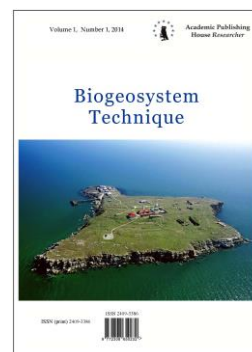


Copyright © 2016 by Academic Publishing House *Researcher*

Published in the Russian Federation
Biogeosystem Technique
Has been issued since 2014.
ISSN: 2409-3386
E-ISSN: 2413-7316
Vol. 7, Is. 1, pp. 17-40, 2016

DOI: 10.13187/bgt.2016.7.17
www.ejournal19.com



UDC 502.052 504.75.05 504.055 539.183.2 54.027 543.054 631.412

Behavior of ^{137}Cs in the System Soil – Plant in the Stationary Sampling Sites Located Within the 30-Kilometer Zone of the Chernobyl NPP in the Period 1987-1992: Forms of Fallout and Chemical Speciation Dynamics of ^{137}Cs Located in Soils

¹Vyacheslav S. Anisimov
²Natalia I. Sanzharova
³Rudolph M. Alexakhin

¹⁻³ Russian Institute of Agricultural Radiology and Agroecology, Russian Federation
Kievskoe shosse, 109 km, Obninsk, Kaluzhskaya oblast 249032

¹ PhD (Biology), Head of Laboratory
E-mail: vsanisimov@list.ru

² Dr (Biology), Professor, Corresponding member of Russian Academy of Science, Director of Institute

E-mail: natsan2004@mail.ru

³ Dr (Biology), Professor, Full member of Russian Academy of Science, Scientific Head of Institute
E-mail: alexakhin@yandex.ru

Abstract

When studying the behaviour of radionuclides – fission products of nuclear fuel, released into natural ecosystems after the Chernobyl accident, significant differences were found in migration capacity of ^{137}Cs global fallout and Chernobyl origin. This is because the radionuclide in the Chernobyl fallout, in contrast to the global, entered to the surface of the earth not only in water-soluble form, but also in the composition of particles of nuclear fuel and composite materials of different dispersion. On the territory of 30-km zone around Chernobyl NPP were allocated to 2 areas, which differ in the form of depositions of radionuclides. The first, which was called the "near" area (2-15 km from the emergency unit of the ChNPP), dominated by the fuel component (the coefficients of fractionation of the non-volatile ^{144}Ce and ^{90}Sr to $^{137}\text{Cs} \geq 1$). In the second zone, named "remote" (15-35 km from ChNPP), was dominated the condensation component ($f^{144}\text{Ce}/^{137}\text{Cs}$ and $f^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs} < 1$).

In "near" to the damaged reactor zone properties of ^{137}Cs , ^{90}Sr and ^{144}Ce are largely determined by its localization within fuel particles, which are transforming in turn under the influence, primarily, of air oxygen and water. Thus, the content in the soils of mobile ^{90}Sr in 1987, was 26.8 % in the "near" zone (v. Krasnoe) and 45.7 % in the "remote" zone (v. Radin). This is 3.6 and 1.3 times less of the relative content of mobile ^{90}Sr in 1990.

By 1990 there was a complete transformation of a primary fuel particles, as indicated the data about: almost complete ^{144}Ce extraction from soils by 1 N solution of hydrochloric acid in 1990; about the reduction of the quantity of unleacheable ^{137}Cs in soil in 1988 and especially in 1990 compared to 1987; and the fact that there is huge increase in the relative content of mobile ^{90}Sr in 1990 as compared to 1987 in the soils of "near" zone where was dominated the fuel component of fallout.

Due to the transformation of the fuel particles already in 1988 the mobility in soil and, consequently, the availability for the root uptake by plants of ^{137}Cs , which is incorporated within the transformed fuel matrix, was higher than the mobility of the radionuclide in the soil exchange complex.

The content of exchangeable and mobile forms of ^{137}Cs was relatively high in the first year after the accident (9.5-30.1 and 12.7-41.2 %, respectively) and then decreased according to the exponential law due process of irreversible fixation of radionuclide by soils: $dC/dt = -bC$, where C is the content of the corresponding form of the radionuclide in soil; b – coefficient of proportionality. Calculated for automorphous soils located in "near" to the reactor zone, half-reduction periods of relative content of exchangeable and mobile forms of ^{137}Cs in soil was equal to 3.7 and 7.0 years, respectively, and for automorphous soils of the "remote" zone – 2.7 and 4.8 years.

For hydromorphous soils of "near" zone the half-reduction periods of the relative content of exchangeable and mobile forms of ^{137}Cs was 1.8 and 3.2 years, for "remote" zone soils – 1.4 and 1.9 years, respectively.

Keywords: ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{144}Ce , radionuclide, coefficient of fractionation, form of fallout, soil, chemical speciation, dynamics.

Введение

Радионуклиды, выпавшие на почву в результате аварии на ЧАЭС, были выброшены в атмосферу в виде конденсационной и топливной компонент. Последняя, в свою очередь, была представлена частицами топливной матрицы и композитных материалов (графит, цирконий, и др.) [1]. В результате, поведение "чернобыльских" радионуклидов в почве оказалось существенно отличным от поведения радионуклидов глобальных выпадений, характеризуясь меньшей подвижностью.

Был проведен сравнительный анализ результатов растворимости "чернобыльского" ^{137}Cs в почве [2]. Оказалось, что 55-79 % валового содержания нуклида в почве в течение 3 лет после аварии на ЧАЭС находилось в "фиксированной" форме и не выщелачивалось даже 6N HCl. Причем, наибольший вклад "фиксированного" ^{137}Cs в суммарное загрязнение почвы отмечался в ближней к реактору 30-км зоне загрязнения, что, по мнению авторов, объясняется значительной долей малорастворимых частиц топливной матрицы в выпадениях ближней зоны ЧАЭС. Аналогичные результаты получены в исследованиях других авторов [3-6].

С увеличением времени контакта радионуклида с почвенной системой происходило перераспределение отдельных форм нахождения его в почве. В начальный период после аварии наибольшим изменениям оказался подвержен ^{137}Cs , находившийся в почвах "дальней" зоны выпадений, наименьшим – в 30-км зоне. Через год после аварии содержание обменной и подвижной форм ^{137}Cs в зоне 0-30 км уменьшилось в 1,2-1,3 раза, а за пределами 30-километровой зоны – в 1,7-3,0 раз [2]. Количественных связей растворимости радионуклида в почвах ближнего следа со свойствами почв исследователям выявить не удалось, что также подтверждает вывод о включении части ^{137}Cs в выпадения в состав аэрозольных малорастворимых частиц топливной матрицы.

Согласно данным, приведенным в работе [7], вынос ^{137}Cs из слоя 0-5 см лесных почв за 8 месяцев 1989 года с лизиметрическими водами не превышал 0,1% от общего количества радионуклида в этом слое, что позволяет говорить о незначительном вкладе этого механизма в вертикальную миграцию радиоцезия в почвах.

К началу октября 1986 года значительная доля ^{137}Cs , попавшего в почву за пределами 30-километровой зоны, находилась в необменном состоянии [8]. Содержание различных форм ^{137}Cs в изученных почвах: количество воднорастворимого и обменного ^{137}Cs (в сумме) – от 16 до 36 %, прочносвязанного ^{137}Cs (не переходящего в вытяжку 3N HCl) – от 36 до 71 %. Величины коэффициентов распределения ^{137}Cs для почв, подвергшихся радиоактивному загрязнению, колебались от 14,3 до 370. На 82-99 % ^{137}Cs в почвах находился в необменной форме [9]. В почвах Белоруссии только 30-70 % ^{137}Cs обнаруживалось в необменном состоянии, и на некоторых почвах 70 % было в обменном состоянии [10, 11].

Существенная часть радионуклида, выпавшего после аварии на ЧАЭС, в течение длительного периода времени может находиться в доступной для растений форме [12].

Исследования, проводившиеся в Киевской, Житомирской и Гомельской областях, загрязненных в результате аварии на ЧАЭС, показали, что доля водорастворимых соединений ^{137}Cs в изученных почвах колебалась в пределах 1-9 %, переходящих в ацетатно-аммонийный буфер – 11-31 % и кислоторастворимых – 23-40 % [13]. По данным, полученным на дерново-подзолистых почвах Гомельской области, через 3,5 года после аварии на ЧАЭС относительное содержание радионуклидов цезия в воднорастворимом состоянии не превышало 1 %, в обменном состоянии (вытяжка 1N $\text{CH}_3\text{COONH}_4$) в целинных почвах находилось от 1,5 до 3 % радионуклидов, в пахотных почвах – от 5 до 10%, 3N HCl вытеснялось из целинной почвы 2-8% радионуклидов цезия, а из пахотной почвы – 10-15 %. На лугах после коренного улучшения также увеличивалось содержание подвижного радиоцезия по сравнению с целинными почвами [14]. В пробах почв, отобранных в Брянской и Тульской областях, содержание обменного ^{137}Cs через 2 года после аварии колебалось от 4 до 72 %.

Определение подвижных форм ^{137}Cs , экстрагируемых 1N раствором $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ при pH 4,8 и 1N раствором HCl в естественных почвах Украины на следе аварии ЧАЭС в течение 1988-1989 гг. показало, что подвижная фракция ^{137}Cs в разных почвах составляла 2-30 %, в том числе, в ацетатно-аммонийной вытяжке было 1-16%, в кислотной – 1-14% [15].

Целью работы было установление форм выпадения ^{137}Cs на различном удалении от Чернобыльской АЭС и исследование динамики форм нахождения радионуклида в почвах.

Материалы и методы

Характеристика района исследования. Район проведения исследований располагался в зоне Украинского и Белорусского Полесий на границе Киевской и Гомельской областей (рис. 1). Основными типами почв в данной зоне являются дерново-подзолистые связно-песчаные и супесчаные в комплексе с торфяно-болотными. В поймах рек распространены различные типы аллювиальных почв. Рельеф местности слабопересеченный с преобладанием равнинных участков. Среднегодовое количество осадков 586 мм. Среднемесячная температура января – 4.7°C, июля + 18.6 °C.

В результате аварии на ЧАЭС в пределах исследуемого района выпало наибольшее количество искусственных радионуклидов как в топливной, так и в конденсационной формах. При этом в составе радиоактивных выпадений спустя год после аварии преобладали радионуклиды ^{137}Cs – 62%, ^{134}Cs – 30% и ^{90}Sr – 7-8% [1].

Характеристика экспериментальных участков. Для оценки динамики трансформации форм ^{137}Cs и его биологической доступности для растений в 1988 г. в пределах зоны 0-35 километров на различном удалении от ЧАЭС на территории северного следа аварийного выброса была заложена сеть попарно-сопряженных стационарных полигонов или реперных участков (всего 12) [16-20]: один – на почве автоморфного ряда, другой – на почве гидроморфного ряда. При выборе участков учитывались как физико-химические свойства почв, так тип и плотность выпадений (рис. 1). Экспериментальные полигоны были заложены на естественных суходольных, низинных и пойменных лугах с разнотравно-злаковой растительностью с преобладанием злаковых трав. В таблице 1 приводится общая характеристика экспериментальных площадок.

Отбор проб почвы. Для изучения радиационно-экологической обстановки на опытных полигонах по общепринятым методикам [21-23] производился отбор почвенных и растительных проб. Почвенные пробы отбирались при помощи кольца диаметром 15 см и высотой 5 см. При изучении вертикальной миграции почва отбиралась послойно через 1-2 см с помощью совка с площадки 20x20 см [16-18].

γ-спектрометрия проб. Концентрацию ^{137}Cs и ^{144}Ce в почве и лизиметрических водах и растениях определяли на γ-спектрометрической установке типа IN-1200 (Франция) с полупроводниковым детектором типа JEM-1200 (США). Ошибка измерения составляла ± 10%.



Рис. 1. Схема расположения экспериментальных полигонов

Определение подвижных форм макроэлементов в почве. Содержание подвижных форм макроэлементов находили, извлекая последние из почв 0,2N раствором HCl в динамическом режиме до отрицательной пробы на Ca^{2+} в фильтрате. Объем пропущенного через навеску почвы массой 5-10 г исходного раствора был не менее 400 мл [16, 17]. В вытяжках определяли P_2O_5 по методу Кирсанова; калий, кальций, магний и марганец методом атомной адсорбции на "Perkin – Elmer" спектрофотометре; Al_2O_3 методом обратного титрования; Fe_2O_3 – колориметрически с использованием сульфосалициловой кислоты при pH >8 [24].

