

TRANSPORTE DE ^{137}Cs EN SUELO: CONFRONTACIÓN ENTRE MODELOS DESCRIPTIVOS

J. P. TOSO⁽¹⁾, M.E. RODRIGUEZ⁽¹⁾, M. BELLÍ⁽³⁾ y R. H. VELASCO^{(1) (2)}

(1) IMASL – Dpto. de Física - Universidad Nacional de San Luis
(2) CONICET (3) Agenzia Nazionale per la Protezione dell' Ambiente (Italia)
EJÉRCITO DE LOS ANDES 950- (5700) - SAN LUIS - ARGENTINA
e-mail: jtoso@unsl.edu.ar

El presente trabajo está centrado en la modelización del proceso de migración vertical de ^{137}Cs en suelos no perturbados. Los datos experimentales utilizados provienen del norte de Italia, y son referidos a ^{137}Cs originado en Chernobyl. Se confrontan dos modelos descriptivos similares, RABES y RABES I, de 3 y 2 parámetros libres respectivamente. Se muestra que la sensibilidad de estos modelos es similar, y que si bien ambos modelos describen adecuadamente el proceso de migración del ^{137}Cs , RABES I tiene mejor capacidad predictiva que RABES. Estas propiedades se trasladan al cálculo de la tasa de dosis de radiación gamma en aire: al utilizar RABES I se obtiene mejor predicción para la tasa de dosis, que al utilizar RABES. Finalmente se ensaya una conexión cuantitativa entre RABES I, y un modelo difusivo de transporte de dos parámetros.

This paper is focused on the modeling of vertical transport process of ^{137}Cs in undisturbed soil. Measures of ^{137}Cs deposited in the northeastern region of Italy, following the Chernobyl accident, were used for the calibration's model. It is confront two similar descriptive models, RABES and RABES I, with 3 and 2 parameters respectively. It is shown that the sensibility and the fit to experimental values are similar for the two models, but the predictive capacity is better for RABES I than for RABES. This last fact lead to the fact that a predictive capacity for the external dose rate is better for RABES I than for RABES. Finally, a connection between RABES I and a diffusion-fixation model of two parameters has been studied.

I-INTRODUCCIÓN

El accidente de Chernobyl (abril 1986) provocó importantes depósitos de radionúclidos en los suelos europeos. Entre esos radionúclidos, el ^{137}Cs es uno de los más perjudiciales, tanto como fuente de irradiación externa directa (suelo-aire), como por su ingreso (desde el suelo) a la cadena alimentaria humana. En consecuencia, el estudio de modelos que describan la forma y evolución temporal del perfil vertical de ^{137}Cs en suelo es de importancia radioecológica^[1].

El presente trabajo está centrado en la modelización del proceso de migración vertical de ^{137}Cs en suelos no perturbados. Dos modelos descriptivos son confrontados: RABES^[2], y una variante de este último llamada RABES I. Ambos modelos parten de una misma hipótesis: el perfil de concentración del ^{137}Cs es una función exponencial del tipo $\exp(-z/L)$, en donde z es la profundidad en el suelo y L es la llamada *longitud de relajación* del perfil de concentraciones. La expresión utilizada para L , además de ser creciente con el tiempo, es función de los parámetros libres que caracterizan a cada modelo: tres para RABES y dos para RABES I. La confrontación entre los modelos se realiza teniendo en cuenta la sensibilidad y la capacidad predictiva respecto de L . A partir de esto último se infiere la capacidad predictiva respecto de la tasa de dosis a 1m. del suelo. Finalmente se propone una conexión cuantitativa entre RABES I y un modelo físico de tipo difusivo^{[3][4]}. Esta conexión permite asociar a los parámetros de RABES I con magnitudes físicas tales como los coeficiente de difusión y de fijación para el ^{137}Cs presente en el terreno.

