

SIMULACION DE TOMA DE ^{137}CS POR RAICES DE CULTIVOS MEDIANTE UN MODELO DE FRONTERA MOVIL

Juan C. Reginato^a, María A. Dzioba^b y Domingo A. Tarzia^c

^a *Departamento de Física, Facultad de Ciencias Exactas Físico-Químico y Naturales, Universidad Nacional de Río Cuarto, Río Cuarto, Argentina,*

**jreginato@exa.unrc.edu.ar,*

^b *Departamento de Matemática, Facultad de Ciencias Exactas Físico-Químico y Naturales, Universidad Nacional de Río Cuarto, Río Cuarto, Argentina,*

^c *Departamento de Matemática y Conicet, Facultad de Ciencias Empresariales, Universidad Austral, Rosario, Argentina*

Palabras Clave: Toma de nutrientes, radiocesio, frontera móvil, diferencias finitas.

Resumen. Aplicaciones como la fitoremediación y control de polución requieren el entendimiento del movimiento de cationes en suelo, particularmente metales y radionúclidos. Un modelo de toma por raíces de iones fuertemente absorbidos tal como el radiocesio es desarrollado. A diferencia de otros modelos previos, la dinámica del crecimiento de raíces es considerada a través de la formulación de un modelo de frontera móvil para la toma total por un sistema radical creciendo en un volumen fijo tal como en una maceta. El modelo es resuelto mediante la aplicación del método de inmovilización del dominio y posterior aplicación de diferencias finitas al conjunto de ecuaciones diferenciales acopladas resultantes. Se obtienen resultados para la fracción de iones removidos del suelo en función de parámetros experimentales típicos como el poder buffer, longitud inicial de raíz y parámetros cinéticos como el flujo máximo y la constante de reacción de fijación. Los resultados obtenidos son similares a aquellos obtenidos por los modelos previos de Kirk-Staunton y Darrah-Staunton aunque como conclusión adicional se obtiene que para el conjunto de datos usados, la dinámica de crecimiento (parámetro k_1) no tiene influencia sobre la toma implicando ello que la toma no es afectada por la variación de longitud de raíz.

1 INTRODUCCION

La contaminación de pasturas y por transferencia a animales y a toda la cadena alimenticia en superficies que reciben deposición de residuos radiactivos o deposiciones de metales y residuos industriales, ha sido ampliamente evaluada a través de modelos empíricos los cuáles han sido poco efectivos en la predicción del grado de contaminación producido. La toma de radiocesio (^{137}Cs) por las plantas del suelo, ha sido descrita por modelos de regresión, modelos mecanísticos y semi-mecanísticos. Los modelos de regresión exponen una parte de menor importancia de la complejidad de la transferencia de ^{137}Cs del suelo a la planta basada solamente en el pH del suelo ó en el contenido de materia orgánica (Frissel et al., 1990), haciendo en consecuencia las predicciones de estos modelos de toma de cesio por regresión poco fiables.

Los modelos mecanísticos y semi-mecanísticos tienen en cuenta los parámetros de la planta que afectan la toma de ^{137}Cs . El modelo semi-mecanístico de Absalom et al. (1999) incorpora la influencia del nivel de potasio (K) del suelo en la absorción de cesio por el suelo y en la toma del mismo por la raíz.

Dada la complejidad de las reacciones de los elementos contaminantes y la consecuente sensibilidad a una variedad de parámetros del suelo, también se han usado modelos mecanísticos (Kirk & Staunton, 1989; Darrah & Staunton, 2000).

El modelo desarrollado por Darrah and Staunton está basado en aproximaciones analíticas (Tinker & Nye, 2000) y numéricas (Cushman, 1979; Barber, 1984) de ecuaciones diferenciales de transporte en suelo acopladas con cinéticas de absorción por las raíces. Estos modelos estiman la concentración de cesio en la interface suelo-raíz y la toma resultante.

