

MODELADO DE LOS PROCESOS DE TRANSPORTE VERTICAL DE RADIONÚCLIDOS EN SUELO Y SU TRANSFERENCIA A LA VEGETACIÓN EN ECOSISTEMAS SEMI-NATURALES

Hugo Velasco¹, Jimena Juri Ayub¹, María Belli² y Umberto Sansone²

¹IMASL - Universidad Nacional de San Luis -
Consejo Nacional de Investigaciones Científicas y Técnicas
Ejército de los Andes 950 - D5700HHW San Luis. Argentina
e-mail: hvelasco@unsl.edu.ar

²APAT - Agenzia Nazionale per la Protezione dell'Ambiente, Italia
Via del Castel Romano 100 - 00128 Roma, Italia

Key words: radioecología, transporte en suelo, radiocesio, transferencia suelo-vegetación.

Resumen: *La circulación de contaminantes radiactivos en el ambiente es un tema de creciente interés científico. El desarrollo de la tecnología nuclear, la experimentación con armas nucleares y su uso, la posibilidad de escapes radiactivos o accidentes en centrales nucleares y, principalmente, la necesidad de determinar de las consecuencias del accidente de Chernobyl (Ucrania, 1986) han sido las principales razones del marcado desarrollo de la Radioecología en los últimos años. Contar con modelos predictivos que describan la circulación de radionúclidos en el ambiente es crucial para:*

- *evaluar el impacto ambiental ocasionado por isótopos radiactivos inyectados en distintos tipos de ecosistemas,*
- *identificar los parámetros ambientales críticos que influyen en la dispersión del contaminante, y*
- *establecer las contramedidas más eficaces para mitigar las consecuencias sobre la población y el ambiente.*

En el presente trabajo se utilizan datos experimentales de concentraciones de radiocesio, medidos en distintos estratos de suelo y en vegetación, con el fin de calibrar y validar modelos matemáticos desarrollados para estudiar el transporte vertical en suelo y la transferencia de actividad desde el suelo a la vegetación. Los datos experimentales provienen de estaciones de muestreo ubicadas en ecosistemas semi-naturales la Región Friuli-Venezia-Giulia (noreste de Italia).

1 INTRODUCCIÓN

Una significativa cantidad de radionúclidos antropogénicos se han depositado sobre el suelo de todo el planeta como consecuencia de las explosiones atómicas experimentales, accidentes en centrales nucleares, el normal funcionamiento de las mismas o de conflictos bélicos.

El estudio de la movilidad de estos elementos en el suelo, particularmente su penetración hacia zonas más profundas es de central importancia a los efectos de evaluar la irradiación externa sobre la población y el acceso de material radiactivo a la zona de raíz de las plantas. Es reconocido que el proceso de transferencia suelo-vegetación es crucial en el ingreso de radionúclidos en la cadena alimenticia humana.

Por otro lado un adecuado conocimiento de los perfiles que caracterizan la contaminación radiactiva en suelo y su cambio temporal es de fundamental importancia a los efectos de evaluar la *sensibilidad radioecológica*^{1,2,3} de un ecosistema en términos de riesgo asociado a la contaminación en el presente y, potencialmente, en el futuro.

En relación con la contaminación radiactiva merece una especial atención por su peligrosidad y por ser considerado un óptimo trazador de procesos ambientales el ¹³⁷Cs, isótopo artificial del cesio, depositado sobre prácticamente todo el planeta, en forma homogénea a escala local pero con amplios rangos de variación a escala global, como consecuencia de las experiencias nucleares en atmósfera efectuadas a partir de la segunda mitad del siglo pasado y hasta los '80. Posteriormente gran parte del territorio europeo se vieron afectados con altos niveles de depósito de radiocesio como consecuencia del accidente en la central nuclear de Chernobyl (Mayo, 1986).