Характеристика почв экспериментальных полигонов

Площадка, номер	Расстояние от ЧАЭС, км	Ближайший населенный пункт	Тип почвы	Механический (гранулометрический) состав
1 2	5	с.Красное с.Красное	дерново-подзолистая дерново-подзолистая грунтово-оглеенная	песок связанный супесь
3 4	15 15	д.Уласы д.Уласы	дерново-подзолистая перегнойно-подзолистая грунтово-оглеен.	песок связанный супесь
5 6	35 35	д.Кажушки д.Кажушки	дерново-подзолистая торфяная низинная освоенная	песок связанный глина средняя*
7 8	20 20	д.Радин д.Радин	дерново-подзолистая торфяная низинная освоенная	супесь глина легкая*
9 10	7 7	с.Красное с.Красное	дерново-подзолистая аллювиальная лугово- болотная	супесь суглинок средний
11 12	25 25	д.Хвощевка д.Хвощевка	дерново-подзолистая дерново-подзолистая грунтово-оглеенная	супесь суглинок легкий

* – гранулометрический состав подстилающих пород

Расчет коэффициентов фракционирования. Коэффициенты фракционирования (обогащения) выпадений нелетучим ^{144}Ce ($t_{\text{кип}} = 3700^\circ\text{C}$) относительно легколетучего ^{137}Cs ($t_{\text{кип}} = 672^\circ\text{C}$) находили по формуле:

$$f_{144/137} = \frac{(A_{^{144}\text{Ce}} / A_{^{137}\text{Cs}})_{\text{эксн.}}}{(A_{^{144}\text{Ce}} / A_{^{137}\text{Cs}})_{\text{теор.}}} \times \exp[-(\lambda_{^{137}} - \lambda_{^{144}})\Delta t], \quad (1)$$

где $(A_{^{144}\text{Ce}} / A_{^{137}\text{Cs}})_{\text{эксн.}}$ – соотношение концентраций радионуклидов в образцах почв, $(A_{^{144}\text{Ce}} / A_{^{137}\text{Cs}})_{\text{теор.}}$ – соотношение концентраций радионуклидов в ядерном топливе в момент аварии для реактора РБМК-1000 с обогащением ядерного топлива ^{235}U 2% и выдержкой ядерного топлива 1 сут. По данным справочника [25] эта величина составляет 8.72. $\lambda_{^{137}}$ и $\lambda_{^{144}}$ – постоянные радиоактивного распада ^{137}Cs и ^{144}Ce , Δt – время (сут), прошедшее с момента аварии до измерения концентрации радионуклидов в почвенных образцах. Чем выше величина $f_{144/137}$, тем больше обогащены выпадения тугоплавкими топливными компонентами, т.к. ^{144}Ce в выпадениях ЧАЭС находится преимущественно в топливных частицах. Аналогичным образом определяется и $f_{90/137}$.

Определение форм нахождения радионуклидов в почвах. Содержание различных форм ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{144}Ce определялось в серии последовательных вытяжек [26]: водной (т:ж = 1:5), 1 н раствором CH_3OONH_4 , pH 7 (т:ж = 1:10), 1 Н раствором HCl (т:ж = 1:10), 3 н раствором HCl (т:ж = 1:10). Для образцов торфяных почв отношение твердой и жидкой фаз расширялось в 10 раз по сравнению с минеральными образцами [16, 17, 24].

Смесь почвы с раствором взбалтывали в течение 1 час, настаивали 24 час и фильтровали через плотный фильтр "синяя лента", после чего фильтрат упаривали до требуемого объема и определяли содержание ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{144}Ce в нем γ -спектрометрическим методом. К фильтрованию водной вытяжки приступали сразу после часового взбалтывания. Фильтрат вытяжек далее использовался для определения в нем ^{90}Sr оксалатным методом [21].

После прокаливания остатка почвы при 450°C в течение 5 час его дважды кипятили с 6N HCl в течение 30 мин. при соотношении т:ж = 1:5. После каждого кипячения образец

фильтровали и промывали дистиллированной водой. Далее, в фильтрате последовательно определяли ^{137}Cs и ^{90}Sr .

Статистическая обработка экспериментальных данных производилась общепринятыми методами [27], как правило, для уровня значимости 5%, правда, в некоторых случаях данные обрабатывались, исходя из уровня значимости 10%, что каждый раз особо оговаривалось.

Результаты и их обсуждение

Физико-химическая характеристика почв экспериментальных участков. Для установления связи между почвенными свойствами и подвижностью ^{137}Cs были определены основные физические и агрохимические показатели (табл. 2), а также гранулометрический состав (табл. 3) почв для двенадцати экспериментальных участков [16-18, 20]. Отмечено значительное варьирование определяемых показателей в зависимости от типа, а также в пределах одного типа почвы. Вместе с тем, все почвы характеризуются ненасыщенностью основаниями почвенного поглощающего комплекса (ППК) и кислыми рН водной и солевой вытяжек, которые несколько выше для перегнойно-торфяных почв (точки 6 и 8). Отмечается повышенное содержание фракции среднего песка (0.25 ± 0.05 мм): 51.71-79.91 % и низкое содержание физической глины (< 0.01 мм): 5.10-18.46 % для дерново-подзолистых почв автоморфного ряда. В гидроморфных почвах содержание фракции физической глины было существенно выше: 13.46-74.55 %, в результате чего они имеют более высокие, по сравнению с автоморфными почвами, значения емкости катионного обмена, содержания обменных и подвижных форм макроэлементов, оказывающих влияние на поступление радионуклидов в растения.

Нами была определена подвижность основных макроэлементов, полуторных окислов в почвах 12 экспериментальных участков, так как известно, что подвижность радионуклидов зависит от степени насыщения ППК основаниями, содержания в почве химических аналогов [6], а также веществ, способных окклюлировать радионуклиды (полутораокисей, фосфатов, органического вещества). В таблице 4 приведены доверительные интервалы содержания подвижных форм (извлекаемых 0.1 N HCl – вытяжкой) макроэлементов в почвах на уровне значимости 5 %. Нам представляется также разумным предложение [24] считать данные формы доступными для корневого усвоения растениями.

Таблица 2

Основные физические и химические показатели почв

Участок, №	$\rho_s,$ г/см ³	$\rho_b,$ г/см ³	Сорг., %	Е К О	Нг	рНводн.	рНсолев.	Зольность %
				мг-экв./100 г почвы				
1	1.20	2.56	1.66	4.30	5.21	4.72	3.70	97.30
2	1.17	2.49	3.52	14.59	12.67	4.70	3.82	90.77
3	1.32	2.52	3.27	9.55	9.44	4.29	3.82	92.28
4	0.62	2.31	8.64	25.21	26.91	3.94	3.36	80.65
5	1.22	2.57	2.52	8.45	6.38	4.87	4.30	95.26
6	0.30	1.74	21.36	95.75	37.03	5.87	5.21	48.08
7	1.04	2.58	3.61	11.14	6.60	5.13	4.57	92.86
8	0.25	1.66	28.32	132.4	22.42	6.52	5.87	32.51
9	1.29	2.60	1.33	4.97	5.13	4.66	3.94	96.73
10	0.43	2.21	10.58	43.18	18.78	5.14	4.48	73.42
11	0.60	2.33	5.46	17.06	15.45	4.82	4.15	87.39
12	0.58	2.40	5.35	22.55	13.35	4.66	4.05	86.75

Таблица 3

**Гранулометрический состав почв
экспериментальных участков в 30-км зоне**

Точка, №	Глубина, см	Потеря от обработки HCl,%	ФРАКЦИЯ, мм (%)						Сумма частиц размером, мм	
			1÷0,2	0,25÷ 0,05	0,05÷ 0,01	0,01÷ 0,005	0,005÷ 0,001	<0,001	<0,01	>0,01
1	0-10	0.13	31.4	58.97	4.47	0.27	1.86	2.84	5.10	94.90
2	0-10	0.40	17.7	56.41	12.44	2.27	4.27	6.52	13.46	86.54
3	0-10	0.87	27.7	61.02	4.34	1.28	1.57	3.18	6.90	93.10
4	0-10	0.53	17.4	59.42	8.43	2.80	3.99	7.39	14.71	85.29
5	0-10	0.20	32.8	55.60	2.08	2.90	1.81	4.63	9.54	90.46
6	0-10	8.16	3.0	0.47	22.01	2.55	16.44	47.40	74.55	25.45
7	0-10	1.73	15.7	51.71	15.97	3.17	2.79	10.71	16.67	83.33
8	0-10	15.5	5.7	2.50	30.50	5.79	6.67	48.82	61.28	38.72
9	0-10	0.94	1.0	79.91	11.23	1.91	1.88	4.04	17.83	82.17
10	0-10	5.19	2.3	44.86	16.19	5.15	7.41	24.07	36.63	63.37
11	0-10	2.56	3.1	64.03	14.45	4.52	3.80	10.14	18.46	81.54
12	0-10	2.35	1.3	52.66	17.49	5.67	8.04	14.85	28.56	71.44

Таблица 4

Содержание подвижных форм макроэлементов

Участок, №	K ₂ O	Na ₂ O	MgO	CaO	MnO	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	P ₂ O ₅	R ₂ O ₃
	мг /100 г. абсолютно-сухой почвы								
1	10.8± 0.3	4.3± 0.05	1.3± 0.1	17.9± 1.1	1.7± 0.01	86.4± 1.9	81.3± 0.4	4.5± 0.02	149.7± 12.9
2	29.7± 1.4	23.0± 1.2	4.2± 0.4	74.1± 5.5	2.1± 0.07	188.7± 1.6	355.9± 3.7	4.9± 0.2	554.0± 6.8
3	17.3± 0.03	6.5± 0.3	5.5± 0.02	57.8± 0.9	19.6± 0.2	124.9± 6.2	115.7± 5.8	21.0± 0.9	239.5± 21.5
4	63.5± 0.1	35.1± 0.4	12.1± 0.3	161.1± 6.4	10.0± 0.5	161.5± 1.3	377.5± 18.9	25.3± 0.5	522.6± 25.3
5	37.4± 0.5	7.8± 0.9	8.9± 0.1	106.4± 1.4	25.1± 0.2	117.3± 0.3	63.3± 3.2	27.3± 1.4	179.4± 24.0
6	134.7± 9.5	73.5± 17.6	147.3± 2.2	2542± 34	33.5± 0.3	554.6± 10.1	1039± 52	174.8± 8.7	1670± 63
7	36.1± 0.6	3.4± 0.2	26.5± 0.4	140.8± 38.1	25.3± 0.1	103.3± 1.0	89.9± 4.5	33.5± 1.0	250.1± 38.3
8	389.7± 16.6	58.4± 2.8	367.8± 1.0	2912± 6	39.1± 0.7	153.0± 8.0	1259± 63	195.1± 2.8	1676± 31.9
9	13.2± 0.5	6.0± 0.1	1.9± 0.04	30.1± 1.6	2.7± 0.1	97.6± 0.5	200.1± 1.1	1.6± 0.05	265.5± 31.3
10	96.0± 0.3	33.6± 0.4	28.7± 0.1	319.9± 4.0	9.5± 0.2	470.4± 1.2	578.6± 28.9	15.8± 1.7	1252± 100.4
11	54.2± 0.8	15.7± 1.1	12.0± 0.5	282.5± 9.9	22.7± 0.2	129.6± 0.4	466.8± 1.2	5.4± 0.4	487.4± 69.3
12	118.4± 1.0	24.0± 0.2	16.9± 0.04	253.2± 9.3	13.2± 0.1	203.7± 1.5	267.6± 2.2	14.7± 1.0	495.0± 31.4

Особенности радиоактивных выпадений аварийного выброса ЧАЭС на экспериментальных участках. В 1988-1990-м годах было проведено определение содержания в почвах четырех основных дозообразующих к этому моменту радионуклидов радиоактивных выпадений Чернобыльской катастрофы (⁹⁰Sr, ¹⁴⁴Ce, ¹³⁴Cs и ¹³⁷Cs) в пределах

30-километровой зоны вокруг ЧАЭС по ходу северного следа выброса. Результаты представлены в таблице 5 в пересчете на момент аварии. Из таблицы 5 видно, что концентрация вышеупомянутых радионуклидов в слое 0-5 см почв, значительно различается в зависимости от удаленности от ЧАЭС (для наиболее удаленных площадок 5, 6 и 11, 12 она на один – два порядка ниже, чем для остальных).