Recientemente, se han formulado modelos de frontera móvil para la toma de nutrientes (Reginato, 2000; Reginato & Tarzia, 2002). Este hecho permite postular un nuevo modelo mecánico de toma de contaminantes debido al transporte y absorción de iones desde un punto de vista más dinámico. El modelo difiere de los previos porque el ritmo de crecimiento de la raíz, se introduce como una función conocida del tiempo y las ecuaciones de transporte y absorción se resuelven en dominios variables.

Así, el objetivo particular de este trabajo es evaluar este modelo de frontera móvil para la toma de radiocesio, el cual contempla la fijación de iones por el suelo y el incremento de competencia de raíces por el radionúclido en volúmenes fijos de suelo y luego contrastar sus predicciones con la de modelos previos.

2 DESARROLLO

2.1 Descripción del modelo

Se considera un modelo unidimensional y se supone la planta creciendo en un volumen fijo de suelo (como en una maceta), bajo condiciones controladas de humedad, luz y temperatura, como en una cámara de siembra.

En estas condiciones se propone el siguiente modelo de transporte en suelo y absorción de nutrientes por raíces a una fase (el suelo) en coordenadas cilíndricas (Reginato et al. 2000):

$$\frac{\partial C_d}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{Df_L \theta_L}{(b + \theta_L)} \frac{\partial C_d}{\partial r} \right) - \frac{\partial C_r}{\partial r}, \quad s_0 < r < R(t), \quad 0 < t < T \quad (1)$$

$$C_d(r, 0) = C, \quad s_o < r < R_o \quad (2)$$

$$\frac{\partial C_d}{\partial r}(R(t), t) = 0, \quad t > 0 \quad (3)$$

$$\frac{Df_L \theta_L}{(b + \theta_L)} \frac{\partial C_d(s_o, t)}{\partial r} = \frac{J_m C_d(s_o, t)}{C_d(s_o, t) + bK_M}, \quad t > 0 \quad (4)$$

$$R(t) = R_o \sqrt{\frac{\ell_o}{\ell_o + k_l t}}, \quad t > 0 \quad (5)$$

Acoplado con una ecuación que describe la sorción-desorción en suelo del radionúclido

$$\frac{dC_f}{dt} = \frac{k_+ \theta_L}{(b + \theta_L)} C_d - \frac{k_+}{b_2} \quad (6)$$

$$C_f(r, 0) = 0 \quad (7)$$

donde r es la distancia radial desde el eje de la raíz [cm]; t es el tiempo [s]; T es el tiempo máximo para el cual existe solución [s]; C_d es la concentración del ion en el estado difusible [mol m^{-3}]; C_f es la concentración en la fase adsorbida fija [mol m^{-3}]; b es el poder buffer de la fase adsorbida intercambiable, b_2 es el poder buffer de la fase fija, ambos adimensionales; D es el coeficiente de difusión efectivo [$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$]; f_L es un factor de impedancia de la fase líquida [adimensional]; θ_L es el contenido de humedad volumétrico [$\text{m}^3 \text{m}^{-3}$]; J_m es el influjo máximo [$\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$]; K_m es la concentración para la cual el influjo es $J_m/2$ [mol m^{-3}]; $R(t)$ es la distancia media entre los ejes de las raíces [m]; C_R es el perfil de concentración inicial en [s_o, R_o] [mol m^{-3}]; R_o es la distancia inicial media entre los ejes de las raíces [m]; s_o es el radio de la raíz [m]; ℓ_o es la longitud inicial de la raíz al tiempo t [m]; k_l es la velocidad de crecimiento longitudinal de la raíz [cm s^{-1}] (se supone crecimiento lineal, e.d. $\ell(t) = \ell_o + k_l t$) y k_+ es la constante de fijación del radionúclido en suelo [s^{-1}].