Considerando la gran cantidad de datos experimentales obtenidos por la Italian Environmental Protection Agency (APAT) sobre concentraciones de radiocesio, depositados sobre suelos italianos en la región Friuli-Venezia Giulia como consecuencia del accidente de Chernobyl, y teniendo en cuenta la colaboración científica desarrollada entre la APAT y el IMASL (UNSL/Conicet), en el presente trabajo se presentan avances obtenidos en cuanto al modelado del transporte vertical en suelo de ¹³⁷Cs y su transferencia a la vegetación. Los modelos matemáticos propuestos son calibrados con datos experimentales provenientes de distintas estaciones de muestreo seleccionadas.

El transporte vertical en suelo es simulado considerando un modelo simple denominado DSF (difusión-sorption fixation model)⁴, que tiene en cuenta tres componentes de cesio en suelo: la móvil, la sorbida y la fijada en forma irreversible a componentes del suelo.

La transferencia suelo-vegetación es corrientemente evaluada a través del cálculo de los factores de transferencia. De estos los más difundidos son: el *coeficiente de transferencia agregado (Tag)* y la *relación de concentraciones (CR)*⁵.

Estos factores constituyen una herramienta fundamental para obtener información básica de la absorción instantánea de radionúclidos por parte de las plantas, principalmente en los primeros tiempos a continuación del depósito atmosférico. Los valores obtenidos para estos parámetros empíricos conforman las dos principales bases de datos establecidas para los mismos correspondientes a la US Nuclear Regulatory Comisión⁶ y a la International Union of Radioecology^{7,8}. En el trabajo⁹ se resaltan las dificultades que tiene asociado el cálculo de la

transferencia utilizando estos factores, principalmente para tiempos distantes del momento del depósito (más de 3 años). A los efectos de salvar estas dificultades, se introduce la *densidad de flujo anual de actividad*, **FD**, y la densidad de flujo anual de actividad por unidad de concentración de suelo, **J**. Una revisión de estas magnitudes es efectuada en el presente estudio resaltando el acuerdo teórico experimental obtenido y analizando la dependencia temporal de ambas magnitudes.

2 MATERIALES Y MÉTODOS

2.1 Procedimiento experimental

Se analiza una importante base de datos de concentraciones de radiocesio y radiopotasio en muestras de suelo y vegetación obtenida durante un periodo interrumpido de 4 años. Las estaciones de muestreo están situadas en el noreste de Italia. Las muestras fueron tomadas en idénticas condiciones y analizadas en el mismo laboratorio.

Las muestras de suelo fueron tomadas hasta una profundidad de 20 cm dividiendo el monolito extraídos en capas de distintos espesores. Sobre estas muestras fueron efectuados los análisis típicos de suelo (granulometría, capacidad de intercambio catiónico, pH, contenido de sustancia orgánica, etc).

Las muestras de vegetación son recolectadas sobre una superficie de 1 a 4 m² en los lugares donde se obtienen las muestras de suelo. Se trata de prados semi-naturales donde las especies dominantes son gramíneas y leguminosas.

Las actividad de todas las muestras fueron determinadas en el laboratorio de espectrometría gamma de la APAT utilizando detectores GeHP.

2.2 Modelos

Se presenta un modelo macroscópico que considera tres componentes de radiocesio en suelo: la *móvil* ($m(z,t)$), la *sorbida* ($s(z,t)$) y la *ligada* ($b(z,t)$). Las concentraciones ($Bq\ cm^{-3}$) de cada una de las componentes son funciones de la profundidad en el suelo, z y del tiempo, t . Se considera como tiempo inicial ($t=0$) al momento del depósito radiactivo. La componente móvil de Cesio es definida como aquella que puede migrar verticalmente como consecuencias de un gradiente de concentración. La componente sorbida es aquella ligada en modo reversible a particulado del suelo. La componente fija se encuentra ligada en forma irreversible.