II-MODELIZACIÓN

Los modelos RABES^[2] y RABES I parten de la siguiente hipótesis: el perfil vertical de ^{137}Cs en suelo puede describirse mediante la expresión

$$C(z, t) = [Q_0 / L(t)] \exp[-z / L(t)] \exp(-\lambda t) \quad (\text{ec1})$$

siendo
 $C(z, t)$ (Bq cm^{-3}): ^{137}Cs total a la profundidad z (cm) y al tiempo t (d) de ocurrido el depósito.

Q_0 (Bq cm^{-2}): depósito inicial ($t=0$).

$L(t)$ (cm): longitud de relajación del perfil (ver APÉNDICE) al tiempo t (d).

λ (d^{-1}): constante de decaimiento para el ^{137}Cs .

En RABES, $L(t)$ adopta la expresión

$$L(t) \equiv [\alpha_0 \exp(-\alpha_1 t) + \alpha_2]^{-1} \quad (\text{ec2})$$

donde $[\alpha_0 + \alpha_2]^{-1}$ (cm) es el valor de $L(t)$ en $t = 0$, $[\alpha_2]^{-1}$ (cm) es el valor de $L(t)$ para el estado final de equilibrio, y α_1 (d^{-1}) es el factor que caracteriza el ritmo de cambio del perfil de ^{137}Cs desde su estado inicial hacia su estado de equilibrio.

En RABES I, $L(t)$ adopta la expresión

$$L(t) \equiv L_R [1 - \exp(-k_R \cdot t)] \quad (\text{ec3})$$

donde L_R (cm) es el valor de $L(t)$ que caracteriza al estado final de equilibrio, y k_R (d^{-1}) es el factor que caracteriza el ritmo de cambio del perfil de ^{137}Cs . La ec3 determina para RABES I la condición inicial $L = 0$ para $t = 0$.

III - MATERIAL Y METODOS

a - Datos experimentales

Se utilizaron muestras de suelos no perturbados provenientes del norte de Italia^[5]. Estos suelos están contaminados con radiocésio originado en Chernobyl (abril 1986). La región fue dividida en áreas, y las muestras fueron tomadas con frecuencia estacional, entre julio de 1987 y julio de 1992. Cada muestra (columna) fue dividida en 4 estratos de 5 cm de espesor c/u. Para cada estrato se determinó la concentración de ¹³⁴Cs y ¹³⁷Cs. El error asociado a las mediciones es del 20%.

b- Calibración de los modelos

Los modelos fueron calibrados haciendo un ajuste por mínimos cuadrados. El ajuste se hizo respecto de la longitud de relajación L (ver APÉNDICE). Para cada muestra se calculó un valor de L , el cual constituye un "punto experimental". Estos puntos se ajustaron con la función $L(t)$ definida para cada modelo, obteniéndose así el valor de los parámetros correspondientes, los cuales son mostrados en la Tabla 1.

Tabla 1. Parámetros obtenidos para cada modelo.

MODELO	Area 1	Area 2
RABES α_0 α_1 α_2^{-1}	3.1 E-1 cm ⁻¹ 1.3 E-3 d ⁻¹ 5.9 cm	8.1 E-1 cm ⁻¹ 3.4 E-3 d ⁻¹ 4.8 cm
RABES I L_R k_R	5.5 cm 1.4 E-3 d ⁻¹	4.9 cm 1.8 E-3 d ⁻¹
DF L_D k_D	6.7 cm 3.5 E-4 d ⁻¹	5.7 cm 4.9 E-4 d ⁻¹

IV - SENSIBILIDAD DE LOS MODELOS

La sensibilidad de un modelo cobra importancia a la hora de contrastar ajustes: interesa comparar los valores que un mismo parámetro toma para distintos tipos de suelo, y este análisis será más confiable mientras mayor sea la sensibilidad del modelo respecto del parámetro en cuestión.