La ecuación (1) es la ecuación de transporte de iones en suelo, la cual se resuelve en el dominio variable $s_o < r < R(t)$, $t > 0$. Esto último constituye la diferencia fundamental con los modelos de Barber-Cushman y Darrah resueltos en dominios fijos. La ecuación (2) describe el perfil de concentración inicial. La ecuación (3) representa una condición de flujo nulo sobre $R(t)$. La ecuación (4) representa el balance de masa sobre la superficie de la raíz y la condición (5) describe la frontera móvil $R(t)$ como una función de la longitud instantánea de la raíz $l(t)$, la cual se conoce a priori y es válida para volúmenes fijos de suelo como macetas, con una distribución espacial uniforme. La ecuación (6) describe la tasa de fijación del radionúclido en el suelo y la ecuación (7) es el perfil de concentración inicial del mismo en el suelo.

El modelo se resuelve aplicando en forma sucesiva los métodos de inmovilización del dominio y diferencias finitas en versiones implícita y explícita y se obtienen las concentraciones $C_d(s_o, t)$ sobre la raíz y el influjo $J(t)$ correspondiente.

Con estos datos es posible estimar la toma total de cesio aplicando la siguiente fórmula, que es una versión modificada de la fórmula de Cushman para calcular la toma total de nutrientes (Cushman, 1979; Reginato y Tarzia, 2002)

$$U = 2\pi s_o l_o \int_{t=0}^{t=t_{\max}} J(t) dt + 2\pi s_o \int_{t=0}^{t=t_{\max}} \left[\int_{t=t}^{t=t_{\max}} J(t) dt \right] \dot{l}(t) dt \quad (8)$$

con

$$J(t) = \frac{J_m C_d(s_o, t)}{C_d + bK_m} \quad (9)$$

Donde $J(t)$ es el influjo, $\dot{l}(t)$ es la tasa de crecimiento longitudinal y U se calcula desde $t = 0$ hasta $t = t_{\max}$.

2.2 Método de Inmovilización del dominio

El método de inmovilización del dominio consiste en transformar un sistema de ecuaciones válidas para una región con una frontera móvil en un sistema de dominio fijo lo cual tiene ventajas computacionales. Para llevar el dominio variable $[s_o, R(t)]$ al intervalo $[0, 1]$, se aplica la siguiente transformación de coordenadas:

$$\begin{cases} y = \frac{r - s_o}{R(t) - s_o} \\ \Psi(y, t) = C_d(r, t) \\ \Phi(y, t) = C_f(r, t) \\ t = t \end{cases} \quad (10)$$

Obteniendo para el problema (1) -(7) las siguientes condiciones:

$$\Psi_t(y, t) = \frac{\gamma \Psi_{yy}(y, t)}{[R(t) - s_o]^2} + \left\{ \frac{\gamma + s_o \dot{R}(t)y + [R(t) - s_o] \dot{R}(t)y^2}{[R(t) - s_o]^2 y + s_o [R(t) - s_o]} \right\} \cdot \Psi_y(y, t) - \beta \Psi(y, t) + \alpha \Phi(y, t) \quad (11)$$

$$0 \leq y \leq 1, \quad 0 < t < T$$

$$\Psi_y(1, t) = 0, \quad 0 < t < T \quad (12)$$

$$\frac{\gamma}{[R(t) - s_o]} \Psi_y(0, t) = J_m \frac{\Psi(0, t)}{\Psi(0, t) - bk_M}, \quad 0 < t < T \quad (13)$$

$$R(t) = R_o \sqrt{\frac{l_o}{l_o + k_\ell t}} \quad (14)$$

$$\Phi_t = \frac{\dot{R}(t)y}{[R(t) - s_0]} \Phi_y + \beta \Psi(y, t) - \alpha \Phi(y, t), \quad 0 \leq y \leq 1, \quad 0 < t < T \quad (15)$$

$$\Phi(y, 0) = 0 \quad (16)$$

Donde $\alpha = \frac{k_+}{b_2}$, $\beta = \frac{k_+ \theta_L}{(b + \theta_L)}$, $\gamma = \frac{Df_L \theta_L}{(b + \theta_L)}$ y $\dot{R}(t)$ representa la derivada de $R(t)$ con respecto a t .