Definimos como concentración libre a:

$$f(z,t) \equiv m(z,t) + s(z,t) \quad (1)$$

En consecuencia, la concentración total de cesio en suelo será:

$$c(z,t) = f(z,t) + b(z,t) \quad (2)$$

Considerando que la velocidad del proceso de fijación es proporcional a la componente móvil, concluimos que podemos modificar las ecuaciones correspondientes a una difusión pura (Ley de Fick) de la siguiente manera:

$$\begin{aligned} \frac{\partial f(z,t)}{\partial t} &= D \frac{\partial^2 m(z,t)}{\partial z^2} - km(z,t) - \lambda f(z,t) \\ \frac{\partial b(z,t)}{\partial t} &= km(z,t) - \lambda b(z,t) \end{aligned} \quad (3)$$

donde $D(\text{cm}^2 \text{d}^{-1})$ es el coeficiente de difusión para la componente móvil, $k(\text{d}^{-1})$ es la tasa de transferencia de la componente móvil a la ligada y $\lambda(\text{d}^{-1})$ es la constante física de decaimiento de ^{137}Cs . Asumimos que $s(z,t)$ y $m(z,t)$ se encuentran en equilibrio instantáneo, por lo que:

$$s(z,t) = R m(z,t) \quad (4)$$

Las constantes D , k y R dependen de las características del suelo. Puede asumirse sin perder generalidad que las mismas, para suelo homogéneos, son independientes de la profundidad z .

Utilizando las ecuaciones (1) y (4) en el sistema (3) resulta¹⁰:

$$\begin{aligned} \frac{\partial f(z,t)}{\partial t} &= D_{eff} \frac{\partial^2 f(z,t)}{\partial z^2} - k_{eff} f(z,t) - \lambda f(z,t) \\ \frac{\partial b(z,t)}{\partial t} &= k_{eff} f(z,t) - \lambda b(z,t) \end{aligned} \quad (5)$$

donde $D_{eff} \equiv D/R+1$ y $k_{eff} \equiv k/R+1$

Si al tiempo $t = 0$, la concentración inicial de radionúclidos $Q_0 (\text{Bq cm}^{-2})$ está contenida en una lámina de espesor infinitesimal en $z = 0$ (depósito inicial), la solución del sistema (5) es:

$$\begin{aligned} f(z,t) &= \frac{Q_0}{\sqrt{\pi k_{eff} t L_\infty}} \exp\left(\frac{-x^2}{4L_\infty^2 k_{eff} t}\right) \exp(-k_{eff} t) \exp(-\lambda t) \\ b(z,t) &= k_{eff} \int_0^t f(z,t') dt' \exp(-\lambda t) \end{aligned} \quad (6)$$

donde $L_\infty \equiv \sqrt{D/k} = \sqrt{D_{eff}/k_{eff}}$ y $k_{eff} \equiv k/R+1$

La evolución temporal del perfil de concentración puede ser descripta solamente con dos parámetros: L_∞ (longitud de difusión en la situación de equilibrio) y k_{eff} ¹¹:

$$C(z,t) \exp(\lambda t) \rightarrow (Q_0 / L_\infty) \exp(-z / L_\infty) \quad \text{cuando } t \rightarrow \infty$$

La concentración media de la capa i -ésima, situada entre las profundidades z_{i-1} , z_i es:

$$C_i(t) \equiv \frac{1}{(z_i - z_{i-1})} \int_{z_{i-1}}^{z_i} C(z,t) dz \quad (i: 1,2,\dots,n \text{ y } z_0 = 0) \quad (7)$$

A partir de las soluciones para $f(z,t)$ y $b(z,t)$ dadas en (6), las concentraciones medias de estas cantidades, F_i y B_i respectivamente, son:

$$F_i(t) = \frac{Q_0}{(z_i - z_{i-1})} \left[\operatorname{erf} \left(\frac{z_i}{2L_\infty \sqrt{k_{eff} t}} \right) - \operatorname{erf} \left(\frac{z_{i-1}}{2L_\infty \sqrt{k_{eff} t}} \right) \right] \exp(-(k_{eff} + \lambda)t) \quad (8)$$

$$B_i(t) = k_{eff} \int_0^t F_i(t') dt' \exp(-\lambda t)$$

Donde erf es la función error. La concentración media de radiocesio en el compartimento i es:

$$C_i(t) = F_i(t) + B_i(t) \quad (9)$$

Esta ecuación, fácilmente computable, permite ajustar el modelo con los datos experimentales, usualmente obtenidos como concentraciones medias por capa de suelo.

