

# Modelo Simple para el Transporte de Radionúclidos en el Suelo

J.P. TOSO and H. VELASCO\*

DPTO DE FÍSICA (IMASL - UNIVERSIDAD NACIONAL DE SAN LUIS - CONICET)  
EJERCITO DE LOS ANDES 950 - (5700) SAN LUIS - ARGENTINA  
e-mail: hvelasco@unsl.edu.ar

En el presente trabajo se presenta un modelo simple de transporte de radiocesio ( $^{137}\text{Cs}$ ) en suelos. Se considera que el  $^{137}\text{Cs}$  está constituido por dos especies: una especie adsorbida e inmobilizada, y otra especie que difunde en forma fickiana. La calibración del modelo se realiza con datos experimentales de concentraciones de  $^{137}\text{Cs}$  en suelos indisturbados, obteniéndose un acuerdo teórico experimental aceptable

In the present paper is presented a simple model to describe the vertical transport process of radiocesium ( $^{137}\text{Cs}$ ) in undisturbed soil. The model considers that a part of  $^{137}\text{Cs}$  is immobilized rapidly in the soil, and the other part presents a vertical diffusion process according to the Fick law. The model calibration was performed using experimental data of  $^{137}\text{Cs}$  concentration obtained in an area in the Northeastern region of Italy. The model predicts, reasonably the variation of the concentration level in the different soil layer.

## Introducción

En los últimos años ha crecido en forma notable el interés por conocer los mecanismos principales que intervienen en la circulación de contaminantes radiactivos en el ambiente<sup>1</sup>. Las investigaciones radiológicas desarrolladas, principalmente en territorio europeo como consecuencia del accidente de Chernobyl (mayo de 1986), han puesto en evidencia la necesidad de adaptar, a distintas situaciones ambientales, modelos descriptivos de los mecanismos de dispersión de radionúclidos. Dentro de este marco global, la migración de radionúclidos en suelo tiene particular importancia por dos razones fundamentales. Primero, porque el suelo se comporta como reservorio, donde la radiactividad puede permanecer atrapada en las capas superficiales durante períodos apreciables de tiempo, contribuyendo en forma directa a la exposición de los individuos que eventualmente se encuentran sobre dicho suelo. En segundo lugar, porque los isótopos de una larga vida media pasan del suelo a la vegetación, y de esta a los animales, transformándose así el suelo en una fuente de ingreso continuo a la cadena alimentaria humana.

La contaminación radiactiva del suelo, proveniente de explosiones nucleares en atmósfera, o de accidentes en reactores, está compuesta por diversos radionúclidos. Entre ellos merecen destacarse: el  $^{137}\text{Cs}$ , con una *semivida* de 33 años; y el  $^{90}\text{Sr}$ , con una *semivida* de 28 años.

En el presente trabajo es estudiada la migración vertical de  $^{137}\text{Cs}$  en suelo indisturbado. Se utiliza un modelo difusivo simple, teniendo en cuenta la fijación de este radioelemento por parte de determinados componentes del suelo.

## Modelo

Este modelo considera al  $^{137}\text{Cs}$  presente en el suelo, formando parte de dos especies: una, adsorbida e inmobilizada por la fase sólida del suelo; la otra, libre, difunde por la fase líquida (humedad) de dicho suelo. Teniendo en cuenta las isotermas de adsorción (y desorción) obtenidas en laboratorio<sup>2</sup> para distintos tipos de suelo, y considerando, además, la mayor rapidez que la adsorción posee respecto de la difusión<sup>3</sup>, se propone que el  $^{137}\text{Cs}$  adsorbido por la fase sólida del suelo, y el  $^{137}\text{Cs}$  libre de la fase líquida, cumplen una relación entre sus

concentraciones dada por una isoterma de Langmuir:

$$C_A = \frac{A \cdot C_L}{B + C_L} \quad (1)$$

con

$$C_L + C_A = C_T \quad (2)$$

siendo

$C_L$  (Bq/cm<sup>3</sup>) : concentración de <sup>137</sup>Cs libre

$C_A$  (Bq/cm<sup>3</sup>) : concentración de <sup>137</sup>Cs adsorbido

$C_T$  (Bq/cm<sup>3</sup>) : concentración de <sup>137</sup>Cs total

Todas las concentraciones son referidas al volumen total (sólido+líquido).

En (1),  $A$  y  $B$  son constantes que dependen de las propiedades físico-químicas del suelo, y de la relación entre volúmenes de componentes sólida y líquida que conforman dicho suelo.