2.3 Método de Diferencias Finitas

El sistema de ecuaciones (11) - (16) se aproxima por diferencias finitas (Morton y Mayers, 1994). Así para la ecuación (11) y las condiciones (12), (13) y (14) se usa un esquema implícito, tomando diferencias hacia atrás en el tiempo, centradas en la segunda derivada y diferencias hacia delante y atrás sobre la raíz ($y = 0$) y el borde externo ($y = 1$) respectivamente. Para la ecuación de sorción-desorción (15), se aplican diferencias hacia adelante en el tiempo y diferencias hacia atrás en el espacio, puesto que el signo del coeficiente de la primera derivada resulta negativo. Para simplificar la notación se propone la siguiente notación:

$$A(t) = \frac{\gamma}{R(t) - s_0}, \quad A_1(t) = \frac{A(t)}{R(t) - s_0}$$

$$B(y, t) = \frac{\gamma + s_0 \dot{R}_1(t)y + R_1(t) \dot{R}_1(t)y^2}{R_1^2(t)y + s_0 R_1(t)}$$

Donde $R_1(t) = R(t) - s_0$.

Se considera una malla uniforme en el espacio y en el tiempo del dominio rectangular $[0, 1] \times [0, t_{\max}]$, donde $t_{\max} < T$, con pasos Δy en el espacio y Δt en el tiempo. Se nota como:

$$\begin{cases} y_j = j \Delta y, & j = 0, \dots, M & \text{with } M \Delta y = 1 \\ t^n = n \Delta t, & n = 0, \dots, N & \text{with } N \Delta t = t_{\max} \\ \Psi(y_j, t^n) = \Psi_j^n \\ \Phi(y_j, t^n) = \phi_j^n \end{cases}$$

Donde los puntos (y_j, t^n) son los nodos del dominio discreto.

Las ecuaciones en diferencias resultantes son:

$$\Psi_j^n = \left[B_j^{n+1} \frac{\Delta t}{\Delta y} - A_1^{n+1} \frac{\Delta t}{\Delta y^2} \right] \Psi_{j-1}^{n+1} + \left[1 + 2A_1^{n+1} \frac{\Delta t}{\Delta y^2} - B_j^{n+1} \frac{\Delta t}{\Delta y} + \beta \Delta t \right] \Psi_j^{n+1} - \left[A_1^{n+1} \frac{\Delta t}{\Delta y^2} \right] \Psi_{j+1}^{n+1} - \alpha \Delta t \Phi_j^{n+1} \quad (17)$$

Con:

$$A_1^{n+1} = A_1(t^{n+1}), \quad BI_j^{n+1} = BI(t^{n+1}, y_j)$$

$$\Psi(y_j, 0) = \varphi(y_j[R_o - s_o] + s_o), \quad \forall j$$

$$\Psi(1, t^{n+1}) = \Psi(1 - \Delta y, t^{n+1})$$

La condición de borde en $y = 0$ se aproxima considerando una cinética lineal, dado que la concentración del radionúclido es muy baja. Así la ecuación en diferencias que resulta es:

$$\Psi(0, t^{n+1}) = \left[\frac{\gamma b K_m}{\gamma b K_m + J_m R_1 \Delta y} \right] \Psi(\Delta y, t^{n+1}) \quad (18)$$

$$R(t^n) = R_o \sqrt{\frac{I_o}{I_o + kt^n}}, \quad \forall n. \quad (19)$$

$$\Phi_j^{n+1} = \left[BI_j^n \frac{\Delta t}{\Delta y} \right] \Phi_{j-1}^n + \left[1 + B_j^n \frac{\Delta t}{\Delta y} - \alpha \Delta t \right] \Phi_j^n + [\beta \Delta t] \Psi_j^n \quad (20)$$