Анализ экспериментальных данных позволил выделить в пределах 30-км зоны Чернобыльской АЭС две подзоны, различающиеся характером выпадений радионуклидов – "ближнюю" и "дальнюю" [16-18, 20]. "Ближняя" зона, где изучение поведения радионуклидов в почвах и их переход естественно произрастающую злаковую растительность проводились на реперных участках 1, 2, 9 и 10, расположенных на расстоянии 5-7 км от ЧАЭС вблизи с. Красное, характеризуется преобладанием в выпадениях тугоплавких, топливных компонент, обогащенных нелетучими продуктами деления ядерного топлива, на что указывают высокие значения коэффициентов фракционирования ^{144}Ce относительно ^{137}Cs и ^{90}Sr относительно ^{137}Cs ($f_{144/137}$ и $f_{90/137} > 1$). В выпадениях "дальней" зоны преобладает конденсационная компонента. Они характеризуются низкими значениями $f_{144/137}$ и $f_{90/137} (< 1)$. К этой зоне относятся площадки 3, 4, 5, 6, 7, 8, 11, 12, расположенные на расстоянии 15-35 км от ЧАЭС (рис. 1).

Таблица 5

Радиоэкологическая характеристика почв загрязненных участков

Участок, №	Расстояние от ЧАЭС, км	Содержание радионуклидов кБк/кг почвы				Коэффициенты фракционирования, f	
		^{90}Sr	^{144}Ce	^{134}Cs	^{137}Cs	144,137	90,137
1	5	43.4	1432	28.9	60.1	2.14	1.14
2	5	57.4	1734	39.4	83.5	2.19	0.91
3	15	14.0	325.0	72.1	144.2	0.29	0.14
4	15	17.4	662.0	96.2	194.3	0.31	0.16
5	35	2.2	33.0	7.8	15.6	0.26	0.23
6	35	6.2	223.0	46.0	91.9	0.24	0.13
7	20	9.9	291.0	73.8	152.8	0.17	0.12
8	20	33.0	1027	281.4	582.4	0.17	0.06
9	7	139.2	2747	59.8	133.9	2.35	0.94
10	7	338.5	8426	193.1	419.0	2.69	1.22
11	30	5.2	162.0	12.5	25.5	0.59	0.32
12	30	2.7	72.0	9.5	19.3	0.33	0.31

Относительное содержание различных форм радиологически-значимых радионуклидов в зависимости от характеристик радиоактивных выпадений аварийного выброса ЧАЭС и свойств почв. Изучение радиологической обстановки на границе Украинского и Белорусского Полесий, проведенное еще в 1965-70-х гг. показало, что этот район отличается необычно высокой подвижностью ^{137}Cs глобальных выпадений в системе почва-растение благодаря особенностям почвенно-растительного покрова. [28, 29, 30]. Значения коэффициентов накопления (КН) ^{137}Cs растениями здесь составляли 1.8-2.5, что на порядок выше значений, наблюдаемых для большинства регионов бывшего СССР. Это объяснялось слабым закреплением ^{137}Cs в легких по гранулометрическому составу дерново-подзолистых почвах при сильном увлажнении. Подтверждением того, что данная закономерность будет наблюдаться для почв экспериментальных участков, могут служить данные по гранулометрическому составу почв экспериментальных участков (табл. 3). Из нее видно, что содержание физической глины в дерново-подзолистых почвах колеблется от 5.1 до 18.5 %, т.е. почвы являются легкими по гранулометрическому составу.

Форма выпадения имеет исключительно важное значение для изучения поведения радионуклидов в почве. В результате аварии на Чернобыльской АЭС радиоактивные вещества поступили на поверхность земли в виде двух основных компонент – конденсационной (струйной) и в виде твердых высокоактивных аэрозолей, причем

последняя компонента включала в себя как частицы композитного материала - графита, сорбировавшие прежде всего легколетучие радионуклиды, такие как $^{134,137}\text{Cs}$, так и частицы топливной матрицы UO_2 , а также уран-циркониевые и циркониевые частицы, обогащенные нелетучими радионуклидами, например, ^{90}Sr , ^{95}Zr , ^{141}Ce , ^{144}Ce и др. С течением времени, в результате трансформации топливных частиц и поглощения радионуклидов почвой снижается роль формы выпадения и возрастает роль форм нахождения радионуклидов в почвах, которая и определяет их поведение в системе "почва-растение".

Анализ относительного содержания радионуклидов, извлекаемых различными экстрагентами, позволяет определить преобладающие формы их нахождения в почвах и оценить степень доступности растениям. Проведение мониторинга относительного содержания различных форм радионуклидов и, прежде всего ^{137}Cs , в почвах необходимо для нахождения параметров, характеризующих процесс фиксации радионуклидов в почвах.

В таблице 6 приведены доверительные интервалы для относительного содержания различных форм ^{137}Cs в почвах [16, 17].

Таблица 6

Содержание различных форм ^{137}Cs в исследованных почвах (%)

Точка, №	Содержание ^{137}Cs (%), извлекаемого реагентами					
	H_2O	1N. NH_4Ac , (pH 7,0)	1N HCl	3N HCl	6N HCl	остаток
1	0.04 ± 0.003	2.42 (2.20±0.16)	4.45 ± 2.76 (3.94±0.55)	17.72 ± 0.29 (22.99±2.69)	55.36 ± 30.29 (61.09±7.29)	- (9.7±2.4)
2	0.04 ± 0.004	3.47 ± 0.95 (2.38±0.27)	3.96 ± 1.87 (1.87±0.28)	19.27 ± 9.78 (9.32±0.96)	61.92 ± 0.21 (77.02±7.94)	- (9.4±0.9)
3	0.07 ± 0.01	16.83 ± 0.16 (5.14±0.07)	14.94 ± 0.41 (7.48±0.99)	28.84 ± 4.01 (23.07±4.59)	36.56 ± 3.67 (57.16±11.45)	- (7.1±1.6)
4	0.86 ± 0.26	14.19 ± 9.28 (10.16±3.06)	10.06 ± 4.35 (7.78±1.67)	19.38 ± 3.18 (18.50±2.40)	42.93 ± 10.72 (45.68±6.46)	- (7.0±3.2)
5	0.15 ± 0.03	10.83 ± 3.16 (8.32±1.51)	17.14 ± 3.51 (11.54±0.83)	17.46 ± 6.65 (21.17±1.45)	75.82 (54.37±5.09)	- (4.5±0.3)
6	0.07 ± 0.02	0.78 ± 0.11 (4.81±1.56)	2.10 ± 0.25 (4.85±1.18)	7.12 ± 0.50 (13.17±2.81)	61.43 ± 7.09 (58.10±8.30)	- (9.0±4.4)
7*	0.47 ± 0.03	13.04 ± 0.78	11.72 ± 1.14	18.03 ± 1.63	54.01 ± 4.66	2.7 ± 0.4
8*	0.63 ± 0.22	7.53 ± 2.71	7.55 ± 2.14	16.43 ± 2.64	62.76 ± 3.95	5.1 ± 0.4
9*	0.20 ± 0.001	8.19 ± 0.06	5.86 ± 0.44	не опр.	81.30 ± 1.45	4.5 ± 0.4
10*	0.04 ± 0.005	3.50 ± 0.47	2.11 ± 0.23	не опр.	79.21 ± 3.30	5.1 ± 1.8
11*	0.06 ± 0.00	2.54 ± 0.27	2.97 ± 0.30	6.96 ± 0.66	77.49 ± 7.81	10.0 ± 1.3
12*	3×10^{-3}	1.66 ± 0.28	1.08 ± 0.07	4.11 ± 0.33	83.69 ± 3.53	9.5 ± 0.9

* - данные 1990 г.

** - без скобок приведены данные 1988 г. ($n=5, q=0.05$); в скобках – 1990 г. ($n=9, q=0.05$)

Относительное количество ^{137}Cs в обменной форме (вытяжка 1N раствором NH_4Ac pH 7.0) в 1990 году ниже, чем в 1988 году (табл. 6). Это свидетельствует о "фиксации" ^{137}Cs почвами. Подтверждают этот вывод данные по содержанию различных форм ^{137}Cs , приведенные в таблице 7. В почвах, расположенных в "ближней" к реактору зоне, где преобладает топливная компонента радиоактивных выпадений, количество радионуклида, извлекаемого 1N растворами ацетата аммония и соляной кислоты в 1987 г. было выше, чем в 1988 и в 1990 гг. Диаграммы относительного содержания в них обменной и подвижной форм ^{137}Cs в 1987, 1988, 1990 гг. изображены на рисунках 2 и 3. В 1987 году почвы "ближней" зоны содержали и большее количество ^{137}Cs не извлекаемого после кипячения с 6N раствором HCl. Подобное поведение радионуклида может быть следствием неполной

трансформации топливных частиц, на что указывает и низкое содержание обменной и подвижной форм ^{90}Sr в 1987 г. (табл. 8) в почвах, отобранных в "ближней" (с. Красное) и в "дальней" (д. Радин) зонах.

Таблица 7

Содержание (%) различных форм ^{137}Cs в слое 0-5 см почв экспериментальных участков в 30-км зоне ЧАЭС (1987)

Участок	Тип почвы	Содержание ^{137}Cs (%), извлекаемого реагентами				
		1N NH_4Ac , (рН 7.0)	1N HCl	3N HCl	6N HCl	остаток
Красно	Дерново-подзолистая связно-песчаная	9.3	5.3	17.7	38.6	29.2
Красно	Дерново-подзолистая грунтово-оглеенная	5.9	3.1	18.6	51.6	20.8

Таблица 8

Содержание (%) различных форм ^{90}Sr в слое 0-5 см почв экспериментальных участков в 30-км зоне ЧАЭС (1987)

Участок	Тип почвы	Концентрация ^{90}Sr , Бк/кг	Содержание ^{90}Sr (%), извлекаемого реагентами		
			1N NH_4Ac , (рН 7.0)	1N HCl	6N HCl
Радин	Дерново-подзолистая связно-песчаная	10303	20.7	25.0	54.3
Красно	Дерново-подзолистая связно-песчаная	86220	10.0	16.8	73.2

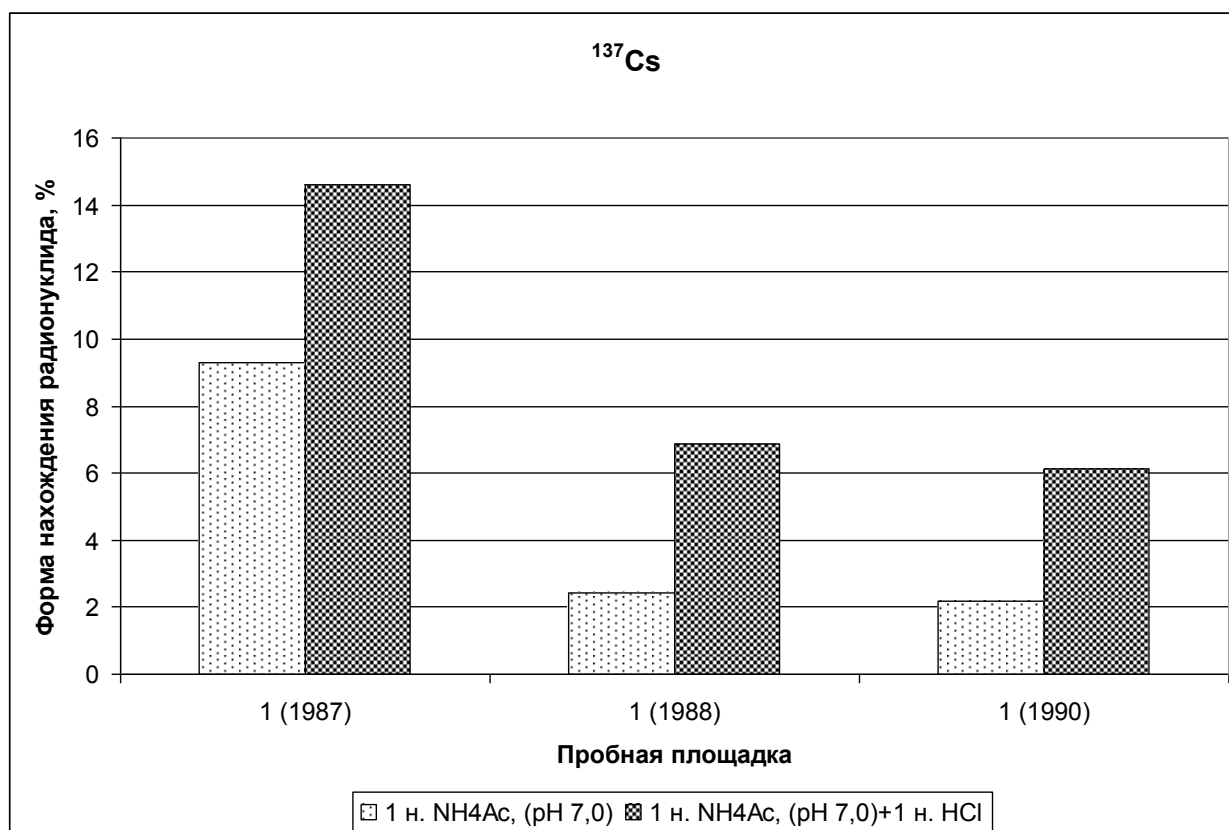


Рис. 2. Изменение относительного содержания обменного и подвижного ^{137}Cs (сумма обменного и извлекаемого 1N HCl) в дерново-подзолистой связанно-песчаной почве (с. Красное)

