

ДЕГРАДАЦИЯ, ВОССТАНОВЛЕНИЕ И ОХРАНА ПОЧВ

УДК 631.43.539.16

МОДЕЛИРОВАНИЕ ФИКСАЦИИ ^{137}Cs В ПОЧВАХ*

© 2009 г. А. А. Булгаков

ГУ НПО “Тайфун”, 249083, Калужская обл. Обнинск, пр. Ленина, 82

e-mail:bulgakov@typhoon.obninsk.ru

Поступила в редакцию 28.06.2007 г.

Проведен анализ существующих моделей фиксации ^{137}Cs в почвах. Показано, что наиболее адекватно имеющиеся экспериментальные данные описывает диффузионная модель. Главными ее преимуществами являются малое число параметров и возможность оценивать параметры долговременной фиксации по результатам краткосрочного лабораторного эксперимента. В соответствии с моделью доля обменной формы, близкая к равновесной, достигается в разных почвах за время от нескольких месяцев до нескольких лет, после чего подвижность радиоцезия в течение длительного времени остается практически неизменной. Однако сравнительный анализ форм нахождения в почвах стабильного и радиоактивного цезия показывает, что существует, по-видимому, вторая стадия фиксации ^{137}Cs , ведущая к медленному уменьшению подвижности радиоцезия с характерным временем не менее чем несколько десятков лет.

ВВЕДЕНИЕ

В результате испытаний ядерного оружия, Чернобыльской и других радиационных аварий обширные территории в России и других стран подверглись радиоактивному загрязнению. Значительная доля выпавшей активности была представлена ^{137}Cs и ^{90}Sr с периодами полураспада около 30 лет. Это обусловливает необходимость применения моделей, позволяющих прогнозировать поведение радионуклидов в природных средах в течение десятков и более лет. Без наличия таких моделей невозможно получение надежных оценок доз облучения населения за все время жизни, которые законодательно утверждены НРБ-99 как главный критерий для принятия решений по реабилитации, организации проживания и ведения хозяйства на загрязненных территориях. В то же время практически все существующие прогностические модели и оценки их входных параметров основываются на экспериментальных данных, полученных в краткосрочных экспериментах. Правомерность использования таких моделей для долговременного прогнозирования неочевидна.

Целью настоящей статьи является анализ имеющихся экспериментальных данных по долговременной трансформации форм нахождения ^{137}Cs в почвах, выбор и обоснование наиболее адекватных методов ее математического моделирования. Практическая важность таких методов обусловлена тем, что ^{137}Cs – один из наиболее экологически опасных радионуклидов, а формы нахождения в почве определяют его подвижность и биологическую доступность, и, следовательно, миграцию по пищевым цепочкам в организме че-

ловека. Основными процессами, определяющими динамику подвижности и биологической доступности радиоцезия, являются фиксация (переход Cs из обменной формы в необменную) и, в случае загрязнения почвы выпадениями чернобыльского типа, выветривание топливных частиц. Детальный анализ методов математического моделирования и значений параметров растворения частиц ядерного топлива в почвах приведен в работе [8, 26]. В настоящей статье рассмотрены методы моделирования процессов фиксации радиоцезия в почвах.

ДОЛЯ ОБМЕННОЙ ФОРМЫ КАК ПОКАЗАТЕЛЬ ПОДВИЖНОСТИ И БИОЛОГИЧЕСКОЙ ДОСТУПНОСТИ РАДИОЦЕЗИЯ В ПОЧВАХ

После попадания в почву растворенных радионуклидов их подвижность и биологическая доступность в той или иной степени уменьшается со временем в результате различных процессов, объединяемых термином “старение”. Нелетучие радикалы, как и элементы минерального питания, наапливаются растениями из почвенного раствора, а их миграция в почвах происходит в основном в водной фазе. В частности, показано, что коэффициент накопления ^{137}Cs в растениях (отношение концентрации в растении к концентрации в почве) при прочих равных условиях прямо пропорционален его доле, находящейся в поровом растворе [18, 34]. Это справедливо и для параметров вертикальной миграции (эффективные коэффициенты диффузии и скорости конвективного переноса). Поэтому доля радионуклида, находящаяся в почвенном растворе, является непосредственной количественной характеристи-

* Работа выполнена при поддержке МНТЦ (проект № 3189).