con:

$$BI(t, y) = \frac{\dot{R}(t)y}{[R(t) - s_o]}$$

$$\Phi(y_j, 0) = 0$$

Las ecuaciones discretizadas (17) - (20) se resuelven por medio de un algoritmo implementado mediante un programa FORTRAN. Las concentraciones e influjos del radionúclido sobre la raíz así obtenidos, se usaron como datos de entrada en el programa de la toma (Reginato y Tarzia, 2002) y una vez estimada ésta se calcula la fracción extraída del suelo como:

$$F_r = \frac{\text{Iones totales absorbidos por la raíz}}{\text{Iones totales iniciales}}$$

La simulación para la toma y extracción del suelo de ^{137}Cs , se realizó con datos de la literatura (Kirk y Staunton, 1989; Darrah y Staunton, 2000). Los mismos están basados en valores experimentales típicos y se muestran en la Tabla 1.

2.4 Parámetros de entrada

Tabla 1: Valores de los parámetros usados en la simulación

Parámetro	Valor	Dimensiones
k_+	1×10^{-3}	1/s
K_M	1.877	mol/m ³
r_o	5×10^{-4}	m
R_o	8.416×10^{-3}	m
D	2.1×10^{-9}	m ² /s
b	10^4	Adimensional
b_2	10^4	Adimensional
f_L	0.1	Adimensional
θ	0.3	Adimensional
C_R	1.265×10^{-9}	mol/m ³
J_m	1.08×10^{-4}	mol/m ² s
ℓ_o	12000	m
Δy	0.1	Adimensional
Δt	3600	s
$k \ell^*$	3.686×10^{-8}	m/s

* La velocidad de crecimiento de la raíz ha sido estimada como un promedio de valores experimentales (Ougnaire & Hasse, 1996).

3 Resultados y Discusión

Los gráficos que se presentan a continuación muestran los resultados obtenidos con este modelo y los de los otros modelos para comparar.

En los gráficos de la figura 1 se tienen las predicciones de la fracción de ¹³⁷Cs extraída del suelo por pasturas típicas en función del poder buffer b.

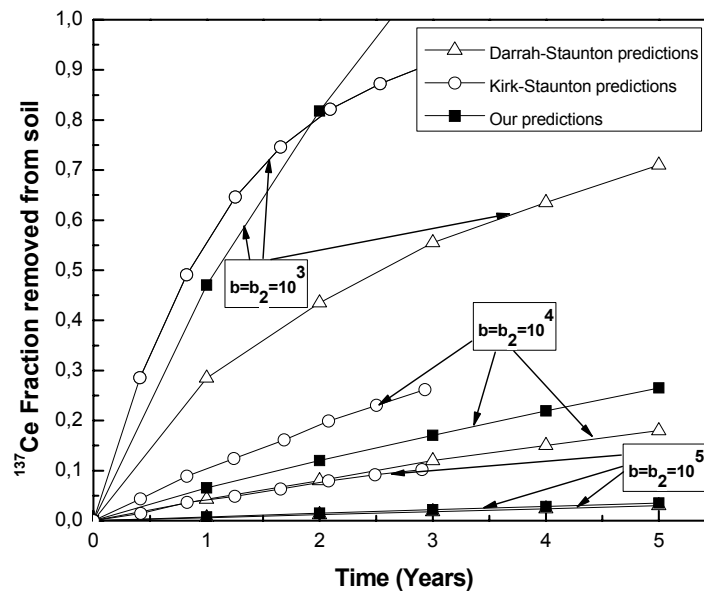


Figura 1. Fracción de ¹³⁷Cs extraída del suelo versus el tiempo en función del poder buffer b

En la figura 2 se comparan predicciones de la fracción de ¹³⁷Cs extraída del suelo por césped típico (pasturas) en función de la longitud inicial de raíz ℓ_o .