A los efectos de modelar el proceso de transferencia suelo-vegetación se introduce la densidad de flujo anual, FD ($\text{Bq m}^{-2} \text{a}^{-1}$) definida del siguiente modo:

$$FD = \sum_{i=1}^m C v_i B D_i \quad (10)$$

donde m indica el número de muestras de planta que se efectúan por año, $C v_i$ (Bq kg^{-1}) y $B D_i$ ($\text{kg m}^{-2} \text{a}^{-1}$) representan la actividad medida en vegetación y la densidad de biomasa de la i -ésima muestra, respectivamente. FD representa la actividad que pasa desde el suelo a las plantas por año y por m^2 . La densidad de flujo por unidad de concentración en suelo, $J(\text{a}^{-1})$, es definida:

$$J = \frac{FD}{C_s} \quad (11)$$

donde C_s (Bq m^{-2}) es la concentración por unidad de superficie en suelo.

3 RESULTADOS Y DISCUSIÓN

En la figura 1 se representan los valores experimentales conjuntamente con las curvas teóricas para la longitud de difusión de radiocesio en tres áreas de muestreo seleccionadas⁴. En cada caso se indica el error asociado al ajuste calculado como: $\sum_i (L_{\text{Dexperimental}} - L_{\text{Dteórico}})_i^2$. Los valores de los parámetros del modelo DRF determinados son mostrados en la tabla 1. Para cada una de las áreas estudiadas la relación D/k (difusión/fijación) es muy similar, esto está de acuerdo con las similares características del suelo en las regiones consideradas, particularmente el contenido de arcilla que se encuentra asociado con la fijación del cesio al suelo.

Tabla 1. Modelo DRF. Coeficientes obtenidos para tres áreas y error de ajuste

Cantidad	Area 1	Area 2	Area 3
L_D (cm)	6.7	5.7	5.9
k_{eff} (d ⁻¹)	3.5 E-4	4.9 E-4 d ⁻¹	8.8 E-4
error de ajuste (cm ²)	1.97	4.93	6.96

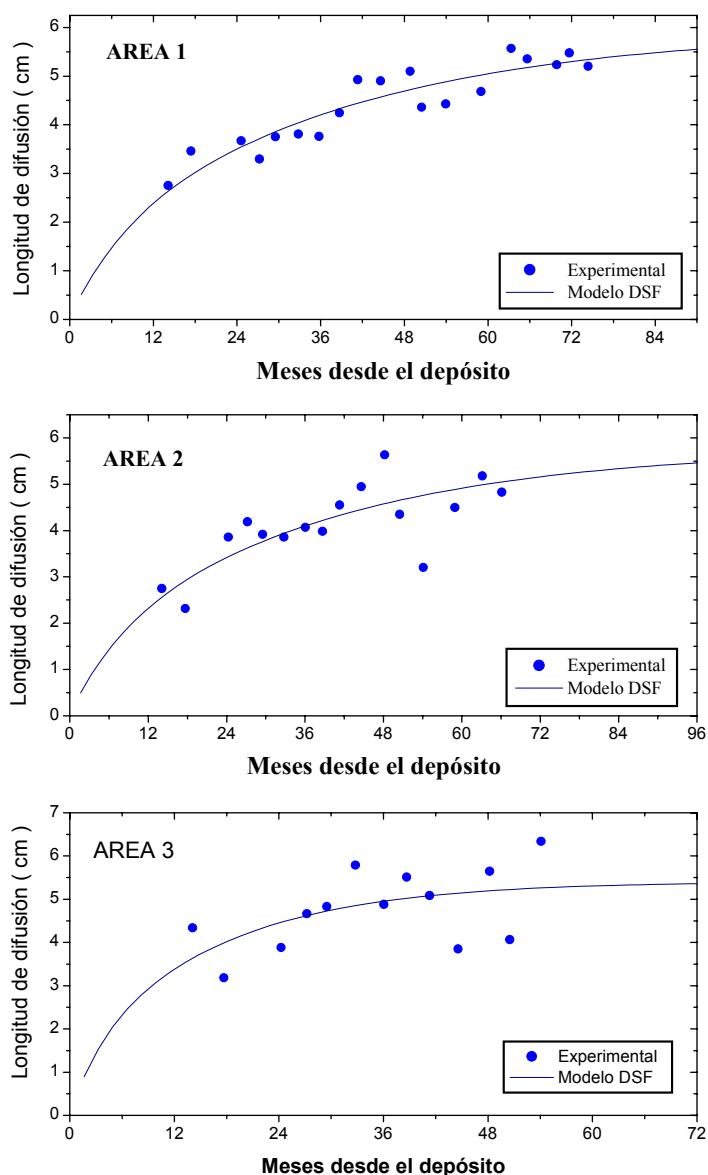


Figura 1. Longitud de difusión en función del tiempo: valores experimentales y curvas teóricas