кой его подвижности и доступности для корневого поглощения. Межфазное распределение радионуклида в почве зависит от времени, свойств твердой и водной фаз. Для радиоцезия оно в значительной степени определяется концентрацией в растворе катионов калия и аммония [24], для которых характерна значительная многолетняя, сезонная и суточная изменчивость [7]. Даже в лабораторных условиях в экспериментах с суспензиями почв в результате микробиологических процессов концентрация аммония может изменяться как в ту, так и в другую сторону, оказывая значительное влияние на распределение радиоцезия [5]. Поэтому уменьшение доли водорастворимого радионуклида в почве или в ее суспензии может быть однозначно интерпретировано как следствие старения только в том случае, если состав водной фазы сохраняет постоянство. С этой точки зрения более удобным показателем при изучении долговременной динамики радионуклидов в почвах является доля обменной формы, которая в гораздо меньшей степени подвержена краткосрочным колебаниям в результате изменений условий среды. Другим важным преимуществом доли обменной формы можно считать, что она может быть достаточно просто определена практически при любых экологически значимых уровнях загрязнения, в то время как измерение активности ^{137}Cs в поровом растворе в большинстве загрязненных почв связано со значительными экспериментальными трудностями.

Под обменной формой радионуклида понимают часть его общего количества в почве, которая может быть достаточно быстро десорбирована растворами нейтральных солей без разрушения твердой фазы почвы. Цезий находится в природных водных растворах в основном только в виде катиона и соответственно сорбируется твердой фазой почвы по механизму катионного обмена. Катионный обмен является быстрым процессом, и его равновесие на поверхности частиц устанавливается за несколько минут [13]. Поэтому все катионы цезия, связанные с центрами адсорбции, могут считаться находящимися в обменной форме, так как проникновение вытесняющего катиона к ним не требует преодоления пространственных затруднений.

Экспериментально обменную форму радионуклидов определяют экстракцией растворами солей, обычно 1 М $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ по методике, предложенной Ф.И. Павлоцкой, при соотношении фаз 1 : 10 кг/л и времени контакта 1 сут [14]. Некоторыми авторами применимость этой методики к радиоцезию подвергается сомнению [30, 32, 37], поскольку она дает заведомо заниженные результаты. Общепризнанно, что сорбция катионов цезия в большинстве почв происходит в основном на краевых участках межпакетных пространств глинистых минералов. Из-за отталки-

вания отрицательных зарядов, которые, когда частицы минералов находятся в контакте с разбавленными растворами, остаются нескомпенсированными, это участки расширены к поверхности, что позволяет проникать в них катионам с низкой энергией гидратации, таким как калий, аммоний и, особенно, цезий. Находящиеся на расширенных краях межпакетных пространств избыточные отрицательные заряды называются FES (сокращение от английского Frayed Edge Sites). При воздействии на глинистые минералы раствора с высокой концентрацией аммония происходит компенсация зарядов и схлопывание (коллапс) расширенных краев. В результате время обмена с водной фазой связанного с FES радионуклида резко возрастает, а определяемая доля обменной формы занижается. Исходя из этих соображений, экстракция концентрированными растворами солей аммония для характеристики состояния радиоцезия в почве многими исследователями не применяется и, более того, само понятие обменной формы по отношению к нему почти не используется.

Отказ от концепции обменной формы значительно усложняет как экспериментальные исследования, так и математическое описание трансформации форм нахождения радиоцезия в почвах и представляется не совсем оправданным с нескольких точек зрения. Во-первых, для того, чтобы вызвать схлопывание расширенных краев, катионы аммония должны, очевидно, проникнуть в них и, следовательно, десорбировать по крайней мере чать связанного с FES радиоцезия. Экспериментальным подтверждением этого являются результаты последовательного извлечения растворами хлорида кальция и ацетата аммония сорбированного иллитом ^{137}Cs [15]. Двухзарядные катионы обеспечивают практически полную десорбцию радиоцезия с неселективных обменных центров, но из-за большой энергии гидратации не способны проникать к FES и соответственно вытеснять связанный с ними радионуклид. Поэтому можно считать, что после двух последовательных экстракций раствором хлорида кальция на поверхности твердой фазы остается только радионуклид, адсорбированный на FES. Тем не менее, в последующую вытяжку раствором ацетата аммония переходит более 20% исходного количества ^{137}Cs [15]. При этом очевидно, что в первую очередь десорбируются катионы цезия, связанные с FES, наиболее близкими к поверхности минерала, то есть именно те, характерное время обмена которых с растворенными катионами минимально.