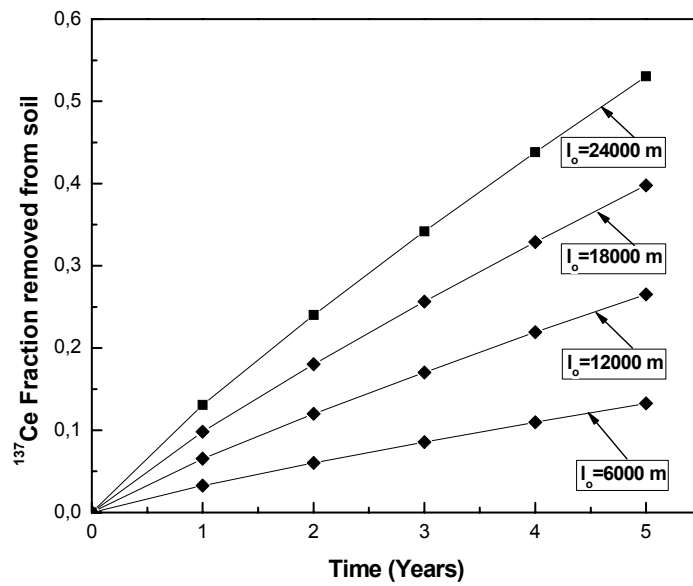


Figura 2. Fracción de ¹³⁷Cs extraída del suelo versus el tiempo en función de la longitud de raíz inicial l₀.

En la Figura 3 se comparan predicciones de la fracción de ¹³⁷Cs extraída del suelo por césped típico (pasturas) en función del máximo influjo J_m

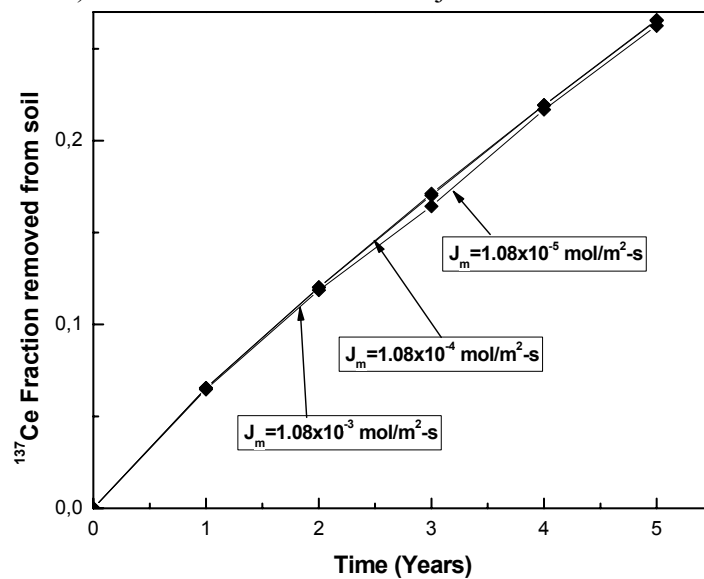


Figura 3. Fracción de ¹³⁷Cs extraída del suelo versus el tiempo en función del influjo máximo J_m.

En la Figura 4 se comparan predicciones de la fracción de ¹³⁷Cs extraída del suelo por césped típico (pasturas) en función de la constante de fijación k₊