La figura 2 muestra la evolución temporal del perfil de concentración en cada una de las áreas. En todos los casos se encuentra un buen ajuste del modelo a los valores experimentales.

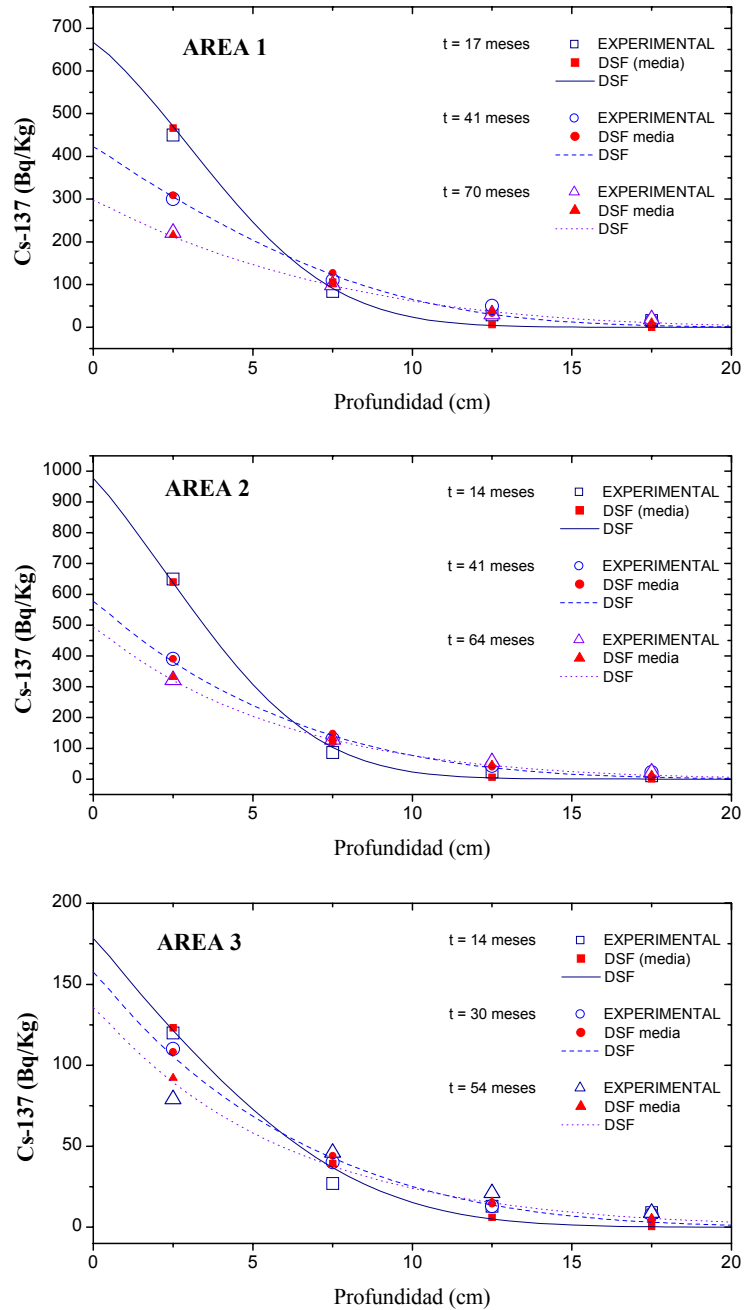


Figura 2. Evolución temporal del perfil de concentración con la profundidad. Se indican, para los distintos tiempos de muestreo, los valores experimentales, los promedios teóricos y las curvas teóricas

En la tabla 2, para otro conjunto de áreas de muestreo⁹, se indican cantidades estadísticas de distintas variables de interés.