Para evaluar la sensibilidad de los modelos se define la siguiente función:

$$FR_i(t) \equiv \left[\frac{\partial L(t)}{\partial f_i} \right]_{f_1=1, \dots, f_n=1} \quad (\text{ec4})$$

donde $L(t)$ se expresa como $L(t, f_1 p_1^0, \dots, f_n p_n^0)$, siendo p_i^0 el valor del parámetro i -ésimo (p_i) obtenido por el ajuste (Tabla 1). La función $FR_i(t)$ me indica la fracción relativa de cambio para $L(t)$, cuando el valor del parámetro i -ésimo es modificado una fracción f_i , próxima a su valor de ajuste ($f_i \approx 1$). Por ejemplo, el punto (33, 0.43) de la curva $FR(t)$ para el parámetro α_1 (Fig. 1) indica

que, para $t = 33$ meses, un cambio del 10 % en α_1 (respecto de su valor de ajuste α_1^0) produce un cambio del 4,3 % en $L(t)$. La Fig. 1 muestra las curvas $FR(t)$ para los pares confrontables, o sea el par [$L_R \alpha_2^{-1}$] y el par [$k_R \alpha_1$], para el Área 1.

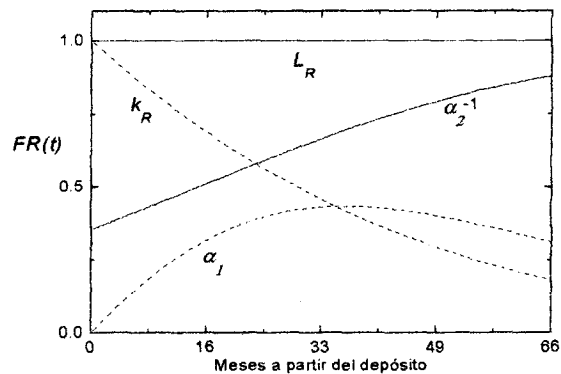


Fig. 1. Sensibilidad de los modelos: Curvas $FR(t)$ para el Área 1.

V - CAPACIDAD PREDICTIVA

La capacidad predictiva de los modelos fue evaluada respecto de la longitud de relajación L . La metodología consiste en ajustar la curva t vs. L tomando solamente la primera mitad de los puntos experimentales y luego extrapolar para la segunda mitad. Así por ejemplo para el Área 1, en donde se tienen 19 puntos (épocas), se realiza el ajuste con los primeros 10 puntos, y luego se extrapola la curva obtenida para los 9 puntos restantes. La Fig. 2 muestra dicho procedimiento.

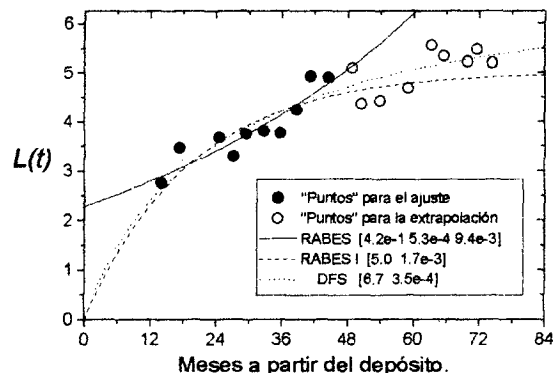


Fig. 2. Capacidad predictiva de los modelos (Área 1). Entre corchete se indican los parámetros de ajuste, en el mismo orden y unidades que para la Tabla 1.

VI - PREDICCIÓN DE TASA DE DOSIS

Para el cálculo de la tasa de dosis sobre el terreno hay que conocer, además del depósito, el perfil de concentraciones del radionúclido presente en dicho suelo. Aquí es utilizado un método de Monte Carlo^{[6][7]} que usa la aproximación exponencial $\exp(-z/L)$ para el perfil de concentraciones, luego (para un dado depósito) cada valor de L tendrá su correspondiente valor de tasa de dosis. Desde el punto de vista radioecológico, es interesante poder estimar la tasa de dosis que un determinado modelo predice para tiempos futuros (para los que no se conozca L). Para evaluar y confrontar la capacidad predictiva de

RABES y RABES I se utilizaron como valores de referencia los ajustes para $L(t)$ calculados a partir de la Tabla 1, y como valores de "predicción" los valores de $L(t)$ correspondientes a las curvas de la Fig.2. Elegido un $t = 72$ meses (tiempo máximo para el que hay datos experimentales), y a partir de los correspondientes $L(t)$, se calcularon las tasas de dosis de referencia y de predicción, en aire y a 1m. del suelo. La Tabla 2 muestra los resultados obtenidos para el Área 1.

