СПО.

Результати досліджень

У ході аналізу експериментальних даних моніторингу було встановлено емпіричні закономірності динаміки накопичення радіонуклідів сільськогосподарськими культурами на різних типах ґрунту (рис. 1).

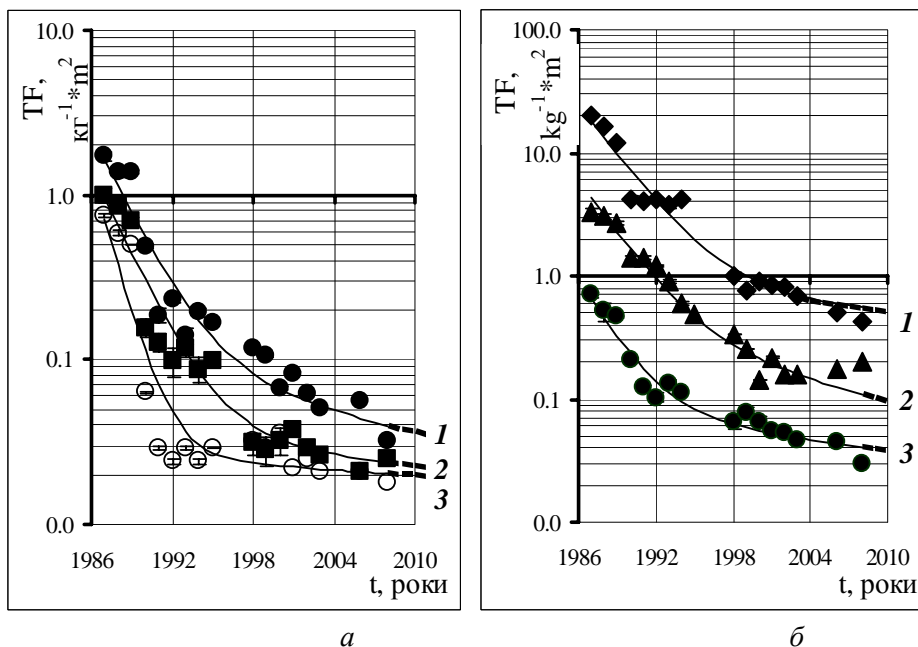


Рис. 1. Динаміка $TF^{137}\text{Cs}$ з ґрунту в рослини: а – кукурудзу з 1 – дерново-підзолисто, 2 – сірого лісового, 3 – чорнозему; б – з дерново-підзолисто ґрунту в 1 – сіно природних трав, 2 – сіно-сіяних трав, 3 – зерно-озимої пшениці

Встановлено, що значення коефіцієнту переходу ^{137}Cs з ґрунту в рослини зменшується з часом після випадіння за двоєкспоненційним законом [7]. Співставлення параметрів динаміки TF із сучасними уявленнями про механізми сорбції іонів ґрунтовогопоглинаючим комплексом дозволили розробити концептуальну схему моделі міграції радіоцезію з ґрунту в рослини (рис. 2).

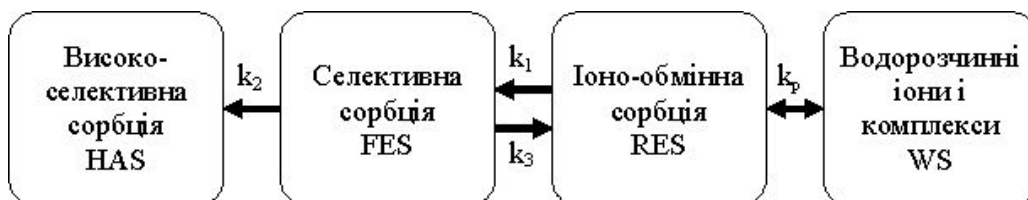


Рис. 2. Схема трансформації форм радіоцезію в ґрунті і характерні параметри цього процесу

^{137}Cs поступає у рослину безпосередньо з ґрунтового розчину і його концентрація у рослині пропорційна концентрації водорозчинної форми радіонуклідів WS в ґрунті [11], динаміка якої визначається процесами перерозподілу ^{137}Cs між місцями сорбції RES, FES і HAS. Згідно зі схемою (рис. 2), при поступанні до ґрунту іонів Cs^+ встановлюється сорбційна рівновага в розподілі водорозчинної форми WS у системі «ґрунтовий розчин – місця іонообмінної сорбції RES». Оскільки цей процес протікає дуже швидко, порівняно з тривалістю вегетаційного періоду сільськогосподарських культур, час встановлення рівноваги приймається моментальним, тобто $t_p=0$ [3]. Рівноважна концентрація обмінних іонів Cs^+ , сорбованих на місцях RES, визначається фундаментальними властивостями ґрунту, які надалі будуть оцінені за допомогою величини S_{ef} . Далі, при $t > 0$, зі сайтів RES обмінно поглинені іони Cs^+ переміщуються на селективно обмінні сайти FES із швидкістю k_1 [4]. Іони Cs^+ міцно сорбовані на FES, однак з часом вони частково десорбуються на іонно-обмінні сайти RES, причому, швидкість десорбції k_3 значно менша k_1 . З часом сорбований на FES іон Cs^+ мігрує на місця високоселективної сорбції HAS. Практично необмінний перехід іонів Cs^+ на сайти HAS відбувається із швидкістю k_2 , величина якої менша k_1 [3].