Во-вторых, распределение катионов цезия по характерному времени выхода в водную фазу является непрерывным, а их деление на обменную и необменную формы – в значительной степени условным. Это наглядно показывают результаты, полученные с помощью метода бесконечного разбавления. Этот метод был предложен в каче-

стве альтернативы вытяжки 1 М $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ [30, 32, 37]. Он состоит в том, что почва находится в контакте с разбавленными растворами хлоридов калия или аммония (10^{-3} М), которые, как считается, не вызывают схлопывания расширенных краев межпакетных пространств. Полнота десорбции радионуклида обеспечивается введенным в суспензию селективным по отношению к цезию сорбентом в полупроницаемой мемbrane, который поддерживает близкую к нулевой концентрации радионуклида в водной фазе. В этих условиях выход ^{137}Cs из твердой фазы почвы не заканчивается даже через несколько месяцев [32]. Очевидно, что весь экстрагированный за этот период из почвы радионуклид не может рассматриваться как находившийся в обменной форме и время контакта фаз надо ограничить. Выбор времени экстракции будет в значительной степени произвольным, так как кривые экстракции выраженных изломов не имеют. В этом смысле кажущийся недостаток вытяжки 1 М $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ можно рассматривать как преимущество, поскольку вызываемое концентрированным раствором схлопывание расширенных краев межпакетных пространств естественным образом ограничивает время экстракции и приводит к тому, что в вытяжку переходит только наиболее доступная для десорбции фракция радионуклида.

В любом случае, доля обменной формы, определенная экстракцией 1 М $\text{CH}_3\text{COONH}_4$, является вполне корректной характеристикой относительной подвижности и биологической доступности радиоцезия в почве. Об этом свидетельствует то, что уже через два дня после внесения ^{137}Cs в суспензию почвы отношение его доли в водной фазе к доле, извлекаемой 1 М $\text{CH}_3\text{COONH}_4$, становится постоянным и существенно не меняется в течение последующих нескольких месяцев, при том, что сами эти доли уменьшаются на порядок величины [29]. Следовательно, после некоторого достаточно короткого начального периода, при условии постоянства состава водной фазы, доли обменной формы и растворенного радионуклида меняются синхронно. Поэтому изменение доли обменной формы при прочих равных условиях приводит к такому же изменению подвижности и доступности радиоцезия для растений. Например, доля обменной формы ^{134}Cs , внесенного в почвы Киевской обл. в виде раствора, была в 1989 г. в среднем в 1.5 раза выше, чем у ^{137}Cs чернобыльских выпадений [6], и практически таким же было различие их коэффициентов накопления в зеленой массе кукурузы [1]. Из этого следует, что изменение доли обменной формы вполне адекватно отражает динамику подвижности и биологической доступности радиоцезия в почвах. Более того, если при экспериментальном определении параметров адсорбции радиоцезия нормировать их на долю обменной формы, они могут быть ис-

пользованы для получения количественных оценок концентрации радионуклида в водной фазе как функции времени. Для получения таких оценок, естественно, требуется прогноз динамики обменной формы.

МОДЕЛИ ТРАНСФОРМАЦИИ ФОРМ НАХОЖДЕНИЯ РАДИОЦЕЗИЯ В ПОЧВАХ

Для прогнозирования динамики биологической доступности и подвижности радиоцезия в почвах разработано несколько моделей, значительно отличающихся по структуре и уровню сложности [9, 19, 20, 23, 27, 30, 36, 37]. В самых простых из них фиксация представлена как необратимый процесс первого порядка [23]. В более сложных моделях она описывается как ряд последовательных и (или) параллельных процессов как необратимых, так и обратимых. При возрастании сложности моделей число входных параметров увеличивается от одного до шести. Соответственно возрастают и требования к экспериментальным данным, по которым могут быть оценены значения параметров и проведена проверка модели. Опубликованные данные динамики фиксации радиоцезия получены в экспериментах с искусственным внесением радионуклида в почвы в лабораторных и полевых условиях или при изучении трансформации форм нахождения радиоцезия чернобыльских и глобальных выпадений. Кроме результатов экспериментов, в которых исследовалась собственно трансформация форм нахождения радиостронция в почвах, для проверки моделей могут быть использованы данные по долговременной динамике распределения радионуклида в системе почва–растение. При этом следует учитывать, что в ненарушенных почвах доля обменной формы радиоцезия зависит не только от времени, но и от характеристики слоя, в котором она определяется. Например, в лесных почвах Брянской обл. во второй половине 90-х годов в поверхностном слое в обменной форме находилось в 2–7 раз больше ^{137}Cs , чем в нижележащих слоях [16]. Уменьшение доли обменной формы радиоцезия в таких почвах является следствием не только фиксации, но и вертикальной миграции. Динамика доступности радионуклидов растениям в лесных и луговых почвах также определяется, наряду с фиксацией, изменением со временем относительного распределения радионуклида и корневой системы растений [4, 25]. Поэтому для тестирования моделей фиксации можно непосредственно использовать только данные экспериментов с гомогенизованными почвами и, с некоторыми оговорками, результаты полевых экспериментов на почвенных почвах.