Tabla 2. Tasa de dosis normalizada ($\mu\text{Rad.h}^{-1} / \text{Bqcm}^{-2}$)

AREA 1	RABES	RABES I
referencia ($t = 72$ m)	9.39	9.45
predicción ($t = 72$ m)	8.35	9.71
diferencia relativa	-11 %	+ 3%

VII - CONEXIÓN "RABES I - DF"

a - Modelo Difusivo DF

El modelo DF^{[3][4]} (difusión-fijación) tiene en cuenta el conocido proceso de fijación del ^{137}Cs al suelo^[8]. Se proponen dos estados posibles para el ^{137}Cs que ha penetrado en el suelo: a) un estado "libre", en el cual el ^{137}Cs migra verticalmente en forma fickiana (fase móvil); b) un estado "fijo", en el cual el ^{137}Cs se encuentra fijado en forma irreversible al terreno (fase inmóvil).

Si se considera que al tiempo inicial ($t=0$) todo el ^{137}Cs se halla en estado "libre", y confinado a una capa infinitesimal en la superficie del terreno ($z=0$), las expresiones para las concentraciones "libre" C_L , "fija" C_F y "total" C resultan las siguientes^[4]:

$$C_L(z,t) = \frac{Q_0}{\sqrt{\pi k_D t L_D}} \exp\left[\frac{-z^2}{4L_D^2 k_D t}\right] \exp[-(k_D + \lambda)t]$$

$$C_F(z,t) = k_D \int_0^t C_L(z,t') dt' \exp(-\lambda t) \quad (\text{ec5})$$

$$C(z,t) = C_L(z,t) + C_F(z,t)$$

siendo

$L_D(\text{cm})$ ($L_D \equiv \sqrt{D/k_D}$): longitud de difusión.

$D(\text{cm}^2 \text{d}^{-1})$: coeficiente de difusión para C_L .

$k_D(\text{d}^{-1})$: ritmo de transferencia del ^{137}Cs desde el estado "libre" (C_L) hacia el estado "fijo" (C_F).

Tanto D como k_D , y por lo tanto L_D , dependerán de las características físico-químicas del terreno.

Se puede probar^[4] que la concentración $C(z,t)$ se va aproximando a una exponencial de la forma $\exp(-z/L_D)$ a medida que el tiempo t crece, por lo que el parámetro L_D coincide con el valor de la longitud de relajación para el estado final de equilibrio. Por otro lado, el parámetro k_D es siempre factor del tiempo t (ec4), por lo tanto (y si no se tiene en cuenta el decaimiento) k_D caracteriza el ritmo de cambio del perfil de concentraciones, desde su estado inicial hacia su estado de equilibrio.

b - Conexión "RABES I - DF"

El hecho de buscar una conexión entre los modelos RABES I y DF tiene aquí dos objetivos. Uno de ellos es de carácter cualitativo y está relacionado con poder asociar a los parámetros del RABES I con las propiedades físico-químicas del suelo. El segundo objetivo, de carácter cuantitativo, busca estimar el valor de los parámetros del m. DF, a partir del m. RABES I.

Desde un punto de vista cualitativo, RABES I y DF comparten las siguientes características:

- Las curvas $L(t)$ (Fig.2) poseen aspecto similar.
- Los parámetro L_R (RABES I) y L_D (DF) poseen el mismo significado físico: es, en ambos casos, la longitud de relajación $L(t)$ para el estado final de equilibrio ($t \rightarrow \infty$).
- Los parámetros k_R (RABES I) y k_D (DF) caracterizan el ritmo de cambio del perfil de concentraciones (y por lo tanto de $L(t)$). Expresado de otra manera: dichos parámetros acompañan al tiempo t como factores (ec3 y ec4) (Esta propiedad se utilizará para efectuar la conexión cuantitativa).