La migración del <sup>137</sup>Cs es tratada como una difusión fickiana vertical de la especie libre, a la cual se le asigna un coeficiente de difusión  $D$  constante, luego se tiene:

$$J_L = -D \frac{\partial C_L}{\partial x} \quad (3)$$

donde

$J_L$  (Bq.cm<sup>-2</sup>.año) es el flujo del difundente  $C_L$

$D$  (cm<sup>2</sup>.año<sup>-1</sup>) es el coeficiente de difusión de  $C_L$

Combinando (1), (2) y (3) y considerando el decaimiento radiactivo del <sup>137</sup>Cs (constante de decaimiento  $\lambda = 2,3 \cdot 10^{-2}$  año<sup>-1</sup>), se tiene:

$$\frac{\partial C_T}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C_L}{\partial x^2} - \lambda \cdot C_T \quad (4)$$

donde

$$C_L = -\frac{1}{2} (A + B - C_T) + \frac{1}{2} \sqrt{(A + B - C_T)^2 - 4 \cdot B \cdot C_T} \quad (5)$$

Mediante la relación (5), la ecuación (4) tiene sólo como variables a  $x$  y  $C_T$ . Luego (4) puede resolverse numéricamente para obtener la curva  $C_T$  vs  $x$  que mejor ajuste los datos experimentales, siendo  $D$  el parámetro de ajuste.

### Calibración del modelo

Los datos experimentales utilizados para este modelo corresponden a medidas realizadas entre julio de 1987 y diciembre de 1990, referidas al <sup>137</sup>Cs depositado en suelos del norte de Italia<sup>4</sup>. Este contaminante radiactivo proviene, en su gran mayoría, del accidente de Chernobyl, ocurrido en mayo de 1986. En el área de estudio, se tomaron, con periodicidad estacional, un total de 12 muestras, correspondiéndole a cada muestra un tiempo diferente. Cada una de las 12 muestras conciste en la extracción de una columna de suelo, la cual tiene una sección cuadrada de 30x30 cm<sup>2</sup> y una profundidad de 20cm. Cada columna fue a su vez dividida en 4 capas de 5 cm de espesor cada una. Para cada capa se determinó la concentración de <sup>137</sup>Cs utilizando detectores de germanio hiperduro. El error estimado en estas mediciones, para toda la práctica experimental, es del 20%. Además, para cada muestra, fueron determinadas las principales características físicas y químicas del suelo.

Las muy bajas concentraciones de <sup>137</sup>Cs que se obtuvieron en la región permiten aproximar las isotermas (1) mediante una relación lineal, por lo que (1) y (2) pueden ponerse como:

$$C_A = R \cdot C_L \quad (6)$$

$$C_T = (R + 1) \cdot C_L \quad (7)$$

siendo  $R = A/B$

La ecuación (4) resulta ahora:

$$\frac{\partial C_T}{\partial t} = Def \frac{\partial C_T}{\partial x^2} - \lambda \cdot C_T \quad (8)$$

La expresión (8) es la conocida ecuación<sup>5</sup> que describe la difusión de una sola especie  $C_T$  con un coeficiente de difusión  $Def$ .

En este modelo,  $Def$  es el coeficiente de difusión efectivo para el  $^{137}\text{Cs}$  en su conjunto ( $C_T$ ), sin discriminar la parte libre ( $C_L$ ) de la parte adsorbida ( $C_A$ ), y está dado por:

$$Def = \frac{D}{R+1} \quad (9)$$

Dada la condición inicial ( $t=0$ ) de que todo el difundente esté concentrado en la superficie ( $x=0$ ), la solución de (8) es <sup>5</sup> :

$$C_T(x,t) = \frac{M_t}{(\Pi \cdot Def \cdot t)^{1/2}} \exp\left(\frac{-x^2}{4 \cdot Def \cdot t}\right) \quad (10)$$

siendo

$$M_t = [\exp(-\lambda \cdot t)] \cdot \int_0^\infty C_T(x,0) dx = \int_0^\infty C_T(x,t) dx$$

El valor de  $M_t$  ( $\text{Bq}/\text{cm}^2$ ) es la cantidad total de  $^{137}\text{Cs}$  contenido en una columna de profundidad infinita y de  $1 \text{ cm}^2$  de sección, para un determinado tiempo  $t$ . Como es ampliamente reconocido en la literatura<sup>1</sup>, el 95 % del  $^{137}\text{Cs}$  se encuentra confinado en los primeros 10 cm del suelo, por lo tanto el valor de  $M_t$  se puede calcular con muy buena aproximación a partir de los datos experimentales de concentración:

$$M_t \cong \sum_i C_{Ti} \cdot \Delta x_i$$

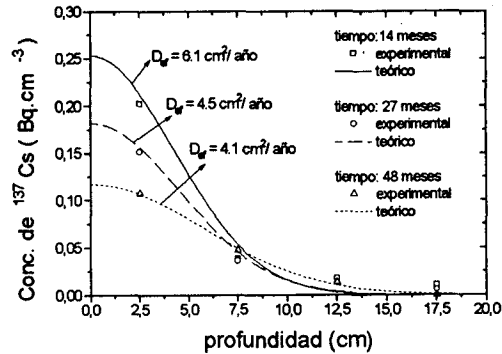
En esta sumatoria,  $i$  recorre las 4 capas de la columna que corresponde a la muestra obtenida al tiempo  $t$ , tomándose como tiempo de la deposición inicial ( $t=0$ ), a la fecha del accidente de Chernobyl (mayo de 1986). Los valores de  $C_{Ti}$ , son las concentraciones medias para cada capa, y son justamente los valores provistos por el experimento.

Con (10) se realiza el ajuste de mínimos cuadrados tomándose a  $Def$  como parámetro, obteniéndose 12 valores (uno para cada columna o tiempo). Promediando estos valores se tiene:

$$\overline{Def} = 4,6 \pm 1 \text{ cm}^2 / \text{añ}$$

La siguiente figura muestra la calibración del modelo para tres tiempos distintos, tomando como tiempo inicial a mayo de 1986 (accidente de Chernobyl). Los puntos corresponden a los

valores de concentración media de  $^{137}\text{Cs}$  ( $C_{Ti}$ ) correspondientes a cada capa de suelo. Las curvas teóricas corresponden a la ecuación (10) ( $C_T$  vs  $x$ ) siendo  $Def$  el parámetro de ajuste.



Para la estimación de la constante  $R$  de (6) se utilizaron isoterms disponibles en la literatura<sup>6</sup> para suelos de características similares al tratado aquí, junto con los datos experimentales de la humedad del terreno estudiado. El valor obtenido para esta constante fue:

$$R = 89$$

Según el modelo aquí presentado, con este valor de  $R$  y utilizando (6) y (9), resulta para los suelos considerados en este trabajo:

a) La concentración de  $^{137}\text{Cs}$  adsorbido ( $C_A$ ), es 89 veces superior a la concentración de  $^{137}\text{Cs}$  libre ( $C_L$ ).

b) El coeficiente de difusión  $D$  para el  $^{137}\text{Cs}$  libre ( $C_L$ ) es 90 veces superior al coeficiente de difusión  $Def$  para el  $^{137}\text{Cs}$  total ( $C_T$ ), o sea que  $D \approx 400 \text{ cm}^2/\text{año}$ .

### Conclusiones:

Los mecanismos que gobiernan la migración vertical de radionúclidos en suelos son extremadamente complejos, dependiendo de variables ambientales que en la mayoría de los casos resultan imposibles de cuantificar. Existe la tendencia a estudiar este fenómeno utilizando modelos simples, particularmente modelos de compartimento, o modelos difusivos. En este trabajo se propuso un modelo difusivo para

describir el transporte vertical de  $^{137}\text{Cs}$  en suelos, contemplando la retención parcial ejercida por dicho suelo sobre el radionúclido estudiado. Utilizando datos experimentales<sup>4</sup> obtenidos en forma continua durante casi cuatro años, el modelo es calibrado, obteniéndose para el coeficiente de difusión efectivo, un valor concordante con los valores generales dados por la literatura<sup>3</sup>. El acuerdo teórico-experimental es aceptable, principalmente para las concentraciones más superficiales. Situaciones más complejas, como la coexistencia de dos especies difusivas, o el transporte advectivo, pueden incorporarse al modelo en una segunda instancia, y tener así en cuenta otros mecanismos que influyen en este proceso de transporte.

### Referencias

- 1 - *Proc. CEC Int. Conf. on "Transfer of radionuclides in natural and semi-natural environments" (Udine)*, (Eds. G.Desmet, P. Nassimbeni and M. Belli), Elsevier Applied Science Publishers, London and New York (1990).
- 2 - Comans R. "Sorption of cadmium and cesium at mineral/water interfaces". PhD thesis - Univ. de Utrecht (Holanda)- (1990).
- 3 - Jorgensen S.E., "Fundamentals of Ecological Modelling". Elsevier (1986).
- 4 - Velasco H., Belli M., Sansone U., Menegon S. *Health Physics*, **64**, 37-44 (1993).
- 5 - Crank J. "The mathematics of diffusion". Clarendon Press (1975).
- 6 - Cremers A., Elsen A., De Preter P., Maes A. *Nature*, **335**, 247-249 (1988)