Процес трансформації форм радіонукліду в ґрунті записали у вигляді системи диференціальних рівнянь, параметрами якої є концентрації іонів цезію на сайтах RES, FES і HAS та швидкості сорбції-десорбції іонів цезію. Аналітичне рішення такої системи диференціальних рівнянь має вигляд

$$TF(t) = TF(0) \cdot \left\{ \frac{k_1 - (2 \cdot k_2 + \frac{k_3}{2})}{k_1 - k_2} \cdot e^{-(k_1 + \frac{k_3}{2}) \cdot t} + \frac{k_2 + \frac{k_3}{2}}{k_1 - k_2} \cdot e^{-(k_2 + \frac{k_3}{2}) \cdot t} \right\}, \quad (1)$$

де $TF(0)$ – екстрапольований на момент випадіння коефіцієнт переходу ^{137}Cs з ґрунту в рослини; k_1 , k_2 , k_3 – швидкості сорбції-десорбції іонів Cs^+ : k_1 – селективної з RES на FES, k_2 – високоселективної з FES на HAS, k_3 – десорбції з сайтів FES на RES (табл. 1).

Таблиця 1. Усереднені за групами культур за типами ґрунту значення параметрів кінетичної моделі міграції ^{137}Cs з ґрунту в рослини та величина Sef ($\delta \leq \pm 25\%$)

Параметр	Група культур	Тип ґрунту		
		дерново-підзолистий*	сірий лісовий	чорнозем
Екстрапольований на момент випадіння коефіцієнт переходу ^{137}Cs $TF(0)$ з різних типів ґрунту, $\text{кг}^{-1}\cdot\text{м}^2$	Природні трави	29	10	-
	Сіяні злакові трави	5,8	4,9	3,3
	Кормові трави: <i>конюшина, люцерна, кукурудза</i>	3,9	1,9	1,6
	Овочі: <i>капуста, томат, огірок</i>	2,9	2,0	1,2
	Булби, коренеплоди <i>цибуля, буряк, картопля</i>	1,6	0,63	0,60
	Зернові: <i>озима пшениця, ячмінь, жито</i>	0,87	0,66	0,36
Швидкість сорбції-десорбції іонів ^{137}Cs , рік^{-1}	k_1	0,34	0,38	0,48
	k_3	0,038	0,026	0,013
	k_2	0,0026	0,0017	0,0011
Комплексна оцінка властивостей ґрунту Sef , у.о.		0,11	0,20	0,41

*Усереднені значення для піщаних, супіщаних та легкосуглинкових дерново-підзолистих ґрунтів.

Величини екстрапольованих на момент випадіння коефіцієнтів переходу ^{137}Cs $TF(0)$ зменшуються від природних трав до зернових і від дерново-підзолистих ґрунтів до чорноземів майже у 100 раз. Значення швидкостей сорбції-десорбції k_1 , k_2 , k_3 , як і значення комплексної оцінки властивостей ґрунту Sef , відрізняються між різними типами ґрунту в 2–3 рази. Це спричинено відмінностями у якісному та кількісному складі сорбційних місць різної природи у цих ґрунтах. Отримані дані підтверджують, що при рівній щільності забруднення угідь на всіх типах ґрунту найбільш критичними культурами будуть природні чи сіяні трави. У той же час, при вирощуванні будь-якої культури критичним з точки зору накопичення ^{137}Cs серед мінеральних ґрунтів буде дерново-підзолистий ґрунт. Отже, представлені у табл. 1 параметри дозволяють попередньо планувати захисні заходи на радіоактивно забруднених територіях з урахуванням критичності культури чи типу ґрунту.