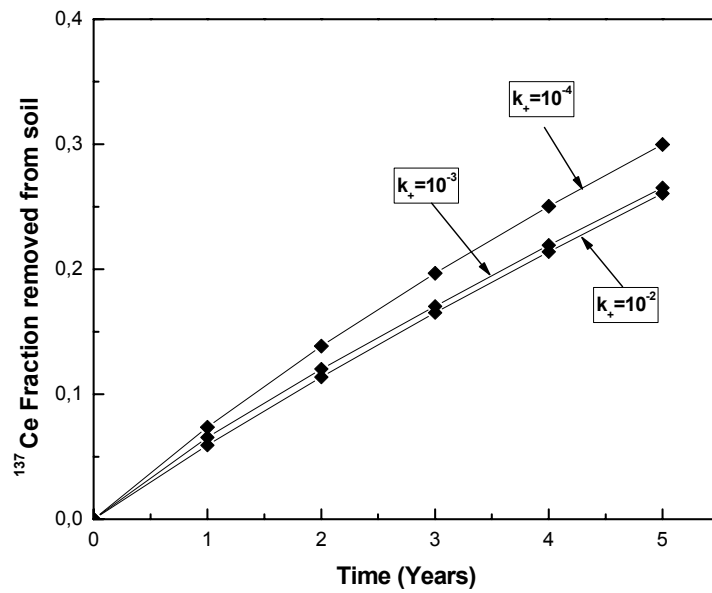


Figure 4. Fracción de ^{137}Cs extraída del suelo versus el tiempo en función de la constante de fijación k_+ .

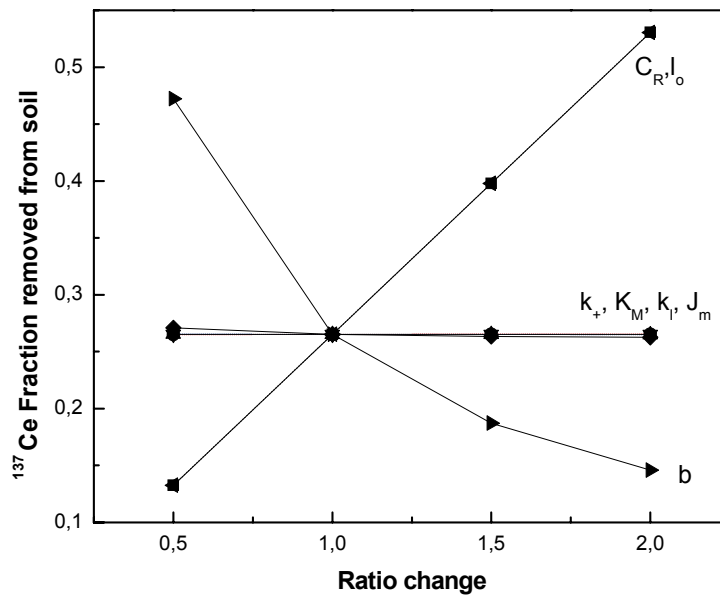


Figura 5. Diagrama de sensibilidad paramétrica de la toma de ^{137}Cs versus el cambio relativo de parámetros relevantes

4 CONCLUSIONES

De la Figura 1 se concluye que nuestras predicciones son similares en general a aquellas de los modelos de Kirk-Staunton y Darrah-Staunton. Para capacidades buffer altas, propias de los suelos arcillosos ($b = b_2 = 10^3$), nuestras predicciones son mayores que las del modelo de Darrah-Staunton pero menores que las del modelo de Kirk-Staunton. Para capacidades buffer más altas ($b = 10^5$), nuestras predicciones son similares a las del modelo de Darrah y Staunton. En las figuras 2, 3 y 4 se muestran los efectos de considerar diferentes longitudes de