Для настройки модели по экспериментальным данным желательно, чтобы число экспериментальных точек было в несколько раз большее

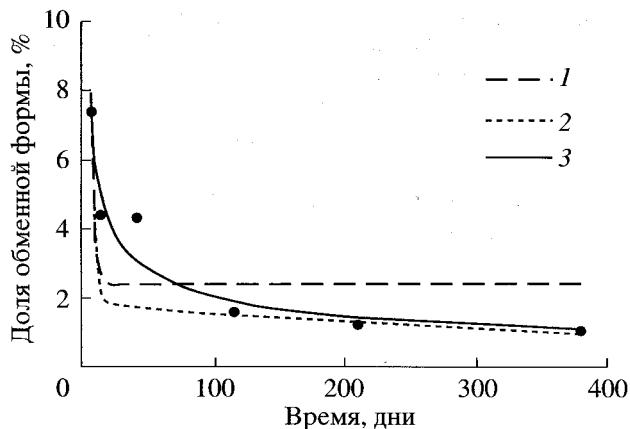


Рис. 1. Экспериментальная и рассчитанная динамика содержания радиоцезия в жидкой фазе суспензии дерново-подзолистой суглинистой почвы. Параметры расчетных формул определены методом наименьших квадратов по всем экспериментальным точкам. 1 – расчет по формуле (1), 2 – расчет по формуле (2), 3 – расчет по формуле (3).

числа оцениваемых входных параметров. Относительно продолжительные (от нескольких месяцев до нескольких лет) ряды экспериментальных данных с числом точек около 10 и более имеются только для нескольких почв [11, 17, 28]. Поэтому в большинстве случаев обоснованные оценки параметров могут быть получены только для самых простых моделей. В наиболее простой из них [23] фиксация радиоцезия описывается как необратимый процесс первого порядка с одним параметром – константой скорости фиксации. Однако все имеющиеся экспериментальные данные свидетельствуют о том, что это скорость достаточно быстро уменьшается и через некоторое время становится близкой к нулю [4, 11, 17, 25], то есть содержание обменной формы радиоцезия выходит на стационарный уровень, который либо не меняется, либо меняется очень медленно. Не выходя за рамки кинетики первого порядка и не усложняя чрезмерно модель, такую динамику обменной формы можно качественно описать, если рассматривать фиксацию как обратимый процесс [27] или предположив существование двух фракций радионуклида с разными скоростями фиксации [19]. В первом случае требуются два входных параметра – константы скорости фиксации (k_f , год $^{-1}$) и обратного процесса – ремобилизации (k_r , год $^{-1}$). После внесения в почву растворенного радионуклида зависимость доли его обменной формы $EX(t)$ от времени (t , годы) описывается этой моделью следующим образом:

$$EX(t) = \frac{k_r}{k_f + k_r} + \frac{k_f}{k_f + k_r} \exp[-(k_f + k_r)t]. \quad (1)$$

Во второй модели, кроме констант скорости быстрой и медленной фиксации (соответственно

k_{fast} и k_{slow} , год $^{-1}$), должна быть задана быстро фиксирующаяся фракция F_{fast} :

$$EX(t) = F_{fast} \exp[-k_{fast}t] + (1 - F_{fast}) \exp[-k_{slow}t]. \quad (2)$$

Альтернативой моделям, описывающим трансформацию форм нахождения кинетическими уравнениями первого порядка, является диффузионная модель [3, 21]. Она основана на общепринятых представлениях о том, что механизмом фиксации радиоцезия в почвах является диффузия в межпакетные пространства глинистых минералов. Если предположить, что глубина проникновения катионов цезия в межпакетные пространства ограничена областью расширенных краев, фиксация может быть описана как диффузия из хорошо перемешиваемого объема в слой конечной толщины [21]. Когда радионуклид вносится в незагрязненную почву в виде раствора, при таких граничных условиях решение уравнения диффузии для достаточно больших времен существенно упрощается. Уже через несколько часов после внесения динамика форм нахождения радиоцезия с хорошей точностью описывается выражением, содержащим два параметра – равновесную долю обменной формы ($EX(\infty)$) и кинетический параметр (δ , год $^{0.5}$):

$$EX(t) = EX(\infty)(1 + \delta t^{-0.5}). \quad (3)$$

Параметры формул (1)–(3) для дерново-подзолистой суглинистой почвы были определены методом наименьших квадратов по экспериментальным данным, полученным ранее [29]. Рассчитанные с помощью этих параметров и измеренные доли обменной формы приведены на рис. 1. Видно, что расчет по выражению (3) находится во вполне удовлетворительном согласии с экспериментом в течение всего периода наблюдений. Причиной этого является, очевидно, то, что уравнение диффузии достаточно адекватно отражает механизм фиксации радиоцезия почвами. Выражение (1) хорошо описывает динамику фиксации в первые две недели, недооценивает долю обменной формы в интервале от двух недель до двух месяцев и переоценивает ее в последующее время. Это объясняется тем, что в методе наименьших квадратов значения параметров подбираются таким образом, чтобы оптимально описывать прежде всего высокие значения, приходящиеся на начальный период. Если использовать другой метод оценки параметров, можно добиться лучшего соответствия расчетных и измеренных значений при больших временах, но при этом ухудшаются результаты для начального периода. Другими словами, значения параметров этой модели существенно зависят от того, каким способом они оцениваются и данные за какой период времени для этого используются. Выражение (2) дает хорошие результаты как при малых, так и при больших временах. Однако следует заметить, что в