Tabla 2. Actividad de radiocesio y radiopotasio en muestras de suelo y plantas. En suelo se consideran 3 estratos: L₁: 0-2,5 cm; L₂: 2,5-7,5 cm y L₃: 7,5-12,5 cm

Cantidad	Capa de suelo	Tipo de distribución	Media	Desviación estándar	N ^b
Concentración de ¹³⁷ Cs en suelo (Bq kg ⁻¹)	L ₁	Log normal	699	419	74
	L ₂	Log normal	179	87	72
	L ₃	Log normal	77	65	73
Concentración de ⁴⁰ K en suelo (Bq kg ⁻¹)	L ₁	Normal	502	269	74
	L ₂	Normal	518	283	72
	L ₃	Normal	526	294	73
Concentración de ¹³⁷ Cs en plantas (Bq kg ⁻¹)		Log normal	21	31	59
Concentración de ⁴⁰ K en plantas (Bq kg ⁻¹)		Normal	578	174	63
L _R (cm)		Log normal	3.0	1.8	74
Tag ¹³⁷ Cs (m ² kg ⁻¹)		Log normal	9.27E-04	1.47E-03	59
Tag ⁴⁰ K (m ² kg ⁻¹)		Normal	1.55E-02	1.12E-02	63

^b número de muestras

En la tabla 3 se muestran los valores para las cantidades *FD* y *J* para ¹³⁷Cs y para ⁴⁰K. Los mismos corresponden a valores medios anuales, sobre todos los sitios de muestra, durante el periodo de 4 años de muestreo.

Tabla 3. Densidad de flujo y densidad de flujo por actividad superficial de suelo para la transferencia suelo-vegetación de ¹³⁷Cs y ⁴⁰K. Se indican valores medios y desviación estándar para cada uno de los años de muestreo.

Tiempo desde el depósito	<i>FD</i> (¹³⁷ Cs)		<i>FD</i> (⁴⁰ K)		<i>J</i> (¹³⁷ Cs)		<i>J</i> (⁴⁰ K)	
	Bq m ⁻² a ⁻¹		Bq m ⁻² a ⁻¹		x 10 ⁻⁴ a ⁻¹		x 10 ⁻⁴ a ⁻¹	
año	Media	SD	Media	SD	Media	SD	Media	SD
1	59	136	294	194	15.0	26.7	78.8	50.9
2	22	46	207	100	5.6	8.1	54.1	22.0
3	14	22	289	147	3.2	2.6	62.7	27.2
4	4	2	358	261	1.6	0.7	51.6	16.8

Mientras *FD* y *J*, para ¹³⁷Cs, disminuyen con el transcurso del tiempo, debido al proceso de fijación de cesio al suelo, un comportamiento diferente se observa para ⁴⁰K, elemento natural, análogo químico de cesio, cuya disponibilidad para las plantas no varía sustancialmente con el tiempo.

La figura 3 muestra la variación temporal del cociente de las densidades de flujo de los dos radionúclidos considerados (^{137}Cs y ^{40}K). La figura 4 muestra que la relación entre $\log \langle J \rangle$ y el tiempo puede ser óptimamente ajustada por una función lineal.