Співставлення значень параметрів кінетичної моделі поведінки радіоцезію у системі «ґрунт–рослина» та Sef (табл. 1) показало, що існує кількісний зв'язок між ними. Залежність екстрапольованих на момент випадіння коефіцієнтів переходу ^{137}Cs з ґрунту в рослини від комплексної оцінки властивостей ґрунту апроксимували у вигляді експоненційної залежності. Для встановлення зв'язку

значень швидкостей сорбційних процесів перетворення форм радіонуклідів у ґрунті k_1 , k_2 , і k_3 та величини комплексної оцінки властивостей ґрунту Sef була запропонована і підтверджена гіпотеза про лінійний вид залежності.

У результаті кінетична модель (1) поведінки ^{137}Cs у системі «ґрунт (Sef) – рослина» приймає такий математичний вид:

$$TF_{Sef} = TF_0(0) \cdot e^{-\lambda_j \cdot Sef} \left\{ (1 + 0.031 \cdot \ln(Sef)) \cdot e^{-0.31 \cdot (1+Sef) \cdot t} + (-0.031 \cdot \ln(Sef)) \cdot e^{-0.055 \cdot (1-Sef) \cdot t} \right\}, \quad 2)$$

де $TF_0(0)$ – «нульовий» екстрапольований на момент випадінь коефіцієнт переходу ^{137}Cs у рослину з ґрунту з мінімальними значеннями агрохімічних властивостей ($Sef \Rightarrow 0$); λ – параметр, що відображає реакцію культури на зміну властивостей ґрунту у процесі накопичення нею радіонукліду в початковий момент часу $t=0$ (табл. 2).

Таблиця 2. Значення параметрів кінетичної моделі переходу ^{137}Cs з різних типів ґрунту в сільськогосподарські культури з використанням Sef

Культура	$TF_0(0)$	λ
Природні трави	55	6,1
Сіяні трави	7,2	2,2
Конюшина	9,2	5,6
Люцерна	6,2	3,3
Кукурудза	4,2	4,2
Капуста	4,5	3,0
Томати	4,0	4,9
Огірок	2,7	1,9
Цибуля	2,9	3,9
Буряк	2,2	2,6
Картопля	2,0	5,3
Озима пшениця	1,7	6,8
Ячмінь	1,0	1,6
Жито	0,90	2,2

Таким чином, у рівнянні (2), для розрахунку концентрації ^{137}Cs у сільськогосподарській продукції, ґрунт представлений за допомогою кількісного параметру Sef , що розраховується за показниками фундаментальних агрохімічних властивостей. Це значно уточнює прогнозне значення вмісту радіонукліду в рослинах і дає змогу розрахувати дози внесення добрив та меліорантів на ґрунті з певними властивостями.

Запропонована модель (2) містить лише два емпіричних параметри, які залежать тільки від біологічних властивостей рослин. Значення параметру, що відображає реакцію рослин на зміну властивостей ґрунту λ , розташовуються у відмінному від «нульового» екстрапольованого на момент випадінь коефіцієнту переходу ^{137}Cs з ґрунту в рослини $TF_0(0)$ порядку культур. Відсутність взаємозв'язку між параметрами λ і $TF_0(0)$ для всіх видів рослин свідчить про те,

що природа цих двох параметрів різна, тобто їх величини визначаються різними біологічними особливостями рослин. Наразі є гіпотеза, що значення $TF_0(0)$ залежать від виносу обмінного калію рослинами, а λ – від ємності катіонного обміну ЄКО коренів рослин. Пояснення природи λ і $TF_0(0)$, уточнення їх значень, а можливо, і кількісне описання впливу біологічних особливостей рослин на накопичення радіонуклідів з ґрунту стане доступним при проведенні спеціального експерименту.

Діагностика моделі за статистичними критеріями Дарбіна-Уотсона, Ст'юдента, Фішера та оцінкою коефіцієнту детермінованості підтвердила повну адекватність розробленої моделі та високий рівень значимості її параметрів. Застосування формальних статистик перевірки якості прогнозу, таких як упередженість прогнозу, відносна зміщеність прогнозу, відносний ступінь його точності та інших, встановили високий рівень кореляції прогнозних і реальних рядів між собою. Доведено, що точність моделі не нижче 30 % у 80 % випадків. Аналіз чутливості моделі встановив чутливість результату розрахунку до вхідних даних. У зв'язку з цим, розроблено «Вимоги до вхідної інформації, яка використовується в моделі поведінки радіонуклідів цезію у системі «ґрунт – рослина». Верифікація моделі за представленими в базі даних Франко-Німецької Ініціативи даними радіаційного моніторингу території Росії та Білорусі після аварії на ЧАЕС показала, що надійність розрахунків концентрації ^{137}Cs у рослинах за розробленою кінетичною моделлю не нижча 80 % і може бути визнана задовільною при прогнозуванні радіаційного стану.