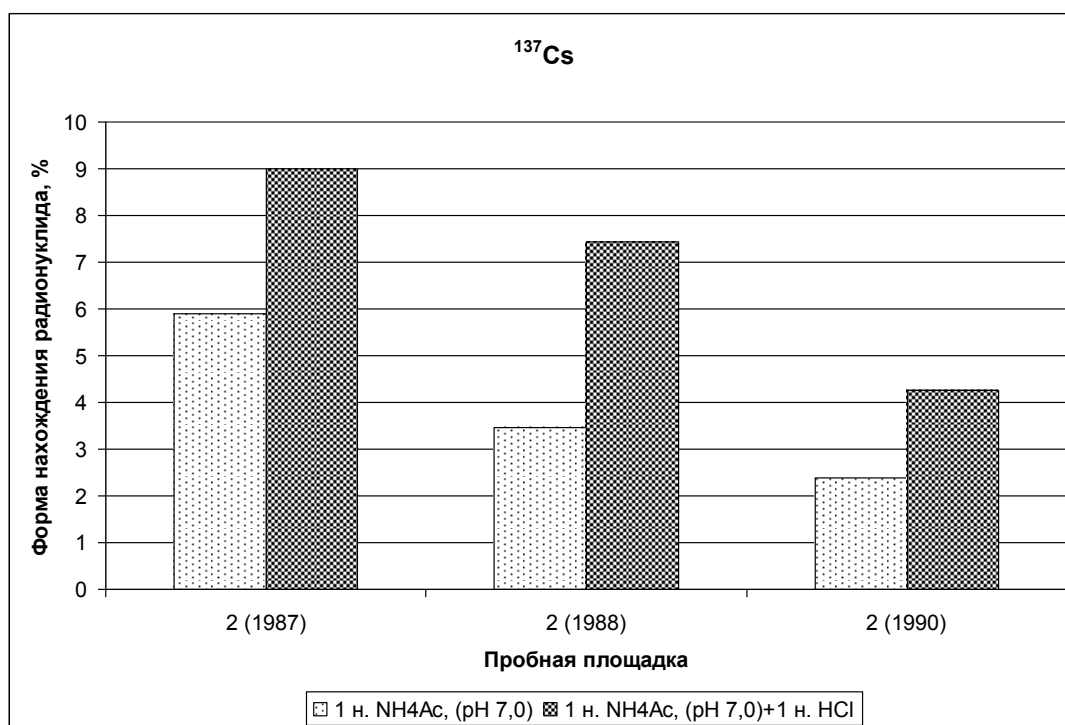


Рис. 3. Изменение относительного содержания обменного и подвижного ^{137}Cs (сумма обменного и извлекаемого 1N HCl) в дерново-подзолистой грунтово-оглеенной почве (с. Красное)

Результаты определения различных форм нахождения ^{144}Ce в почвах в 1990 году [16, 17], приведенные в таблице 9, свидетельствуют о полной трансформации к этому времени топливной матрицы (в таблице 9 приведены доверительные интервалы для плотности загрязнения и относительного содержания ^{144}Ce в слое почв 0-5 см для уровня значимости 5%). 1N раствором HCl из почв в "ближней" зоне извлекается 78-98% всего ^{144}Ce . Разрушение топливных частиц при pH около нуля говорит об их сильной трансформации. Для почв "дальней" зоны аналогичная процедура позволяет извлечь 54-75% от валового количества ^{144}Ce . Остальная часть радионуклида находится в фиксированном почвенными частицами состоянии.

Таблица 9

Содержание различных форм ^{144}Ce в слое 0-5 см почв экспериментальных участков в 30-км зоне ЧАЭС (1990 г.)

Точка, N	Общее содержание ^{144}Ce на момент аварии, кБк/м ²	Содержание ^{144}Ce (%), извлекаемого реагентами				
		H ₂ O	1N NH ₄ Ac	1N HCl	6N HCl	остаток
1	85910±6313	-	1.72±0.13	84.59±6.32	7.30±0.52	6.39±0.48
2	101452±10782	-	2.94±0.36	85.42±8.79	8.12±1.54	3.52±0.36
3	21458±1516	-	-	46.90±5.86	53.10±6.04	-
4	20528±3673	-	-	65.76±10.09	34.25±9.01	-
5	2010±224	-	-	57.79±3.51	42.21±14.65	-
6	3341±615	-	-	57.49±12.37	42.51±8.44	-
7	15131±636	-	-	32.93±2.51	52.38±0.57	14.69±1.12
8	12837± 275	-	-	17.55±1.10	64.85±4.35	17.60±1.11
9	177171± 11262	-	-	97.48±6.20	-	2.52±0.16
10	181169± 6158	-	1.77±0.02	77.61±0.31	18.23±3.70	2.39±0.01
11	4848±495	-	-	58.44±3.94	41.56±6.27	-
12	2076±344	-	-	58.03±9.63	41.97±6.96	-

$n=5, q=0,05$

К аналогичным выводам приводят результаты определения различных форм нахождения ^{90}Sr в почвах [16, 17]. В таблице 10 приведены доверительные интервалы для плотности загрязнения ^{90}Sr почв, концентрации радионуклида и относительного содержания его в слое 0-5 см на уровне значимости 5%.

Таблица 10

Содержание различных форм ^{90}Sr в слое 0-5 см почв 30-км зоны ЧАЭС (1990 г.)

Точка, №	Общее содержание ^{90}Sr на момент аварии, кБк/м ²	Содержание ^{90}Sr (%), извлекаемого реагентами:			
		H ₂ O	1N NH ₄ Ac	1N HCl	6N HCl
1	2601±104	не опр.	69.11±4.15	28.53±1.43	2.37±0.17
2	3357±108	не опр.	68.43±2.18	28.42±0.90	3.15±0.10
3	922.4±50.3	2.65±0.26	24.94±2.83	15.66±2.23	56.74±7.61
4	540.0±53.2	0.81±0.07	51.21±4.44	22.70±5.39	25.28±0.05
5	133.3±12.4	1.49±0.14	26.67±3.52	15.23±1.10	56.68±4.67
6	92.6±13.5	0.90±0.13	19.18±2.80	23.74±3.47	56.17±8.20
7	515.7±36.9	2.49±0.12	40.34±13.28	16.89±1.41	40.27±6.24
8	413.0±26.5	2.05±0.13	16.36±1.50	19.80±2.09	61.79±2.71
9	8977±1205	не опр.	69.79±9.37	26.66±3.58	3.55±0.48
10	72781±17.3	не опр.	58.00±1.23	26.88±0.64	15.12±0.36
11	155.7±3.4	2.09±0.07	40.87±3.03	24.57±1.11	32.45±0.78
12	78.2±2.3	3.70±0.33	55.86±2.78	27.97±1.97	12.46±1.00

$n=3, q=0,05$

Из этой таблицы следует, что водная, ацетатная вытяжки и вытяжка 1N HCl в сумме извлекают из почв "ближней" зоны (84.9-97.6 %) ^{90}Sr , что значительно превышает количество радионуклида, переходящего в эти вытяжки для почв "дальней" зоны (38.2- 87.5 %), а также количество радиоцезия, извлеченное из почв "ближней" (с. Красное) и "дальней" (д. Радин) зон в 1987 году (26.8 % и 45.7 % соответственно). Причем, для всех почв "дальней" зоны количество ^{90}Sr , извлекаемого после озоления образца кипячением с 6N HCl максимально и составляет от 12.5 до 61.8%. Это свидетельствует о существенной роли органического вещества в закреплении ^{90}Sr в почве. Таким образом, поведение ^{90}Sr в "ближней" зоне в 1990 г. не отличается от поведения ^{90}Sr глобальных выпадений [26, 31, 32] или внесенного в почву (но не на растительную подстилку или степной войлок) в водорастворимой форме.

Ввиду трансформации топливной матрицы, содержащей продукты деления, и имеющей ромбическую кристаллическую решетку, UO_2 переходит в растворимую только в сильных кислотах аморфную закись-окись урана U_3O_8 под воздействием кислорода воздуха. При этом происходит разрушение кристаллической структуры UO_2 и, находившиеся внутри кристаллов двуокиси урана продукты деления выходят из кристаллических структур и подвергаются выщелачиванию различными реагентами; ^{90}Sr – уже 1N раствором ацетата аммония при pH 7.0, а ^{144}Ce – 1N раствором HCl. Этим, а также наличием значительного количества ^{137}Cs в частицах композитного материала (прежде всего графита) и объясняется повышенная подвижность (в том числе и в системе "почва-растение") радионуклидов ^{137}Cs , ^{90}Sr , находящихся в почвах "ближней" зоны. Известно [33], что характерной особенностью искусственно полученного графита является его пористость, оказывающая существенное влияние практически на все свойства графита. Объем пор составляет от 2-3 % для пирографита до 80-85% для других видов графита. С большинством металлов и их оксидов, а также со многими неметаллами графит дает карбиды. Графит образует соединения с различными элементами при внедрении атомов, ионов или молекул между углеродными слоями его кристаллической решетки. Образование соединений графита сопровождается разбуханием (вследствие раздвигания углеродных слоев и существенным изменением его электрических свойств. Соединения со щелочными металлами могут иметь составы C_8Me , C_{16}Me , C_{24}Me , C_{36}Me , C_{40}Me , C_{64}Me . Соединение C_8Me имеет следующую структуру: атомы металла располагаются над центрами гексагональных колец из атомов углерода. В соединении C_{16}Me атомы металла расположены также, но только между каждой парой слоев графита. Аналогично построены и другие соединения. В случае C_{64}Me один металлический слой приходится на восемь углеродных. По уменьшению деформирующего действия на решетку графита при образовании слоистых соединений щелочные металлы располагаются в ряд: Cs, Rb, K, Na, Li. Соединения с графитом образуют также другие металлы: Ba, Sr, Zn, Cd и многие редкоземельные элементы.

Исходя из вышеизложенного, резонно допустить, что под влиянием десорбентов (в частности, корневых выделений растений) ^{137}Cs , находящийся в межпакетном пространстве графита, переходит в раствор и медленно диффундирует к поверхности графитовой частицы, причем скорость диффузии определяется размером пор. Таким образом, вследствие особенностей строения графита (высокая пористость и способность к межслоевому поглощению элементов) количество выщелачиваемого из него ^{137}Cs прямо пропорционально времени выщелачивания, что объясняет факт незначительного вытеснения радионуклида 1N растворами NH_4Ac и HCl при использовании стандартной методики [26] (ограниченной по времени выщелачивания 1 сут.) в почвах "ближней" зоны (табл. 6) при высоком накоплении его в растениях [16].