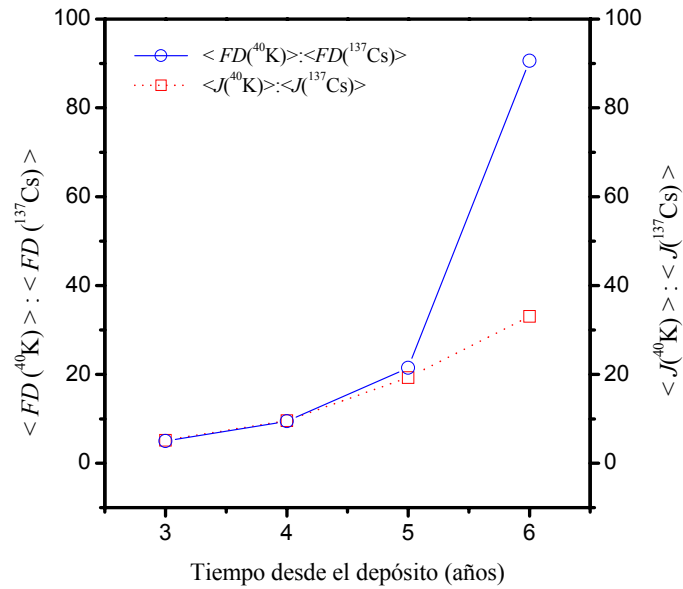


Figura 3. Variación temporal de las relaciones $\langle FD(^{40}\text{K}) \rangle : \langle FD(^{137}\text{Cs}) \rangle$; $\langle J(^{40}\text{K}) \rangle : \langle J(^{137}\text{Cs}) \rangle$ durante los años de muestreo.

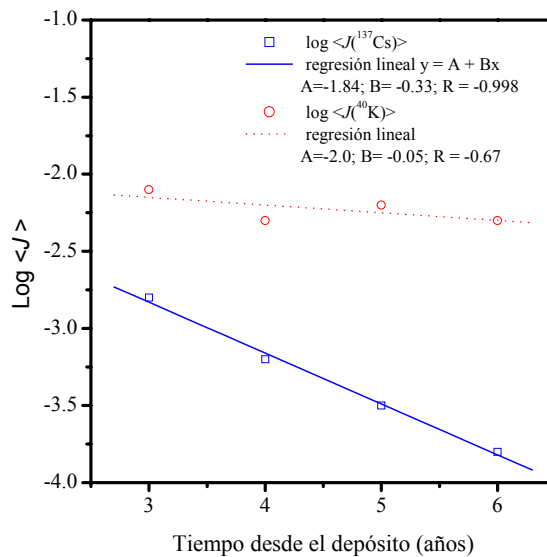


Figura 4. $\log \langle J \rangle$ para ^{40}K y ^{137}Cs en función del tiempo

En la figura 5 se representa J en función de la profundidad de relajación de ^{137}Cs en suelo (se supone una distribución exponencial decreciente, la profundidad de relajación es la inversa del coeficiente característico de la exponencial). Como era de esperarse una mayor transferencia anual de actividad se observa para distribuciones mas superficiales del contaminante en suelo.

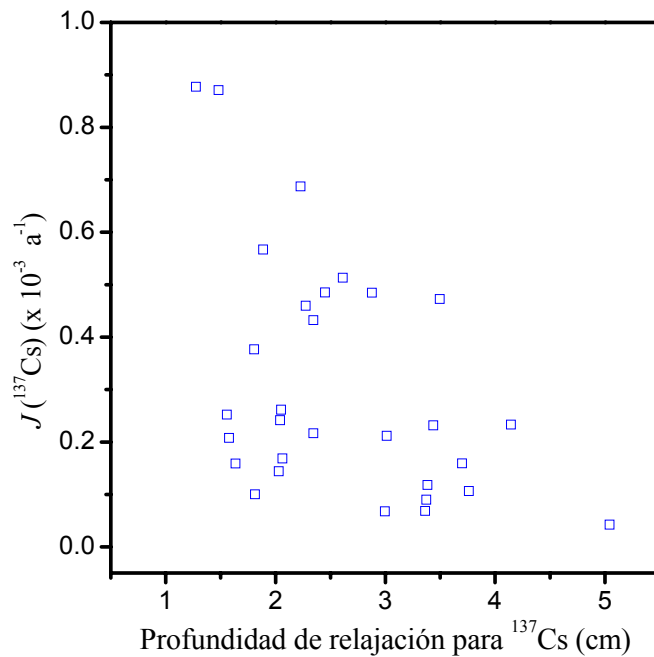


Figura 5. Transferencia de ^{137}Cs como función de la profundidad de relajación de este radionúclido en suelo

4 CONCLUSIONES

En este trabajo se muestra que un modelo simple que tiene en cuenta los procesos de difusión, sorción y fijación, representa razonablemente el proceso de migración vertical de radiocesio en suelos no perturbados. El modelo presenta solamente dos parámetros libres, con claro significado físico: la longitud de difusión para la situación de equilibrio y el coeficiente efectivo de fijación de la fase que difunde. El primero determina el perfil vertical del contaminante en el suelo en la situación de equilibrio, cuando el transporte vertical es despreciable. El segundo gobierna la transición desde la situación inicial, momento del depósito, hasta la situación de equilibrio.