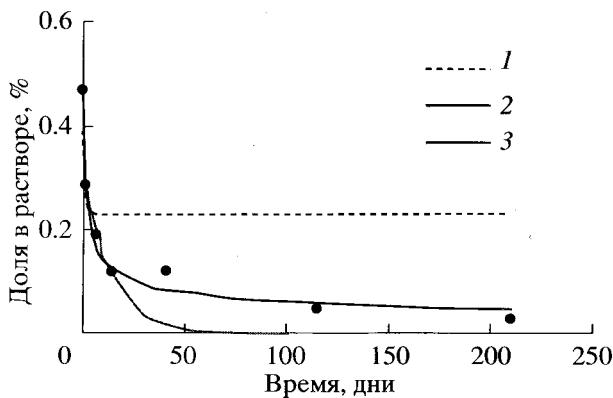


Рис. 2. Экспериментальная и рассчитанная динамика трансформации форм радиоцезия в жидкой фазе суспензии дерново-подзолистой суглинистой почвы. Параметры формул (1) и (3) определены методом наименьших квадратов по первым трем точкам, для формулы (2) использовались первые 4 точки. 1 – расчет по формуле (1), 2 – расчет по формуле (2), 3 – расчет по формуле (3).

этой модели каждый из этих интервалов описывается преимущественно одним из двух членов правой части выражения (2). Параметры этих членов настраиваются практически независимо по данным за соответствующий период. Поэтому, во-первых, худшие результаты эта модель дает при средних временах. Во-вторых, по данным за начальный период практически невозможно с удовлетворительной точностью оценить константу скорости медленной фиксации. Таким образом, для получения надежного долговременного прогноза с помощью выражений (1) и (2) необходимо иметь экспериментальные данные за как можно более длительный период. Это, во-первых, ограничивает возможность использования этих моделей небольшим числом почв, для которых такие данные имеются. Во-вторых, прогноз, как правило, требуется именно тогда, когда отсутствуют результаты прямых измерений.

Диффузационная модель, в отличие от используемых кинетические уравнения первого порядка, позволяет с достаточной точностью прогнозировать долговременную динамику форм нахождения радиоцезия в почве по данным, полученным в краткосрочном эксперименте. Для иллюстрации на рис. 2 приведены результаты сравнения долей ^{137}Cs в водной фазе суспензии дерново-подзолистой суглинистой почвы, прогнозируемых тремя моделями. Оценка параметров выражений (1) и (3) проводилась методом наименьших квадратов по трем точкам, лежащим в интервале от одного дня до одной недели. Поскольку выражение (2) содержит 3 параметра, для их оценки использовалась еще одна экспериментальная точка, полученная через 2 недели после внесения радионуклида в суспензию. Видно, что прогноз, полученный с помощью диффузион-

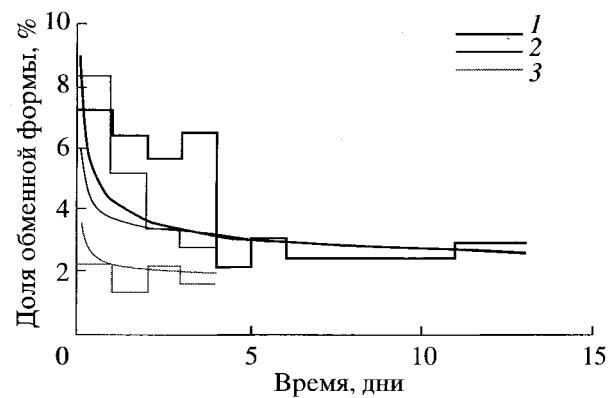


Рис. 3. Экспериментальная и рассчитанная по диффузационной модели динамика трансформации форм радиоцезия в полевых опытах. Параметры фиксации для каждой из почв определены по результатам лабораторного эксперимента. 1 – чернозем выщелоченный среднесуглинистый, 2 – дерново-подзолистая легкосуглинистая почва, 3 – аллювиально-слоистая супесчаная почва.

ной модели, вполне удовлетворительно согласуется с экспериментом в течение всего периода наблюдений, в то время как кратность различий измеренных и прогнозируемых двумя другими моделями значений весьма значительна и увеличивается со временем.