Как следует из экспериментальных данных, полученных в 1990 году для слоя почв 0-5 см в 30-км зоне ЧАЭС, относительное количество ^{90}Sr , переходящего в водную вытяжку (0.81-3.70 %), (табл. 10), в среднем, в 9.2 раза больше, чем относительное количество ^{137}Cs , извлекаемого дистиллированной водой, (0.04-0.86 %). Содержание ^{90}Sr в обменной форме в слое почв 0-5 см в 1990 году составило 16.4-69.1%, что, в среднем, в 7.8 раз выше, чем содержание обменного ^{137}Cs : 1.7-13.0 %. Различие в количестве подвижной формы этих радионуклидов было намного меньше. Относительное содержание ^{90}Sr , извлекаемого 1N раствором HCl (15.2-28.5 %) было, в среднем, в 4.0 раз больше, чем ^{137}Cs (1.1-11.7 %). Эти данные говорят о большей подвижности ^{90}Sr в почве.

Динамика и периоды полуменьшения содержания различных форм ^{137}Cs в почвах. Исключительно важную роль в прогнозировании поведения ^{137}Cs в почвах играет динамика содержания в них различных форм радионуклида (водорастворимой, обменной, подвижной, кислоторастворимой).

Снижение содержания подвижной формы ^{137}Cs в почве с течением времени указывает на наличие чрезвычайно важного процесса фиксации радионуклида минеральной компонентой. Этот процесс значительно уменьшает подвижность находящегося в почве ^{137}Cs и делает его недоступным для корневого усвоения растениями, что приводит к снижению содержания радионуклида в сельскохозяйственной продукции на загрязненной территории за счет природных биогеохимических процессов, протекающих в почве.

В таблице 11 приведена динамика относительного содержания водорастворимой, обменной и экстрагируемой 1N HCl форм ^{137}Cs в почвах экспериментальных участков 30-километровой зоны ЧАЭС в 1988, 1990 и 1992 гг. За этот период для исследованных почв наблюдалось снижение содержания обменной (в 1.3-3.3 раза) и подвижной (в 1.1-2.0 раза) форм ^{137}Cs в почвах в результате процессов "старения" радионуклида.

Таблица 11

Содержание различных форм ^{137}Cs (%) в почвах экспериментальных участков в 30-километровой зоне ЧАЭС

Участок, №	Содержание ^{137}Cs (%), извлекаемого реагентами							
	H_2O		1N NH_4Ac , (pH 7,0)			1N HCl		
	1990	1992	1988	1990	1992	1988	1990	1992
1	0.04+ 0.003	0.06+ 0.01	2.4	2.20+ 0.06	0.61+ 0.06	4.0+ 1.0	3.9+ 0.2	1.65+ 0.05
2	0.04+ 0.004	0.026+ 0.005	3.5+ 0.3	2.4+ 0.1	1.5+ 0.4	4.0+ 0.7	1.9+ 0.1	2.10+ 0.06
3	0.07+ 0.01	0.15+ 0.07	16.83+ 0.06	5.14+ 0.03	8.0+ 2.0	14.9+ 0.2	7.5+ 0.4	6.8+ 0.6
4	0.9+ 0.3	0.5+ 0.1	14.0± 3.0	10.0+ 1.0	20.0+ 2.0	10.0+ 2.0	7.8+ 0.6	9.8+ 0.9
5	0.15+ 0.03	0.01	11.0+ 1.0	8.3+ 0.5	7.6+ 0.3	17.0+ 1.0	11.5+ 0.3	7.0+ 1.0
6	0.07+ 0.02	0.18+ 0.03	0.78+ 0.04	4.8+ 0.6	1.0+ 0.2	2.10+ 0.09	4.9+ 0.4	3.5+ 0.3

Были определены периоды полуменьшения относительного содержания радионуклида в обменной и кислоторастворимой (извлекаемой 1N раствором HCl) формах соответственно: т. 1 – 2.04 и 3.15 лет; т. 2 – 3.30 и 4.33 лет; т. 3 – 3.65 и 3.47 лет; т. 5 – 7.70 и 3.15 лет [16,17]. Однако, следует отметить, что на торфяной почве (участок 6) наблюдалось некоторое увеличение относительного содержания этих форм радионуклида в связи с разложением растительности и органического материала, первоначально сорбиовавших ^{137}Cs , что не привело, однако, к аналогичному увеличению поступления ^{137}Cs в растения. Возможно, это было связано со снижением уровня грунтовых вод в 1990 г. по сравнению с 1988 г. вследствие ирригационных мероприятий на данном участке.

Для получения обобщенных закономерностей фиксации ^{137}Cs в почвах автоморфного и гидроморфного ряда, а также в перегнойно-торфяных почвах, расположенных на различном удалении от ЧАЭС по ходу северного следа аварийного выброса, мы использовали обширную выборку, в которую наряду с данными по 12 экспериментальным участкам, включили материалы исследований, опубликованные в работе [20]. Снижение относительного содержания обменного и подвижного (сумма обменного и экстрагируемого 1N раствором HCl) ^{137}Cs с течением времени для разных типов почв в зависимости от расстояния от в 30-км зоне ЧАЭС приведены на рисунке 4.

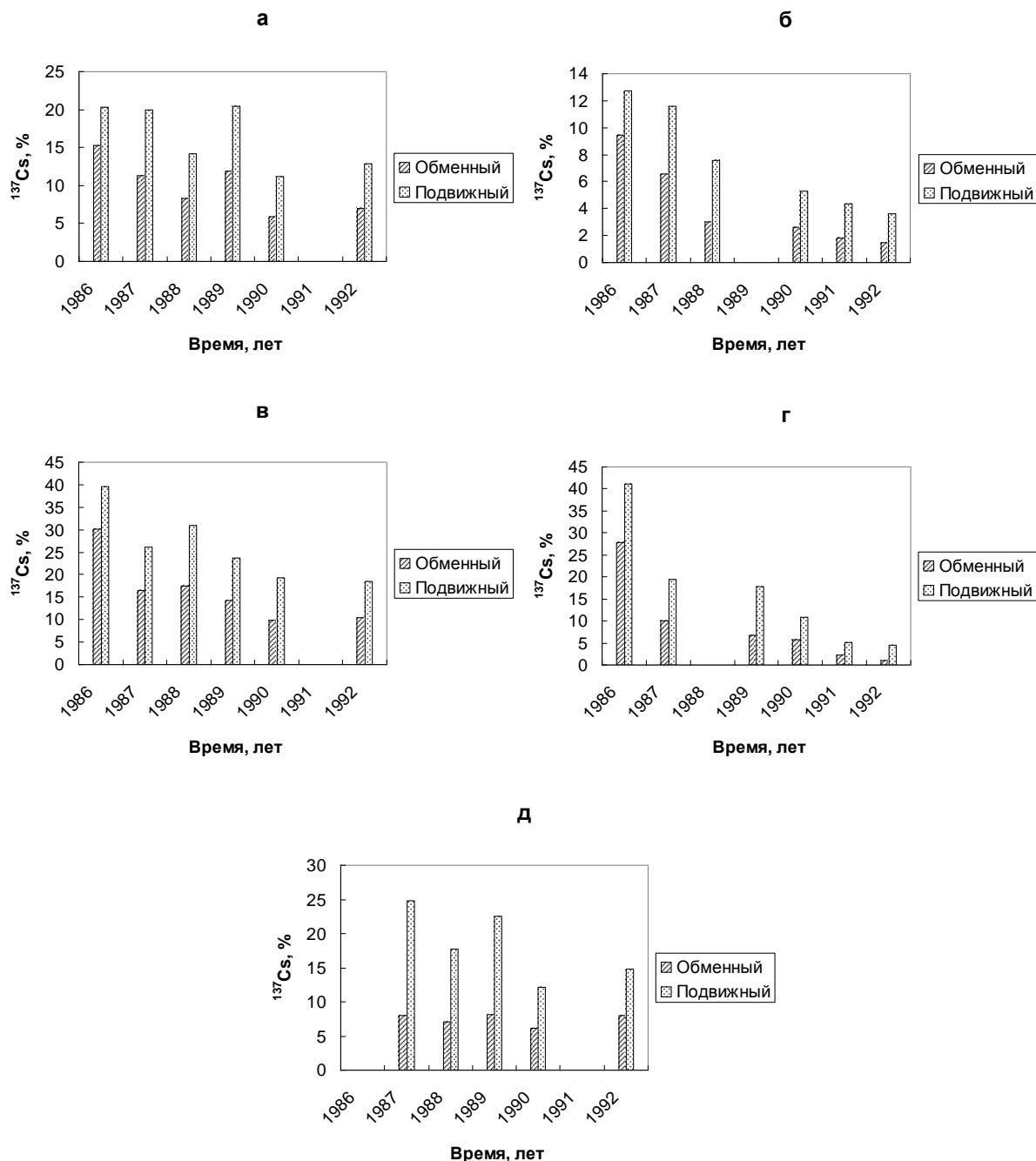


Рис. 4. Изменение относительного содержания обменной и подвижной форм ^{137}Cs в почвах 30-километровой зоны ЧАЭС: а) автоморфные почвы “ближней” (2-15 км) зоны; б) гидроморфные почвы “ближней” (2-15 км) зоны; в) автоморфные почвы “дальней” (15-50 км) зоны; г) гидроморфные почвы “дальней” (15-50 км) зоны; д) перегнойно-торфяные почвы “дальней” (15-50 км) зоны

В течение первого года с момента аварии на ЧАЭС наряду с высоким содержанием доступного ^{137}Cs в ППК, определяемого как сумма обменного и извлекаемого ^{137}Cs раствором HCl , происходил процесс дополнительного поступления радионуклида в почвенный поглощающий комплекс в результате разложения охеса и верхнего слоя дернины, сорбиовавших основное количество выпавшего в результате аварии на Чернобыльской АЭС ^{137}Cs , а также быстрой трансформации и извлечения радиоцезия из наименее устойчивых топливных частиц (сажа, оксиды и карбонаты свинца, карбиды и мелкодисперсные частицы оксидов урана). Это обеспечивало высокое содержание обменной и подвижной форм ^{137}Cs в вытяжках из почв, а также очень высокую скорость процесса фиксации радиоцезия в течение первого периода после аварии (особенно в гидроморфных почвах), так как скорость процесса фиксации ^{137}Cs почвой (dC/dt) прямо пропорциональна количеству радионуклида в доступной форме (рис. 4: а, б, в, г). Следует отметить, что в гидроморфных почвах вышеуказанные процессы протекают значительно интенсивнее, чем в автоморфных. Как и следовало ожидать, для торфяных почв (рис. 4 д) не наблюдалось достоверного снижения содержания обменной и подвижной форм ^{137}Cs , что легко объяснить почти полным отсутствием у торфяных почв минеральной компоненты, способной фиксировать радиоцезий. Для автоморфных почв, расположенных в "ближней" зоне (2-15 км), (рис. 4 а) процесс уменьшения относительного содержания обменной и подвижной форм ^{137}Cs можно описать экспоненциальным уравнением с двумя различными параметрами вида:

$$C(^{137}\text{Cs}) = \exp(C_0 + bt), \quad (2)$$

где $C(^{137}\text{Cs})$ – процентное содержание соответствующей формы ^{137}Cs в почве;

C_0, b – различные параметры; t – время, прошедшее с момента аварии.

Коэффициенты C_0 и b в линейной части уравнения типа (2) для относительного содержания в почвах обменного и подвижного ^{137}Cs в автоморфных почвах "ближней" зоны за период 1986–1992 гг. равны, соответственно, 2.60, -0.15 и 3.00, -0.10. Периоды полууменьшения относительного содержания обменной и подвижной форм ^{137}Cs в почвах равны 3.7 и 7.0 лет соответственно. По мере того, как основное количество радионуклида, первоначально выпавшего на поверхность земли, переходит в результате разложения дернины и разрушения топливных частиц в ППК (в основном, в течение первого года после аварии [20]), а из почвенного поглощающего комплекса в результате процессов диффузии и вторичной адсорбции внутрь кристаллической решетки глинистых минералов, скорость фиксации ^{137}Cs почвой замедляется.