A partir de estas características comunes se deduce que aquellas propiedades del suelo que influyen sobre el par $[L_D, k_D]$ influirán, de la misma manera sobre el par $[L_R, k_R]$. A modo de ejemplo analicemos el caso de la illita, un tipo de mica arcillosa. Es sabido^[7] que la illita es la principal responsable del proceso de fijación del radiocesio a la matriz de suelo. Luego es esperable que suelos arcillosos se caractericen por tener valores altos para k_D , y por lo tanto valores altos para k_R .

En la conexión cuantitativa se busca estimar el valor numérico de los parámetros L_D y k_D a partir de los valores de L_R y k_R . Puesto que L_R y L_D poseen idéntico significado, se tendrá que $L_D \equiv L_R$ (la igualdad es aproximada puesto que, al tratarse de modelo distintos, los ajustes en general no coinciden exactamente (Tabla 1)). Si bien k_D y k_R poseen el mismo significado (ambos caracterizan el ritmo de cambio del perfil de ^{137}Cs) ello no significa que el valor numérico de ambos parámetros deba coincidir (Tabla 1), por lo que la estimación de k_D conociendo k_R no se puede realizar en forma directa. Para realizar la conexión se utiliza una curva obtenida previamente en forma numérica, representada en la Fig. 3. Un punto $[L_D^0, (k_D.t)^0]$ de esta curva indica lo siguiente: $L(k_D.t)$ evaluada en $k_D.t = (k_D.t)^0$ toma el valor $F.L_D^0$, siendo F igual a $[1 - \exp(-1)]$.

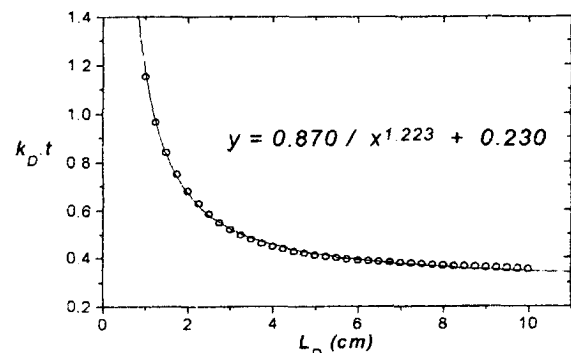


Fig. 3. Curva numérica $k_D.t$ vs. L_D para modelo DF.

Conocido el valor de los parámetros L_R y k_R del m. RABES I (Tabla 1) los pasos de la conexión son los siguientes:

1. Se le asigna a L_D el valor de L_R .
2. Utilizando la curva de la Fig. 3, se obtiene el valor de $(k_D.t)$ correspondiente a L_D (o L_R).
3. A partir de la ec3 se obtiene el tiempo t_F para el cual $L(t) = F.L_R$, esto es: $t_F = (k_R)^{-1}$.
4. Se divide a $(k_D.t)$ calculado en "2." por el tiempo t_F calculado en "3.", obteniéndose la estimación buscada para el parámetro k_D , denotada aquí como k_D^* . La Tabla 3, muestra dicho procedimiento aplicado al Área 1 y al Área 2.

Tabla 3: Valores estimados para k_D .

	Área 1	Área 2
$k_D^* (d^1)$	$5,7 \cdot 10^{-4}$	$7,6 \cdot 10^{-4}$

VIII -RESULTADOS Y CONCLUSIONES

La Fig.1 muestra que la sensibilidad de los modelos es comparable (si bien solo se muestran los resultados para el Area 1, los obtenidos para el Area 2 fueron similares). Por lo tanto, desde este punto de vista, no hay ventaja de un modelo frente a otro

La Fig. 2 muestra que si bien ambos modelos pueden ajustar aceptablemente la curva t vs L a los datos experimentales, RABES I se comporta mejor en lo que respecta a la extrapolación de esta curva. Esto sugiere una ventaja de RABES I sobre RABES en lo referido a la capacidad de predicción para el perfil del ^{137}Cs en suelo.

La Tabla 2 muestra de que manera una mejor capacidad predictiva para L se traslada a una mejor capacidad predictiva para la tasa de dosis sobre el terreno: el error cometido utilizando RABES I es tres veces menor que el cometido utilizando RABES.