Данные, с которыми выше проводилось сравнение моделей (рис. 1 и 2), были получены в лабораторных условиях. Возможность их использования для прогнозирования фиксации радиоцезия в полевых условиях требует проверки. Кроме того, продолжительность этих экспериментов составляла около одного года. Очевидно, что прогноз может потребоваться на существенно более длительное время. Наиболее продолжительное исследование динамики форм нахождения радиоцезия в полевых условиях были выполнены в 1971–1984 гг. на выщелоченном черноземе, дерново-подзолистой и аллювиально-слоистой почвах [10, 11]. В этих же почвах в лабораторном эксперименте были определены доли обменного ^{137}Cs через 4 дня и 3 года после внесения [12]. По этим двум точкам мы рассчитали параметры выражения (3) и получили прогноз динамики доли обменной формы. Сравнение прогноза с результатами полевого эксперимента приведены на рис. 3. Учитывая пространственную неоднородность почв, результаты сравнения можно признать вполне удовлетворительными. Во всех случаях различия расчетных и экспериментальных значений не превышают двух раз. Это свидетельствует о том, что диффузационная модель достаточно хорошо описывает многолетнюю динамику обменной формы радиоцезия в полевых условиях, а для оценки ее параметров можно использовать данные лабораторных экспериментов.

Существенным достоинством диффузационной модели является малое число параметров, что

позволяет получать их оценки, имея всего две экспериментальные точки. Такие данные доступны для относительно большого числа почв [2]. Для дерново-подзолистых почв полученные оценки кинетического параметра лежат в пределах от 0.2 до 0.7 год^{0.5}. При таких значениях кинетического параметра содержание обменной формы радиоцезия, отличающееся от равновесного не более чем на 30%, достигается за время от нескольких месяцев до нескольких лет. Существенно большие значения кинетического параметра характерны для торфяно-болотных почв (0.8–4.7 год^{0.5}). В таких почвах заметное уменьшение доли обменной формы радиоцезия может продолжаться несколько лет и даже десятилетий. Тем не менее, в соответствии с выражением (3), через некоторое время должен установиться практически не меняющийся стационарный уровень обменной формы. Данные, полученные в экспериментах, продолжавшихся несколько лет, подтверждают этот вывод. В частности, через месяц после внесения в почву ¹³⁴Cs его коэффициент накопления ячменем был в два раза больше, чем у ¹³⁷Cs, который находился в этой почве 17 лет [22]. Через два месяца коэффициенты накопления стали практически одинаковыми и оставались таким еще через месяц. Вследствие сложности процесса поступления радионуклидов в растения в природных условиях редко наблюдается явно выраженная прямопропорциональная зависимость коэффициента накопления от доли обменной формы радиоцезия в почве. Однако при прочих равных условиях, как и было в данном эксперименте, такая зависимость, очевидно имеет место. Из этого следует, что в изученной почве доля обменной формы за несколько недель выходит на стационарный уровень ($\delta \approx 0.1$ год^{0.5}), который практически не меняется за последующие 17 лет.

Сравнение данных по формам нахождения ¹³⁷Cs и стабильного цезия в почвах показывает, что кроме относительно быстрой стадии фиксации (хотя и она в гидроморфных почвах может происходить в течение нескольких лет), которую описывает диффузионная модель, существует, по-видимому, вторая, более медленная. Во-первых, во всех изученных почвах, отобранных на разных участках зоны загрязнения ЧАЭС через 3–5 лет после аварии, доля обменной формы у радиоактивного изотопа больше, чем у стабильного [31, 33], иногда в десятки раз. Во-вторых, 50–80% стабильного цезия в районе НПО “Маяк” остается не извлеченным из почвы и отложений после обработки всеми растворами, в то время как около половины и более ¹³⁷Cs экстрагируется из почв азотной кислотой [35]. Интересно отметить, что различия форм стабильного и радиоактивного цезия заметно меньше в районе НПО “Маяк”, где после загрязнения почвы прошло более 30 лет. Это позволяет предположить, что характерное