raíz inicial, diferentes constantes de fijación k_+ y diferentes influjos máximos J_m . En la Figura 5 se muestra un diagrama de sensibilidad paramétrica de la toma relativa de ^{137}Cs versus el cambio relativo de parámetros relevantes del sistema. De este último, se concluye que los parámetros más relevantes son la concentración C_R , la longitud inicial l_0 y el poder buffer b . Además, se concluye que para plantas creciendo en macetas la influencia del parámetro k_1 (y en consecuencia, la densidad de raíz $L_V = (l_0 + k_1 t)/(\text{volumen de suelo})$ para una dada longitud inicial de raíz es despreciable. Al respecto, se realizaron cálculos del efecto de este parámetro para varios ordenes de variación de magnitud del mismo. Este hecho implica, que para plantas creciendo en macetas, efectos debidos al turnover (reciclaje de raíces) y en consecuencia de la fracción de longitudes de raíces que realmente contribuyen a la toma y tenido en cuenta en los modelos previos (Darrah and Staunton, 2000) no afectan a las predicciones. Obviamente, esta situación no se da, cuando se consideran plantas no creciendo en macetas (la ecuación (5) ya no es válida). Esta situación se daría para cultivos a campo y en este caso es necesario desarrollar un nuevo modelo ocupacional del suelo para $R(t)$. El motivo de no existir efectos del turnover sobre la toma es debido probablemente al bajo rango de concentraciones de ^{137}Cs (10^{-9} mol/m³) y al alto poder buffer de fijación en suelo ($b_2 = 10^4$) estudiados.

REFERENCES

- Absalom, J.P., Young, S.D., Crout, N.M.J., Nisbet, A.F., Woodman, R.F.M, Smolders, E. y Gillet, A.G. Predicting soil to plant transfer of radiocaesium using soil characteristics. *Environmental Science and Technology* 33, 1218-1223, 1999.
- Barber, S.A. *Soil nutrient bioavailability. A mechanistic approach*, 2nd Edition J. Wiley, New York, 1995.
- Crank, J. *Free and Moving Boundary Problems*. Clarendon Press, Oxford, 1984
- Cushman, J.H. An analytical solution to solute transport near root surfaces for low initial concentrations: I. Equation development, *Soil Sc. Soc. Am. J.* 43, 1087-1090, 1979
- Darrah, P.R. y Staunton S. A mathematical model of root uptake of cations incorporating root turnover, distribution within the plant, and recycling of absorbed species. *European Journal of Soil Science* 51, 643-653, 2000.
- Frissel, M.J., Noordijk, H. y van Bergeijk, K.E. The impact of extreme environmental conditions, as occurring in natural ecosystems, on the soil-to-plant transfer of radionuclides. In: *Desmet, G., et al.(Ed.), Transfer of Radionuclides in Natural and Semi-natural Environments*. Elsevier Applied Science, London, pp.40-47, 1990.
- Kirk, G.J.D. y Staunton, S. On predicting the fate of radioactive cesium in soil beneath grassland. *Journal of Soil Science*, 40, 71-84, 1989.
- Morton, K.W. y Mayers, D.F. *Numerical Solutions of Partial Differential Equations*, Cambridge University Press, 1994.
- Ougnaire, F.L. y Hasse, P. Comparative Physiology and Growth of Two Perennial Tussock Grass Species in a Semi-Arid Environment, *Annals of Botany*, 77, 81-86, 1996.
- Reginato, J.C., Palumbo M.C., Bernardo, Ch.I., Moreno, I.S., y Tarzia, D.A. Modeling Nutrient Uptake Using a Moving Boundary Approach. Comparison with the Barber-Cushman Model, *Soil Science Society of America Journal* 64, 1363-1367, 2000.
- Reginato, J.C. y Tarzia D.A. An alternative formula to compute the nutrient uptake, *Communications in Soil Science and Plant Analysis*, 33(5&6), 821-830, 2002.
- Roca-Jove, M.C. y Vallejo-Calzada, V.R. Predicting radiocaesium root uptake based on potassium uptake parameters. A mechanistic approach, *Plant and Soil*, 222, 35-49, 2000.

Tinker, P.B. y Nye, P.H. *Solute movement in the rhizosphere*. Oxford University Press, Oxford, England (2000).

Waegeneers, N., Camps, M., Smolders, E. y Merckx, R. Genotypic effects in phytoavailability of radiocaesium are pronounced at low K intensities in soil. *Plant and soil* 235, 11-20, 2001.