Висновки та перспективи подальших досліджень

Кінетичну модель міграції ^{137}Cs з ґрунту в рослини доцільно використовувати для прогнозування забруднення РН сільськогосподарських культур, оскільки вона враховує набір екологічних особливостей території, що впливають на перетворення форм радіонукліду в ґрунті та його подальше накопичення рослинами. Використання комплексної оцінки властивостей ґрунту S_{ef} для прогнозування забруднення ^{137}Cs сільськогосподарських культур надає моделі універсальності. Тобто при наявності кількісних значень фундаментальних агрохімічних характеристик ґрунту її можна застосовувати для будь-якої території, відмінної від Українського Полісся. Розрахунок забруднення рослинності ^{137}Cs за кінетичною моделлю з урахуванням S_{ef} більш точний, ніж за моделлю з параметрами для конкретного типу або групи ґрунтів. Надалі необхідно проводити подальшу верифікацію моделі за експериментальними даними, а також валідацію для інших радіоактивно забруднених територій, як, наприклад, на японській АЕС Фукусіма-1 у 2011 р.

Література

1. *Виноградська В. Д.* Динаміка накопичення ^{137}Cs сільськогосподарськими культурами в умовах Українського Полісся та Лісостепу: дис. ... к. с.-г. н., : спец. 03.00.16 «екологія» / *В. Д. Виноградська.* – К., 2005. – 142 с.

2. Загальнодержавна паспортизація населених пунктів України, які зазнали радіоактивного забруднення після Чорнобильської аварії. Узагальнені дані за 2001–2004 рр. / за ред. *І. А. Ліхтарьова*. – К. : МОЗ України, 2001. – 62 с.

3. *Клечковский В. М.* О поведении радиоактивных продуктов деления в почвах, их поступлении в растения и накоплении в урожае / *В. М. Клечковский*. – М. : АН СССР, 2006. – 177 с.

4. *Коноплев А. В.* Параметризация перехода ^{137}Cs из почвы в растения на основе ключевых почвенных характеристик / *А. В. Коноплев, И. В. Коноплева* // Радиационная биология. Радиэкология. – 1999. – Т. 39, № 4. – С. 455–461.

5. Количественная комплексная оценка свойств почвы при прогнозировании поведения радионуклидов в системе «почва–растение» / *Б. С. Пристер* // Вісн. аграр. науки. – 2002. – № 1. – С. 61–68.

6. *Пристер Б. С.* Проблемы прогнозирования поведения радионуклидов в системе «почва–растение» / *Б. С. Пристер* // Адаптация агроэкологии к условиям техногенеза: монография / *Р. Г. Ильязов, Ф. Х. Фисинин, В. Ф. Шакиров [и др.]*; под ред. *Р. Г. Ильязова*– Казань: ФЭН, 2006. – С. 78–125.

7. *Пристер Б. С.* Модель для прогнозирования дозы внутреннего облучения населения при почвенном пути включения долгоживущих радионуклидов в пищевые цепи / *Б. С. Пристер, В. Д. Виноградская* // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. – Чернобиль, 2009. – Вип. 11. – С. 128–135.

8. *Пристер Б. С.* Радиэкологические последствия. Динамика радиоактивного загрязнения наземных экосистем и эффективность защитных мероприятий / *Б. С. Пристер* // Национальный доклад Украины «Двадцать пять лет Чернобильской катастрофы. Безопасность будущего» / под ред. *Б. С. Пристера*. – К. : Изд. КИМ, 2011. – С. 39–98.

9. Biosphere Modelling and Assessment BIOMASS programme. – Vienna: IAEA, 2002. – 126 p.

10. Dynamics of Bioavailability in a Soil-Plant System in Areas of the Chernobyl Nuclear Power Plant Accident Zone with a Different Physico-chemical Composition of Radioactive Fallout / *S. V. Fesenko, S. V. Spiridonov, N. I. Sanzharova, R. M. Alexakhin* // J. Environ. Radioactivity. – 1997. – V. 34, № 3. – P. 287–313.

11. Experimental Substantiation and Parameterization of the Model Describing ^{137}Cs and ^{90}Sr Behavior in a Soil-Plant System / *B. S. Prister, V. G. Baryakhtar, L. V. Perepelyatnikova [et. all]* // Env. Science and Pollution Research. – 2003. – Special Issue, № 1. – P. 126–136.

12. Protection of the Environment from Ionising Radiation // The development and Application of a System of Radiation protection for the Environment. – Vienna : IAEA, 2003. – 432 p.

13. Testing of environmental transfer models using Chernobyl fallout data from the Iput River catchment area. Report of the Dose Reconstruction Group of BIOMASS. Theme 3. IAEA-BIOMASS-4. – Vienna : IAEA, 2003. – 332 p.