время медленной стадии фиксации радиоцезия в почвах и отложения составляет несколько лет.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполнен анализ опубликованных данных по трансформации форм нахождения радионуклидов в почвах. Показано, что доля обменной формы, определенная по методике Ф.И. Павлоцкой, является удобной и корректной характеристикой биологической доступности радиоцезия в почвах. Проведено сравнение существующих математических моделей фиксации. Из моделей с числом параметров не более трех наиболее адекватно динамику фиксации радиоцезия почве в интервале от нескольких часов до нескольких лет описывает диффузионная модель. Ее важным преимуществом является малое число параметров, что позволяет получить оценки их значений для достаточно большого числа почв, причем для этой цели могут быть использованы данные краткосрочных экспериментов. Кроме того, показано, что кинетический и равновесный параметры, диффузионной модели, рассчитанные по результатам лабораторного эксперимента, позволяют вполне удовлетворительно описывать многолетнюю динамику фиксации радиоцезия в полевых условиях.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бондарь П.Ф., Иванов Ю.А., Озорнов А.Г. Оценка относительной биологической доступности цезия-137 в выпадениях и общей биологической его доступности в почвах на территории, подвергшейся радиоактивному загрязнению // Проблемы сельскохозяйственной радиологии. Киев: Украинский научно-исследовательский институт сельскохозяйственной радиологии, 1991. С. 74–78.
2. Булгаков А.А., Коноплев А.А. Диффузионная модель фиксации радионуклидов почвами. Сравнение с экспериментальными данными и другими моделями // Геохимия. 2001. № 2. С. 218–222.
3. Булгаков А.А., Коноплев А.В. Параметры диффузионной модели фиксации ¹³⁷Cs и ⁹⁰Sr в почвах // Почвоведение. 2002. № 4. С. 470–473.
4. Булгаков А.А., Коноплев А.В., Авила Р. Моделирование накопления радиоцезия растениями и грибами при вертикальной неоднородности свойств почвы и распределения радионуклида // Радиационная биология. Радиоэкология. 2001. № 2. С. 226–231.
5. Булгаков А.А., Коноплев А.В., Попов В.Е. Влияние концентрации аммония на скорость фиксации ¹³⁷Cs в суспензиях почв // Радиационная биология. Радиоэкология. 2002. № 5. С. 561–563.
6. Иванов Ю.А., Лощилов Н.А., Ореичич Л.А., Кашипаров В.А., Бондарь П.Ф. Динамика мобильных форм цезия-137 выпадения аварийного выброса ЧАЭС в почвах // Проблемы сельскохозяйственной радиоэкологии. Киев: Украинский научно-исследовательский институт сельскохозяйственной радиологии, 1992. Вып. 2. С. 43–56.