Для гидроморфных почв "ближней" зоны вследствие высокой скорости процессов разложения растительных остатков и разрушения наименее устойчивых топливных частиц в течение первого года после аварии, наблюдается повышенная скорость процесса уменьшения десорбции обменного и подвижного ^{137}Cs в течение периода (1986-1992 гг) (рис. 4 б). Снижение относительного содержания обменного и подвижного радиоцезия описывается уравнением типа (2) с коэффициентами C_0 и b равными 2.07, -0.29 и 2.57, -0.22 соответственно, и периодами полууменьшения содержания обменной и подвижной форм ^{137}Cs 1.8 и 3.2 года.

Для автоморфных почв "дальней" зоны (рис. 4 в) также наблюдается снижение десорбции радиоцезия в течение периода исследований 1986- 1992 гг. Этот процесс описывается при помощи регрессионного уравнения типа (2) с параметрами C_0 и b для обменной и подвижной форм ^{137}Cs 3.16, -0.16 и 3.54, -0.11 соответственно. Периоды полууменьшения содержания обменной и подвижной форм ^{137}Cs 2.7 и 4.8 года.

Для гидроморфных почв "дальней" зоны (рис. 4 г) при описании процессов десорбции обменного и подвижного радиоцезия снижение относительного содержания в почвах вышеуказанных форм радионуклида, хорошо описывается уравнением (2) с коэффициентами C_0 и b равными 3.34, -0.50 для обменной и 3.71, -0.36 для подвижной ^{137}Cs и периодами полууменьшения содержания обменной и подвижной форм ^{137}Cs 1.4 и 1.9 года.

Значения периодов полууменьшения содержания вышеуказанных форм ^{137}Cs в почвах 30-км зоны ЧАЭС обобщены в таблице 12.

**Периоды полууменьшения содержания обменной
и подвижной форм ^{137}Cs в почвах**

Расстояние от ЧАЭС, км									
2-15					15-55				
Тип почвы									
Автоморфные		Гидроморфные		Автоморфные		Гидроморфные		Торфяные	
О	П	О	П	О	П	О	П	О	П
3.7	7.0	1.8	3.2	2.7	4.8	1.4	1.9	24.9	6.3

О – обменная форма, П – подвижная форма

Полученные количественные значения показывают, что периоды полууменьшения содержания обменной и подвижной форм ^{137}Cs зависят от форм выпадений и свойств почв. Для “ближней” зоны эти периоды в 1.5 – 2.0 раза длиннее, чем для “дальней”, а для гидроморфных почв они короче, в среднем, в 1.5 – 2.0 раза, чем для автоморфных почв.

Таким образом, в результате проведения комплекса полевых работ в 30-км зоне Чернобыльской АЭС и лабораторных исследований [16, 20] по изучению поведения основных радиологически значимых радионуклидов - продуктов деления ядерного топлива» и прежде всего ^{137}Cs , в природных экосистемах были получены результаты, свидетельствующие о существенном различии в миграционной способности ^{137}Cs глобальных выпадений и “чернобыльского”, Это обусловлено тем, что радионуклид “чернобыльских” выпадений, в отличие от глобального, поступил на поверхность земли не только в водорастворимой форме, но и в составе частиц ядерного топлива и композитных материалов различной дисперсности. Образованию большого количества мелкодисперсных частиц способствовал бризантный (объемный) характер взрыва реактора. На территории 30-километровой зоны вокруг Чернобыльской АЭС были выделены 2 зоны, различающиеся по форме выпадения радионуклидов. В первой, которая была названа “ближней” зоной, преобладала топливная компонента (коэффициенты фракционирования нелетучих ^{144}Ce и ^{90}Sr относительно легколетучего ^{137}Cs больше или равны 1); во второй, названной “дальней” зоной, преобладала конденсационная компонента (коэффициенты фракционирования ^{144}Ce и ^{90}Sr относительно ^{137}Cs < 1).

В пределах двух выделенных зон поведение радионуклидов в системе “почва-растение” весьма различно. В “ближней” к реактору зоне свойства ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{144}Ce в значительной степени определяются вхождением их помимо ППК (почвенного поглощающего комплекса) в состав трансформированных топливных частиц.

В течение первого периода после аварии (1986-1988 гг.) частицы ядерного топлива претерпели значительные метаморфические изменения под влиянием, прежде всего, кислорода воздуха и воды, находящиеся в них радионуклиды – продукты деления стали более доступны для корневой системы растений. Так, содержание в почвах подвижного ^{90}Sr , находящегося, в основном, в топливной матрице, в 1987 г. было 26.8 % в “ближней” зоне (с. Красно) и 45.7% в “дальней” зоне (д. Радин), что в 3.6 и 1.3 раза меньше содержания подвижного ^{90}Sr в 1990 г. О практически полной трансформации топливной матрицы в 1990 г. свидетельствуют данные об относительном содержании различных форм нахождения ^{144}Ce в почвах “ближней” зоны. При помощи вытяжки 1N раствором HCl удалось извлечь из этих почв от 77.6 до 97.5 % валового количества радионуклида. Подтверждают также факт трансформации топливных частиц и данные по количеству ^{137}Cs , не извлекаемого из автоморфной и гидроморфной почв “ближней” зоны (с. Красное) после двукратного кипячения с 6N HCl с предварительным озолением почвы при 450° С в течение 6 час. Если в 1987 году эти величины составляли 29.2 и 20.8 % соответственно, то уже в 1988 г: 11.4 % (есть достоверные данные только для гидроморфной почвы), а в 1990 году: 9.7 и 9.4 %. Естественно предположить, что основная часть радиоцезия в остатке, не поддающемся выщелачиванию, в 1987 году входила в состав первичной топливной матрицы. Вследствие трансформации топливных частиц уже в 1988 г. подвижность в почве и, как следствие, доступность для корневого усвоения растениями ^{137}Cs , входящего в состав

трансформированной топливной матрицы, была выше, чем подвижность радионуклида, находящегося в ППК.

Радиоцезий, входящий в состав частиц композитных материалов (прежде всего, графита), максимальное количество которых сосредоточено в "ближней" к реактору зоне, в течение всего периода исследований (1986-1992 гг.) постепенно выщелачивался из них, оставаясь легкодоступным для усвоения растениями. В то же время, большая часть радионуклида, перешедшая в почвенный поглощающий комплекс, стала менее доступной для растений вследствие процесса необратимой фиксации ^{137}Cs глинистыми минералами почвы.

Таким образом, в течение периода исследований (1988-1992 гг.) подвижность радиоцезия в системе "почва-растение" должна быть выше в "ближней" к реактору зоне, где преобладают топливные частицы, в том числе и композитных материалов, чем в "дальней", с преобладанием конденсационной формы выпадения (что и было в последующем подтверждено экспериментальными данными).

Содержание обменной и подвижной форм ^{137}Cs было довольно высоким в течение первого года после аварии (9.5 – 30.1 и 12.7 – 41.2% соответственно) вследствие разложения охеса и верхнего слоя дернины, сорбировавших основную часть выпавшего в результате аварии радионуклида и перехода большей его части в ППК, а затем снижалось согласно экспоненциальному закону: $dC/dt = -bC$, где C – содержание соответствующей формы радионуклида в почве; b – коэффициент пропорциональности вследствие процесса необратимой фиксации радионуклида почвой. Учитывая этот факт, были использованы регрессионные модели процессов уменьшения содержания обменной и подвижной форм радиоцезия в почве, описываемые экспоненциальными уравнениями с двумя различными параметрами вида: $C(^{137}\text{Cs}), \% = \exp(C_0 + b \times t)$, где $C(^{137}\text{Cs}), \%$ – процентное содержание соответствующей формы ^{137}Cs в почве; C_0, b – различные параметры; t – время, прошедшее с момента аварии. Для автоморфных почв, расположенных в "ближней" к реактору зоне (2-15 км), коэффициенты C_0 и b для относительного содержания в почвах обменного и подвижного ^{137}Cs за период 1986-1992 гг. равны, соответственно, 2.6, -0.15 и 3.0, -0.1. Периоды полууменьшения относительного содержания обменной и подвижной форм ^{137}Cs в почвах равны 3.7 и 7.0 лет соответственно. Для гидроморфных почв "ближней" зоны вследствие высокой скорости процессов разложения растительных остатков, разрушения наименее устойчивых топливных частиц и выщелачивания из них ^{137}Cs в течение первого периода после аварии, наблюдается повышенная скорость процесса уменьшения десорбции обменного и подвижного ^{137}Cs в течение периода (1986-1992 гг.). Коэффициенты C_0 и b равны 2.1, -0.3 и 2.6, -0.2 соответственно для обменной и подвижной форм, а периоды полууменьшения содержания обменной и подвижной форм ^{137}Cs составляют 1.8 и 3.2 года.

Для автоморфных почв "дальней" зоны параметры C_0 и b для обменной и подвижной форм ^{137}Cs равны 3.2, -0.2 и 3.5, -0.1 соответственно. Периоды полууменьшения содержания обменной и подвижной форм ^{137}Cs : 2.7 и 4.8 года. Для гидроморфных почв "дальней" зоны коэффициенты C_0 и b равны 3.3, -0.5 для обменного и 3.7, -0.4 для подвижного ^{137}Cs (периоды полууменьшения содержания обменной и подвижной форм ^{137}Cs : 1.4 и 1.9 года).

Заключение

Таким образом, на основании результатов проведенных исследований, можно сделать следующие выводы:

1) свойства выпадений являются ведущим фактором биологической опасности [34, 35], определяющим миграционную способность радионуклидов "чернобыльского" происхождения в течение первых 6 лет после аварии, следующим по значимости фактором является характер водного режима почв, что накладывает ограничения на способы его регулирования [36], и лишь затем следуют свойства почв, важнейшим из которых является кислотность почв. Также значимы адсорбция, ассоциация и комплексообразование ионов в почвенном растворе [37-39]. Это согласуется с результатами исследований [40, 41] с искусственным внесением радиоцезия в водорастворимой форме;

2) к 1990 г. происходит полная трансформация первичных топливных частиц, на что указывают данные о практически полном извлечении ^{144}Ce из почв «ближней зоны», где в

выпадениях преобладала топливная компонента, $1N$ HCl в 1990 г., об уменьшении количества невыщелачиваемого ^{137}Cs в вышеуказанных почвах в 1988 и, особенно, в 1990 гг. по сравнению с 1987 г., а также факт резкого увеличения содержания в них подвижного ^{90}Sr в 1990 г. по сравнению с 1987 годом.

Примечания:

1. Крышев И.И., Алексахин Р.М., Рябов И.М., Махонько К.П., Таскаев А.И. Радиэкологические последствия Чернобыльской аварии / Под ред. Крышева И.И. Ядерное общество СССР. Серия "Радиэкологические аспекты ядерной энергетики". М.: 1991. 172 с.
2. Суркова Л.В., Погодин Р.И. Состояние и формы нахождения цезия-137 в почвах различных зон аварийного выброса ЧАЭС // Агрохимия. 1991. № 4. С. 84-86.
3. Новикова Н.Я., Химич С.Л., Сапунова Р.Н. и др. Формы нахождения цезия-137 и стронция-90 в почвах районов Гомельской области, подвергшихся загрязнению в результате аварии на ЧАЭС / Тез. докл. Всес. совещ. "Принципы и методы ландшафтно-геохимических исследований миграции радионуклидов. Суздаль, 1989. С. 104.
4. Перепелятников Г.П., Ильин М.И., Буковская В.С. Изучение форм содержания ^{137}Cs и ^{90}Sr в луговых зонах Чернобыльской АЭС // В кн.: Проблемы сельскохозяйственной радиологии. / Под ред. Лоцилова Н.А. Киев: УНИИСХР, 1991. С. 129-132.
5. Петряев Е.П., Овсянникова С.В., Любкина И.Я. и др. Экспериментальные исследования форм нахождения радионуклидов в почвах загрязненных районов Белоруссии // Тез. докл. Всес. совещ. "Принципы и метода ландшафтно-геохимических исследований миграции радионуклидов. Суздаль, 1989. С. 104.
6. Vldal M., Roig M., Rigol A., Llauro M., Rauret C., Wautere J., Elsen A., Cremers A. Two approaches to the study of radiocaesium partitioning and mobility in agricultural soils from Chernobyl area // Analyst. V. 120. pp 100-106
7. Тихомиров Ф.А., Щеглов А.И., Цветнова О.В., Кляшторин А.Л. Геохимическая миграция радионуклидов в лесных экосистемах зоны радиоактивного загрязнения ЧАЭС // Почвоведение. 1990. № 10. С.41-50.
8. Корнеев Н.А., Поваляев А.П., Алексахин Р.М. и др. Сфера агропромышленного производства – радиологические последствия аварии на Чернобыльской АЭС и основные защитные мероприятия // Атомная энергия. 1988. Т. 65. Вып. 2. С. 129-134.
9. Коноплев А.В., Борзилов В.А., Бобовникова Ц.И. и др. Распределение радионуклидов, выпавших в результате аварии на Чернобыльской атомной электростанции, в системе "почва-вода" // Метеорология и гидрология. 1988. № 2. С. 63-74.
10. Смян Н.И., Марцуль И.И. Загрязнение земель сельскохозяйственных угодий БССР радионуклидами, их формы и вертикальная миграция в основных типах почв: /Мат. науч. конф. "Основные положения концепции с.- х. производства в зоне радиационного загрязнения выбросами Чернобыльской АЭС (20-21 июля 1989). Минск, 1990. С.38-46
11. Riise J., Bjornstad H.E., Lien H.N., Oughton D.H., Salbu B. A study on radionuclide association with soil components using a sequential extraction procedure // J. of Rad. Nucl. Chemistry. 1990. V.142. No 2. pp 531-538.
12. Бобовникова Ц.И., Вирченко Е.П., Коноплев А.В. и др. Химические формы нахождения долгоживущих радионуклидов и их трансформация в почвах зоны аварии на ЧАЭС // Почвоведение. 1990. № 12. С. 20-25.
13. Орлов П.М., Кузнецов А.В., Андриевский Е.И., Хомич В.К. Формы соединений цезия-137 в почве и его накопление в урожае сельскохозяйственных культур: /Тез докл Всес. радиобиол. съезда, Т. 2. Пушино, 1989. С. 291-292
14. Гребенщикова Н.В., Самусев Н.И., Новак А.А. Поведение радионуклидов Cs в дерново-подзолистых, почвах Гомельской области / Тез. докл. 3 Всес. конф. по с.-х. радиологии, т.1. Обнинск, 1990. С.18-19.
15. Иванов Ю.А., Лоцилов Н.А., Орешнич Л.А. и др. Динамика мобильных форм цезия-137 выпадений аварийного выброса ЧАЭС в почвах // Проблемы сельскохозяйственной радиологии. Вып. 2 / Под ред. Лоцилова Н.А. Киев: УНИИСХР, 1992. С. 43-56.
16. Анисимов В.С. Влияние формы аварийных выпадений и физико-химических свойств почв на подвижность ^{137}Cs в системе "почва – растение" в 30-километровой зоне Чернобыльской АЭС // Диссертация на соиск.уч. степ. канд. биол. наук. Обнинск. 1995. 140 с.

17. Анисимов В.С., Санжарова Н.И., Алексахин Р. М. О формах нахождения и вертикальном распределении ^{137}Cs в почвах в зоне аварии на Чернобыльской АЭС // Почвоведение. 1991. № 9. С. 31-40.
18. Анисимов В.С., Санжарова Н.И., Алексахин Р.М. Миграция ^{137}Cs в почвах с гравитационным потоком влаги// Доклады РАСХН. 1994. № 1. С. 24-26.
19. Анисимов В.С, Санжарова Н.И., Алексахин Р.М. Влияние физических и агрохимических свойств торфяных почв на относительное содержание различных форм ^{137}Cs , извлекаемых при разном соотношении почва: экстрагент/ Материалы международной конференции «Радиоэкология торфяных почв» (Санкт-Петербург 7- 11 июня 1994 г.). С.-Петербург, 1994. С. 101-104.
20. Sanzharova N.I., Fesenko S.V., Alexakhin R.M., Anisimov V.S., Kuznetsov V.K., Chernyayeva L.G. Changes in the forms of ^{137}Cs and its availability for plants as dependent on properties of fallout after the Chernobyl nuclear power plant accident // The Science of the Total Environment. 1994. No 154. pp 9-22.
21. Методические рекомендации (по санитарному контролю за содержанием радиоактивных веществ в объектах внешней среды) / Под общ.редакцией А.Н. Марей и А.С. Зыковой. М.: МЗ СССР, 1980. 336 с.
22. Методические указания по контролю за радиоактивным загрязнением сельскохозяйственных угодий прилегающих к атомным электростанциям. М.: ЦИНАО, 1990. 15 с.
23. Руководство по организации контроля состояния природной среды в районе расположения АЭС // под ред. Махонько К.П. Л.: Гидрометеиздат, 1990. 264 с.
24. Аринушкина Е.В. Руководство по химическому анализу почв. М.: Изд-во МГУ, 1970. 488 с.
25. Радиационные характеристики облученного ядерного топлива /Справочник. М.: Энергоатомиздат, 1983. 384 с.
26. Павлоцкая Ф.И. Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах. М.: Атомиздат, 1974. 215 с.
27. Доспехов Б.А. Методика полевого метода. М.: Агропромиздат, 1985. 352 с.
28. Марей А.Н., Бархударов Р.М., Новикова Н.Я. Глобальные выпадения ^{137}Cs и человек. М.: Атомиздат, 1974. 168 с.
29. Марей А.Н., Бархударов Р.М., Новикова И.Я. Радиационно-гигиеническая значимость цезия ^{137}Cs в некоторых районах страны / Под ред. Рамзаева П.В. // Радиационная гигиена. Изд-во Медицина, 1971, вып., 4. С. 124-126
30. Новикова Н.Я., Орлова Е.М., Бархударов Р.М. и др. Особенности миграции ^{137}Cs из почвы в растительность в районах Белорусского Полесья // Тез. Докл. симп. "Исследование форм соединений радионуклидов и механизмы их миграции в почвах и растениях". (Тбилиси, 15-19 дек 1970). С. 123
31. Павлоцкая Ф.И., Сальников В.Г., Моисеев И.Т. К вопросу о механизме влияния извести и торфа на поступление стронция-90 в растения. М.: Атомиздат, 1976. 12 с.
32. Павлоцкая Ф.И., Тюрюканова Э.Б., Баранов В.И. Глобальное распределение радиоактивного стронция по земной поверхности. М.: Наука, 1970.
33. Химическая энциклопедия // Под ред. И.Л. Кнунянца. М.: Изд-во "Советская энциклопедия", 1988. Т. 1. 1220 с.
34. Glazko VI, Zybaylov VL Glazko TT Increasing the level of ionizing radiation: "horizontal" and "vertical" biological and biosocial consequences (on example of the Chernobyl and Fukushima-1 accidents) // Agricultural Biology. 2016. Т. 51. № 2. pp 141–155. doi: 10.15389 / agrobiology.2016.2.141rus
35. Glazko VI, Glazko TT. Laws of anthropogenic (ecological) disasters – the example of the Chernobyl accident // Biotechnol. & Biotechnol. 2011. Vol. 25, No 4. pp 1–6. DOI: 10.5504/bbeq.2011.0088.
36. Калиниченко В.П., Минкина Т.М., Безуглова О.С., Зармаев А.А., Романов О.В., Ким В.Ч.-Д. Концепция внутрипочвенной дискретной импульсной ирригации // Природообустройство. 2013. № 2. С. 6-11.

37. Калиниченко В.П., Лазуренко В.Н., Ляхов В.П., Старцев В.Ф. Биогосистемотехника как технологическая платформа рециклинга отходов в биосфере // Рециклинг отходов. № 1 (5) январь-февраль 2015. С. 12-17.

38. T.M. Minkina, D.L. Pinskiy, T.V. Bauer, S. S. Mandzhieva, O. N. Belyaeva, V.P. Kalinichenko, A.P. Endovitsky. Effect of attendant anions on zinc adsorption and transformation in chernozem // Journal of Geochemical Exploration. 2014. 144. Pp. 226-229. DOI: 10.1016/j.gexplo.2013.12.016

39. Abdul-Malik A. Batukaev, Anatoly P. Endovitsky, Andrey G. Andreev, Valery P. Kalinichenko, Tatiana M. Minkina, Zaurbek S. Dikaev, Saglara S. Mandzhieva, and Svetlana N. Sushkova Ion association in water solution of soil and vadose zone of chestnut saline solonetz as a driver of terrestrial carbon sink // Solid Earth, 7, Issue, 2, 415-423, doi:10.5194/se-7-415-2016, 2016

40. Schuller P., Handl J., Trumper R. Dependence of the ^{137}Cs soil-to-plant transfer factor on soil parameters // Health Physics. 1988. V.55. No 3. P. 575-577.

41. Steffens W., Mittelstaedt W., Klaes J. and Funk P. Radionuclide transfer Sr, Cs, Co and Mn to plants grown on soils with different physical and chemical properties and from different sites at Eschweiler, Gorleben, Biblis and Stade, F.R.G. Compacts of 6th International Congress of the International Radiation Protection Association (IRPA). Berlin. 7-12 Mai. 1984. V.1. P. 193-196.

References:

1. Kryshev I.I., Alexakhin R.M., Ryabov I.M., Makhonko K.P., Taskaev A.I. Radioecological consequences of the Chernobyl accident /Ed. by I.I. Kryshev. Nuclear society of the USSR. A series of "Radioecological aspects of nuclear power". M.: 1991. 172 p. (in Russian)

2. Surkova L.V. and Pogodin R.I. State and speciation of caesium-137 in soils of different zones of the Chernobyl NPP accidental fallouts// Agrochemistry. 1991, No 4. pp 84-86 (in Russian).

3. Novikova N.I., Khimich S.L., Sapunova R.N. etc. The speciation of cesium-137 and strontium-90 in the soils of the districts of the Gomel region contaminated as a result of the Chernobyl accident /Abstr. of the All-USSR Meeting "Principles and Methods of Landscape-geochemical Studies of Radionuclides Migration. Suzdal'. 1989. pp 104. (in Russian)

4. Perepelyatnikova G.P., Ilyin M.I., Bukowskaya V.S. The study of the forms of ^{137}Cs and ^{90}Sr content in the meadow zones of Chernobyl NPP // In the book: Problems of Agricultural Radiology/ Edited by Loschilov N.A. Kiev: UIARAE. 1991. pp 129-132. (in Russian)

5. Petryaev E.P., Ovsyannikova S.V., Lukina I.Y. etc. The experimental studies of radionuclides species in soils of contaminated regions of Belarus /Abstr. of the All-USSR Meeting "Principles and Methods of Landscape-geochemical Studies of Radionuclides Migration. Suzdal'. 1989. pp 104. (in Russian)

6. Vldal M., Roig M., Rigol A., Laurado M., Rauret C., Wauters J., Elsen A., Cremers A. Two approaches to the study of radiocaesium partitioning and mobility in agricultural soils from Chernobyl area // Analyst. V.120. pp 100-106.

7. Tikhomirov F.A., Shcheglov A.I., Tsvetnova O.V., Klyashtorin A.L. Geochemical migration of radionuclides in forest ecosystems of ChNPP radioactive contamination // Pochvovedenie. 1990. No 10. pp 41-50 (in Russian)

8. Korneev N.A., Povalyaev A.P., Alexakhin R.M. etc. Scope of agricultural production - the radiological consequences of the Chernobyl accident and main protective measures //Atomic Energy. 1988. Vol. 65. Is. 2. pp 129-134. (in Russian)

9. Konoplev A.V., Borzilov V.A., Bobovnikova Ts.I. The distribution of radionuclides emitted by the accident at the Chernobyl nuclear power plant in the system "soil-water" //Meteorology and Hydrology. 1988. No. 2. pp 63-74. (in Russian)

10. Smeyan N.I., Martsul' I.I. Pollution of arable land of the BSSR by the radionuclides, its species and vertical migration in the main types of soils /Proc. of the Sci. Conf. "The basic concept of agricultural production in the zone of radiation contamination by the emissions of the Chernobyl NPP. (20-21 July 1989). Minsk. 1990. pp 38-46. (in Russian)

11. Riise J., Bjornstad H.E., Lien H.N., Oughton D.H., Salbu B. A study on radionuclide association with soil components using a sequential extraction procedure // J. of Rad. Nucl. Chemistry. 1990. V.142. No 2. pp 531-538.