Analizando una importante cantidad de datos experimentales se logra describir el proceso de transferencia de actividad suelo-vegetación a través de dos cantidades de simples y de fácil evaluación empírica: la densidad de flujo de actividad (FD) y la densidad de flujo de actividad por unidad de concentración superficial del contaminante en suelo (J). FD muestra

una baja variabilidad comparada con la que presentan los coeficientes tradicionales para evaluar este proceso de transferencia. Los valores de **FD** fueron determinados para ^{137}Cs y ^{40}K , llevándose a cabo un análisis comparativo del proceso de transferencia para ambos radionúclidos. Una relación lineal, con pendiente negativa, se encuentra entre el $\log\langle J(^{137}\text{Cs}) \rangle$ y el tiempo transcurrido desde el depósito, mientras que la misma cantidad evaluada para ^{40}K permanece aproximadamente constante.

Los dos modelos utilizados permiten una adecuada descripción de los fenómenos analizados y una clara identificación y cuantificación de los procesos físicos estudiados.

5 REFERENCIAS

- [1] Aarkrog, A. *Environmental studies on Radioecological sensitivity and variability with special emphasis on the fallout nuclides Sr-90 and Cs-137*. In Risø-R-437. Risø National Laboratory, Denmark. 1979.
- [2] Howard, B. J. *The concept of radioecological sensitivity*. Rad. Prot. Dosim. 92, 29-34. 2000.
- [3] Howard, B. J., Strand, P., Assimakopulus, P., Bréchnignac, F., Gascó, C. Méltivier, L., Moberg, L., Smith, J., Tamponnet, C., Trueba, C., Voight, G., Wright, S. *Estimation of radioecological sensitivity*. Radioprotection 37 (C1), 1167-1173. 2002.
- [4] Toso, J.P. and Velasco R. H. *Describing the observed vertical transport of radiocesium in specific soils with three time-dependent model*. J. Environ. Radioactivity, 53, 133-144. 2001.
- [5] Steiner M., Linkov I. & Yoshida S. *The role of fungi in the transfer and cycling of radionuclides in forest ecosystems*. J. Environ. Radioactivity, 58, 217 - 241. 2002.
- [6] Ng, Y. C., Colsher, C.S. & Thompson, S.E. *Transfer factor for assessing the dose from radionuclides in agricultural products*. In Biological implications in radionuclides released from nuclear industries. Vol. 2, pp 295-318. IAEA, Vienna. (1979)
- [7] Frissel, M. J. *An update of the recommended soil-to-plant transfer factors of ^{90}Sr , ^{137}Cs and transuranics*. VIIIth Report of the Working Group Soil-to-Plant Transfer Factors, IUR. 1992.
- [8] Frissel, M. J., Deb, D. L., Fathony, M. Lin, Y. M., Mollah, A. S., Ngo, N. T., Othman, I., Robison, W. L., Skarlou-Alexiou, V., Topcuoğlu, S., Twining, J. R., Uchida, S. & Wasserman, M. A. *Generic values for soil-to-plant transfer factor of radiocesium*. J. Environ. Radioactivity, 58, 113 - 128. 2002.
- [9] Velasco, H., Juri Ayub, J., Belli, M. and Sansone U.: *Temporal variation of the ^{137}Cs and ^{40}K flux from soil to grass in semi-natural ecosystems*. J. Environ. Radioactivity 71, 225-241. 2004.
- [10] Crank, J. *The Mathematics of Diffusion*. Clarendon Press . Oxford. 1975.
- [11] Antonopoulos-Domis, M., Clouvas, A., Hiladakis, A., & Kadi, S. *Radiocesium distribution in undisturbed soil: measurements and diffusion-advection model*. Health Physics, 69, 949-953. 1995.