Las similitudes, tanto en lo referido a la forma de las curvas $L(t)$ como en lo referido al significado de los parámetros, posibilitan una conexión cualitativa entre RABES I y DF. Esto permite relacionar a los parámetros del modelo descriptivo RABES I con magnitudes de significado físico bien definido como son, por ejemplo, los coeficientes de difusión y de fijación.

La Tabla 3 muestra que la conexión cuantitativa entre los modelos RABES I y DF es solo aproximada. Sin embargo se observa que los valores estimados para k_D son del mismo orden que los calculados por ajuste directo para DF (Tabla1), y además conservan la razón entre Areas ($k_D^{(2)} : k_D^{(1)} = 1,40$; $k_D^{*(2)} : k_D^{*(1)} = 1,33$). Esta conexión puede usarse para estimar, a partir del RABES I, la relación libre / fijo del ^{137}Cs presente en el suelo, lo cual interesa en los estudios de transferencia *suelo-vegetación* para este radionucleido^[9].

Teniendo en cuenta estos resultado, y comparando la simplicidad de los modelo, se concluye que el modelo RABES I es ventajoso frente el modelo RABES, en lo que respecta a la descripción del fenómeno de transporte vertical de ^{137}Cs en suelos no perturbados.

APÉNDICE

Longitud de relajación (L) y técnica de ajuste

La *longitud de relajación* es un parámetro utilizado en forma frecuente^{[10][11]} para caracterizar los perfiles de radiocésio en suelos no perturbados. Su utilidad radica en que con un solo número se puede caracterizar a un perfil de concentraciones. Su definición^[10] parte de la siguiente hipótesis: un perfil de concentraciones medias $\langle C \rangle(t)$ (una por estrato) de ^{137}Cs puede aproximarse por una función de la forma $\exp(-z/L)$ siendo L un parámetro de ajuste que indica el valor de la *longitud de relajación* del perfil, al tiempo t . Esta aproximación puede aplicarse tanto a los valores $\langle C \rangle(t)$ experimentales (obteniéndose los "puntos" experimentales) como a los valores $\langle C \rangle(t)$ teóricos (obteniéndose los puntos o curvas para cada modelo). Para RABES y RABES I, el ajuste se hace en forma directa, puesto que estos modelos poseen una expresión analítica para $L(t)$. Para el modelo DF, se debe construir numéricamente la curva $L(t)$, la cual es ajustada luego a los puntos experimentales para obtener los parámetros L_D y k_D .

REFERENCIAS:

- 1- Antonopoulos-Domis, M., Clouvas, A., Hiladakis, A. & Kadi, S. Health Phys., **69**, 949-953 (1995).
- 2- Velasco, R.H., Belli, M., Sansone, U. & Menegon, S. Health Phys. **64**(1):37-44 (1993).
- 3- Antonopoulos-Domis, M., Clouvas, A., Xanthos, S. & Alifrangis, D.A. Health Phys. **72**(2):243-255 (1997).
- 4- Toso, J.P. & Velasco, R.H. Anales A.F.A, **9**, 396-398 (1997)
- 5- Velasco, R.H., Toso, J.P., Belli, M. & Sansone, U. J. Environ. Radioactivity **37**, 73-83 (1997).
- 6- Rodríguez, M.E.R. & Velasco, R.H. Anales A.F.A, **10**, 310-312 (1998).
- 7- Rodríguez, M.E.R. & Velasco, R.H. Anales A.F.A, **10**, 351-353 (1998).
- 8- Cremers, A., Elsen, A., De Preter, P. & Maes, A. Nature, **335**: 247-249 (1988).
- 9- Krouglov, S.V., Filipas, A.S., Alexakhin, R.M. & Arkhipov, N.P. J. Environ. Radioactivity **34**, 267-286 (1997).
- 10- Schuller, P., Ellies, A. & Kirchner, G. (1997). The Science of the Total Environment, **193**, 197-205 (1997).
- 11- Isaksson, M. & Erlandsson, B. J. of Environmental Radioactivity, **41**, 163-182 (1998).