7. Карпачевский Л.О. Экологическое почвоведение. М.: Изд-во Моск. ун-та, 1993. 184 с.
8. Коноплев А.В., Булгаков А.А. Кинетика выщелачивания ^{90}Sr из топливных частиц в почве ближней зоны Чернобыльской АЭС // Атомная энергия. 1999. Т. 86. Вып. 2. С. 129–134.
9. Коноплев А.В., Голубенков А.А. Моделирование вертикальной миграции радионуклидов в почве (по результатам ядерной аварии) // Метеорология и гидрология. 1991. № 10. С. 62–68.
10. Моисеев И.Т., Агапкина Г.И., Рерих Л.А. Изучение поведения ^{137}Cs в почвах и его поступления в сельскохозяйственные культуры в зависимости от различных факторов // Агрохимия. 1994. № 2. С. 103–118.
11. Моисеев И.Т., Тихомиров Ф.А., Алексахин Р.М., Рерих Л.А. Влияние свойств почв и времени инкубации ^{137}Cs на динамику его форм и доступность растениям // Агрохимия. 1982. № 8. С. 109–113.
12. Моисеев И.Т., Тихомиров Ф.А., Рерих А.А., Чижикова Н.П. формы соединений радионуклидов в почвах и их трансформация // Агрохимия. 1981. № 1. С. 110–113.
13. Орлов Д.С. Химия почв. М.: Изд-во Моск. ун-та, 1985. 292 с.
14. Павлоцкая Ф.И. Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах. М.: Атомиздат, 1974. 216 с.
15. Пирнач Л.С., Лаптев Г.В. Исследование влияния свойств компонентов водно-грунтовой системы на процессы адсорбции-десорбции ^{137}Cs и ^{90}Sr в совместном присутствии на иллите // Тр. Украинского научно-исследовательского гидрометеорологического ин-та. Киев: Випол, 2000. Вып. 248. С. 165–177.
16. Фесенко С.В., Сухова Н.В., Санжарова Н.И., Спиридовон С.И., Авила Р., Клецн Д., Люко Э. Анализ факторов, определяющих накопление ^{137}Cs древесными растениями // Радиационная биология. Радиоэкология. 2003. № 5. С. 347–351.
17. Absalom J.P., Young S.D., Crout N.M.J. Radio-caesium fixation dynamics: measurements in six Cumbrian soil // European J. of Soil Science. 1995. V. 46. P. 461–469.
18. Absalom J.P., Young S.D., Crout N.M.J., Nisbet A.F., Woodman R.F.M., Smolders E., Gillet A.G. Prediction soil to plant transfer of radiocaesium using soil characteristics // Environ. Sci. and Technol. 1999. V. 33. P. 1218–1223.
19. Absalom J.P., Young S.D., Crout N.M.J., Sanchez A.L., Wright S.M., Smolders E., Nisbet A.F., Gillet A.G. Predicting the transfer of radiocaesium from organic soils to plants using soil characteristics // J. Environ. Radioactivity. 2001. V. 52. P. 31–43.
20. Benes P., Picat P., Chernic M., Quinault J.M. Kinetics of radionuclide interaction with suspended solids in modelling of migration of radionuclides in rivers. I. Parameters for two-step kinetics // J. Radioanal. Nucl. Chem. 1992. V. 159. № 2. P. 175–186.
21. Bulgakov A.A., Konoplev A.V. Diffusion Modeling of Radiocaesium Fixation by Soils // Radiation Protection Dosimetry. 1996. V. 64. № 1/2. P. 11–13.
22. Cline J.F. Effect of nutrient potassium on the uptake of caesium-137 and potassium and of discrimination factor // Nature. 1962. V. 193. P. 1302–1303.
23. Comans R.N.J., Hockley D.E. Kinetics of cesium sorption on illite // Gepchimica et cosmochimica acta. 1992. V. 56. P. 1157–1164.
24. Cremers A., Elsen A., Le Preter P., and Maes A. Quantitative analysis of radiocaesium retention in soils // Nature. 1988. V. 335. P. 247–249.
25. Fesenko S.V., Soukhova N.V., Sanzharova N.I., Avila R., Spiridonov S.I., Klein D., Badot P.M. ^{137}Cs availability for soil to understory transfer in different types of forest ecosystems // J. Total Environ. 2001. V. 269. № 1–3. P. 87–103.
26. Kashparov V.A., Protsak V.P., Ahamdach N., Stammos D., Peres J.M., Yoshenko V. I., Zvarisch S.I. Dissolution kinetics of particles of irradiated Chernobyl nuclear fuel: influence of pH oxidation state on release of radionuclides in the contaminated soil of Chernobyl // J. Nuclear Materials, 2000. V. 279. P. 225–253.
27. Konoplev A.V., Bulgakov A.A., Popov V.E., Bobovnikova Ts.I. Behaviour of long-lived Chernobyl radionuclides in a soil–water system // Analyst. 1992. V. 117. P. 1041–1047.
28. Konoplev A.V., Bulgakov A.A., Popov V.E., Hilton J., Comans R.N.J. Long-term investigation of ^{137}Cs fixation by soils // Radiation Protection Dosimetry. 1996. V. 64. № 1/2. P. 15–18.
29. Konoplev A.V., Bulgakov A.A., Popov V.E., Popov O.F., Scherbak A.V., Shveikin Yu.V., and Hoffman F.O. Model testing using Chernobyl data: I. Wash-off of ^{90}Sr and ^{137}Cs from two experimental plots established in the vicinity of the Chernobyl Reactor // Health Physics. 1996. V. 70. № 1. P. 8–12.
30. Madruga M.J. Adsorption-desorption behaviour of radiocaesium and radiostrontium in sediments. Ph.D. Thesis. Leuven, Belgium: Katholieke Universiteit Leuven, 1993. 121 p.
31. Oughton D.H., Salbu B., Risso G. et al. Radionuclide mobility and bioavailability in Norwegian and Soviet soils // Analyst. 1992. V. 117. P. 481–486.
32. Rauret G., Firsarova S. Tht transfer of radionuclides through the terrestrial environment to agricultural products, including the evaluation of agrochemical practices. CEC-CIS joint Program on the Consequel of the Chernobyl Accident, Experimental Collaboration Project № 2, Final Report. Luxembourg: Office for official publications of the European Communities, 1996. 185 p.
33. Salbu B., Oughton D.H., Ratnikov A.V. et. al. The vobility of ^{137}Cs and ^{90}Sr in agricultural soils in the Ukraine, Belarus, and Russia, 1991 // Health Physics. 1994. V. 67. P. 518–528.
34. Sanchez A.L., Wright S.M., Smolders E., Naylor C., Steben P.A., Kennedy V.H., Dodd B.A., Singleton D.L., Barnett C.L. High plant uptake of radiocaesium from organic soils due to Cs mobility and low soil K content // Environ. Sci. and Technol. 1999. V. 33. P. 2752–2756.
35. Sources contributing to radioactive contamination of the Techa river and areas surrornding the “Mayak” production association, Ural, Russia. Published by joint Norwegian–Russian expert group for investigation of radioactive contamination in the northen areas. Norway, Gjovik Trykkeri, 1997. 254 p.
36. Wauters J. Radiocesium in freshwater sediments: a kinetics view on sorption, remobilization and fixation processes. PhD thesis, Faculty of Agronomy, Katholieke Universiteit Leuven, Leuven, Belgium, 1994. 114 p.
37. Valke E. The Behaviour dynamics of radiocaesium and radiostrontium in soils rich in organic matter. PhD thesis, Faculty of Agronomy, Katholieke Universiteit Leuven, Leuven, Belgium, 1993. 135 p.