12. Bobovnikova Ts.I., Virchenko, E.P., Konoplev A.V. Chemical speciation of long-lived radionuclides and their transformation in soils of the zone of the Chernobyl NPP accident // *Pochvovedenie*. 1990. No. 12. pp 20-25. (in Russian)
13. Orlov, P.M., Kuznetsov A.V., Andrievsky E.I., Khomich V.K. Forms of compounds of cesium-137 in soils and its accumulation in the harvest of crops / *Abstr. of the All-USSR Radiobiol. Congress*. Pushchino. 1989. Vol. 2. pp 291-292. (in Russian)
14. Grebenshchikova N.V., Samusev N.I., Novak A.A. Behavior of Cs radionuclides in sod-podzolic soils of the Gomel region / *Abstr. of the 3-rd All-USSR Conf. on Agricultural Radiology*. Vol. 1. Obninsk. 1990. pp 18-19.
15. Ivanov Y.A., Loshilov N. A., Oresic L.A. etc. The Dynamics of mobile forms of cesium-137 fallout of the ChNPP accident in soils / In the book: *Problems of Agricultural Radiology*/ Edited by Loschilov N.A. Kiev: UIARAE. 1992. Vol.2. pp 43-56. (in Russian)
16. Anisimov V.S. The influence of the accidental fallout forms as well as physical and chemical properties of the soils on ¹³⁷Cs mobility in the system "soil – plant" within the 30-kilometer zone of Chernobyl NPP / *PhD thesis*. Obninsk. 1995. 140 p. (in Russian)
17. Anisimov V.S., Sanzharova N.I., Alexakhin R.M. On the chemical speciation and vertical distribution of ¹³⁷Cs in soils in the zone of Chernobyl NPP // *Pochvovedenie*. 1991. No. 9. pp 31-40. (in Russian)
18. Anisimov V.S., Sanzharova N.I, Alexakhin R.M. The migration of ¹³⁷Cs in the soils with the gravitational flow of moisture // *Reports of the RAAS*. 1994. No. 1. pp 24-26 (in Russian)
19. Anisimov V.S., Sanzharova N.I., Alexakhin R.M. The Influence of physical and agrochemical properties of peat soils on the relative content of different forms of ¹³⁷Cs extracted with different ratios of soil: extractant/ *Proc. of the Int. Conf. "Radioecology of Peat Soils"*. (St. Petersburg. June 7 – 11. 1994). St. Petersburg. 1994. pp 101-104. (in Russian)
20. Sanzharova N.I., Fesenko S.V., Alexakhin R.M., Anisimov V.S., Kuznetsov V.K., Chernyayeva L.G. Changes in the forms of ¹³⁷Cs and its availability for plants as dependent on properties of fallout after the Chernobyl nuclear power plant accident // *The Science of the Total Environment*. 1994. No 154. pp 9-22.
21. *Methodological recommendations (on sanitary control over the content of radioactive substances in environment objects)* / Edited by A.N. Marey and S.A. Zykova. M.: USSR Ministry of Health. 1980. 336 p. (in Russian)
22. *Methodical instructions on control of radioactive contamination of agricultural land adjacent to nuclear power plants*. M: CISAS. 1990. 15 p. (in Russian)
23. *Guidelines for the control of the natural environment in the area of NPP* /Ed. by Makhonko K.P. L.: HydroMeteoizdat. 1990. 264 p. (in Russian)
24. Arinushkina E. V. *Guidance on chemical analysis of soils*. M. MSU Publishing house. 1970. 488 p. (in Russian)
25. *Radiation characteristics of irradiated nuclear fuel* / *Guide*. M.: Energoatomizdat. 1983. 384 p. (in Russian)
26. Pavlotskaya F.I. *Migration of radioactive products of global fallout in soils*. M: Atomizdat. 1974. 215 p. (in Russian)
27. Dospechov B.A. *Technique of field method*. M.: Agropromizdat. 1985. 352 p. (in Russian)
28. Marey A.N., Barhudarov R.M., Novikova N.Ya. *Global fallout of ¹³⁷Cs and a Man*. M.: Atomizdat. 1974. 168 p. (in Russian)
29. Marey A.N., Barhudarov R.M., Novikova I.Ya. *Radiation-hygienic significance of cesium-137 in some parts of the country* /Ed. by Ramzaev P.V. *Radiation Hygiene. Medicine Publ*. 1971. Is. 4. pp 124-126 (in Russian)
30. Novikova N.Ya., Orlova E. M., Barkhudarov R.M., etc. *Features of Cs-137 migration from soil to vegetation in areas of the Belarusian Polesye* / *Abst. Symp. "The study of forms of the compounds of radionuclides and mechanisms of its migration in soils and plants"*. Tbilisi. 15-19 Dec. 1970. p 123.
31. Pavlotskaya F.I., Salnikov V.G., Moiseev I.T. *To the question of the mechanism of the effect of lime and peat on uptake of strontium-90 in plants*. Moscow: Atomizdat. 1976. 12 p. (in Russian)
32. Pavlotskaya F.I., Tyuryukanova E.B., Baranov V.I. *Global distribution of radioactive strontium in the earth's surface*. M.: Nauka. 1970. (in Russian)

33. Chemical encyclopedia/ Ed. by I.L. Knunyants. M.: Publishing house "Soviet Encyclopedia". 1988. Vol. 1. 1220 p. (in Russian)
34. Glazko VI, Zybaylov VL Glazko TT Increasing the level of ionizing radiation: "horizontal" and "vertical" biological and biosocial consequences (on example of the Chernobyl and Fukushima-1 accidents) // *Agricultural Biology*. 2016. T. 51. № 2. pp 141–155. doi: 10.15389 / agrobiology.2016.2.141rus
35. Glazko VI, Glazko TT. Laws of anthropogenic (ecological) disasters – the example of the Chernobyl accident // *Biotechnol. & Biotechnol.* 2011. Vol. 25, No 4. pp 1–6. DOI: 10.5504/bbeq.2011.0088.
36. Kalinichenko VP, Minkina TM, Bezuglova OS, Zarmaev AA Romanov OV, Kim V.CH.-D. Concept of subsurface discrete pulse irrigation // *Environmental Engineering*. 2013. № 2. pp 6-11.
37. Kalinichenko VP, Lazurenko VN Lyakhov VP, VF Starcev Biogeosystem technique as a technology platform of waste recycling in the biosphere // *Waste Recycling*. Number 1 (5) in January-February 2015. pp 12-17.
38. T.M. Minkina, D.L. Pinskiy, T.V. Bauer, S. S. Mandzhieva, O. N. Belyaeva, V.P. Kalinichenko, A.P. Endovitsky. Effect of attendant anions on zinc adsorption and transformation in chernozem // *Journal of Geochemical Exploration*. 2014. 144. pp 226-229. DOI: 10.1016/j.gexplo.2013.12.016
39. Abdul-Malik A. Batukaev, Anatoly P. Endovitsky, Andrey G. Andreev, Valery P. Kalinichenko, Tatiana M. Minkina, Zaurbek S. Dikaev, Saglara S. Mandzhieva, and Svetlana N. Sushkova Ion association in water solution of soil and vadose zone of chestnut saline solonetz as a driver of terrestrial carbon sink // *Solid Earth*, 7, Issue, 2, 415-423, doi:10.5194/se-7-415-2016, 2016
40. Schuller P., Handl J., Trumper R. Dependence of the ^{137}Cs soil-to-plant transfer factor on soil parameters // *Health Physics*. 1988. V.55. No 3. pp 575-577.
41. Steffens W., Mittelstaedt W., Klaes J. and Funk P. Radionuclide transfer Sr, Cs, Co and Mn to plants grown on soils with different physical and chemical properties and from different sites at Eschweiler, Gorleben, Biblis and Stade, F.R.G. Compacts of 6th International Congress of the International Radiation Protection Association (IRPA). Berlin. 7-12 May. 1984. V.1. pp 193-196.

УДК 502.052 504.75.05 504.055 539.183.2 54.027 543.054 631.412

Поведение ^{137}Cs в системе почва – растение на постоянных пробных площадках, расположенных в 30-километровой зоне Чернобыльской АЭС в период 1987-1992 гг.: формы выпадения и динамика форм нахождения ^{137}Cs в почвах

¹ Вячеслав Сергеевич Анисимов

² Наталья Ивановна Санжарова

³ Рудольф Михайлович Алексахин

¹⁻³ ФГБНУ «Всероссийский научно-исследовательский институт радиологии и агроэкологии», Российская Федерация

249032 Обнинск, Калужская обл., Киевское ш.,

¹ Кандидат биологических наук, заведующий лабораторией

E-mail: vsanisimov@list.ru

² Член-корреспондент РАН, директор института

E-mail: natsan2004@mail.ru

³ Академик РАН, научный руководитель института

E-mail: alexakhin@yandex.ru

Аннотация. При изучении поведения радионуклидов – продуктов деления ядерного топлива, попавших в природные экосистемы после аварии на Чернобыльской АЭС, были обнаружены существенные различия в миграционной способности ^{137}Cs глобальных выпадений и "чернобыльского" происхождения. Это обусловлено тем, что радионуклид

"чернобыльских" выпадений, в отличие от глобального, поступил на поверхность земли не только в водорастворимой форме, но и в составе частиц ядерного топлива и композитных материалов различной дисперсности. На территории 30-километровой зоны вокруг Чернобыльской АЭС (ЧАЭС) были выделены 2 зоны, различающиеся по форме выпадения радионуклидов. В первой, которая была названа "ближней" зоной (2-15 км от аварийного блока ЧАЭС), преобладала топливная компонента (коэффициенты фракционирования нелетучих ^{144}Ce и ^{90}Sr относительно легколетучего ^{137}Cs больше или равны 1). Во второй зоне, названной "дальней" (15-35 км от ЧАЭС), преобладала конденсационная компонента (коэффициенты фракционирования ^{144}Ce и ^{90}Sr относительно ^{137}Cs < 1).

В "ближней" к реактору зоне свойства ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{144}Ce в значительной степени определяются нахождением значительной их части в составе трансформирующихся под влиянием, прежде всего, кислорода воздуха и воды топливных частиц. Так, содержание в почвах подвижного ^{90}Sr в 1987 г. было 26,8 % в "ближней" зоне (с. Красное) и 45,7% в "дальней" зоне (д. Радин), что в 3,6 и 1,3 раза меньше содержания подвижного ^{90}Sr в 1990 г.

К 1990 г. произошла полная трансформация первичных топливных частиц, на что указывают данные о практически полном извлечении ^{144}Ce из почв 1N раствором соляной кислоты в 1990 г., об уменьшении количества невыщелачиваемого ^{137}Cs в почвах в 1988 и, особенно, в 1990 гг. по сравнению с 1987 г., а также факт резкого увеличения содержания подвижного ^{90}Sr в 1990 г. по сравнению с 1987 годом в почвах "ближней" зоны, где в выпадениях преобладала топливная компонента.

Вследствие трансформации топливных частиц уже в 1988 г. подвижность в почве и, как следствие, доступность для корневого усвоения растениями ^{137}Cs , входящего в состав трансформированной топливной матрицы, была выше, чем подвижность радионуклида, находящегося в ППК (доминирующая форма нахождения радионуклида в «дальней» зоне).

Содержание обменной и подвижной форм ^{137}Cs было довольно высоким в течение первого года после аварии (9,5 – 30,1 и 12,7 – 41,2% соответственно), а затем снижалось согласно экспоненциальному закону вследствие процесса необратимой фиксации радионуклида почвой: $dC/dt = -bC$, где C – содержание соответствующей формы радионуклида в почве; b – коэффициент пропорциональности. Рассчитанные для автоморфных почв, расположенных в "ближней" к реактору зоне, периоды полууменьшения относительного содержания обменной и подвижной форм ^{137}Cs в почвах оказались равны 3,7 и 7,0 лет соответственно, а для автоморфных почв "дальней" зоны – 2,7 и 4,8 года.

Для гидроморфных почв "ближней" зоны периоды полууменьшения содержания обменной и подвижной форм ^{137}Cs составили 1,8 и 3,2 года, "дальней" зоны – 1,4 и 1,9 года соответственно.

Ключевые слова: ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{144}Ce , радионуклид, коэффициент фракционирования, почва, форма выпадения, форма нахождения, динамика.