

# DESPLAZAMIENTO VERTICAL DE RADIONÚCLIDOS EN SUELOS CONTAMINADOS. CALIBRACIÓN DE UN NUEVO MODELO MATEMÁTICO

H. Velasco,

*Instituto de Matemática Aplicada San Luis (IMASL), Departamento de Física, Universidad Nacional de San Luis (UNSL)-CONICET, Ejército de los Andes 950, (5700) San Luis, Argentina.*

M. Belli y U. Sansone

*ENEA-DISP (Ente per le Nuove Tecnologie l'Energia e l'Ambiente), Via V. Brancati 48, 00144 Roma, Italia.*

Concentraciones de  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  y de  $^{90}\text{Sr}$  como función de la profundidad han sido medidas en distintos tipos de suelos. Mediante espectrometría gamma (detectores de germanio hiperpuro) fue medida la concentración de estos radionúclidos provenientes, fundamentalmente, del accidente de la central soviética de Chernobyl ocurrido en abril de 1986. Fueron consideradas muestras de suelo de hasta 40 cm de profundidad sobre las cuáles fueron realizadas los siguientes análisis: textura, contenido de sustancia orgánica, capacidad de intercambio iónico y pH. Un nuevo modelo matemático, denominado RABES (RADionuclides BEhavior in Soil), destinado a estudiar la migración vertical de radionúclidos en suelos indisturbados, es formulado y calibrado con los datos de concentración obtenidos. Este modelo propone que la distribución vertical en el suelo de radionúclidos de migración lenta puede ser aproximada por la siguiente función:  $C(x, t) = Q_{10} \rho^{-1} \alpha(t) \exp(-\alpha(t)x) \exp(-\lambda t)$ , donde  $C$  es la concentración ( $\text{Bq/kg}$ ) a la profundidad  $x$  (cm) en el tiempo  $t$  (años desde la deposición),  $Q_{10}$  es la deposición inicial ( $\text{Bq/cm}^2$ ),  $\rho$  ( $\text{kg/cm}^3$ ) es la densidad media del suelo y  $\lambda$  la constante de decaimiento del radionúclido. El factor alfa es supuesto una función del tiempo de la siguiente manera:  $\alpha(t) = \alpha_0 \exp(-\alpha_1 t) + \alpha_2$ . Las constantes tiene la siguiente interpretación:  $\alpha_0$  es un indicador de la situación en el momento de la deposición,  $\alpha_2$  indica el perfil vertical en la situación de equilibrio y  $\alpha_1$  es una medida de la movilidad vertical de los radionúclidos. Finalmente es calculada la contribución a la dosis externa en aire para un receptor localizado a una distancia de 1m por sobre el suelo contaminado.

## I. INTRODUCCIÓN

En el ámbito del programa de estudios radioecológicos conducido por la ENEA-DISP (Ente per le Nuove Tecnologie l'Energia e l'Ambiente), un nuevo modelo matemático fue desarrollado para estudiar el comportamiento de radionúclidos en suelos indisturbados.

El modelo ha sido calibrado usando concentraciones de radiocésio medidas después del accidente de Chernobyl en suelos recolectados en la región Friuli-Venezia Giulia (Área 1 y 3) y en la localidad de Bellagio (Área 2) al Noreste de Italia donde también fue determinada la concentración de  $^{90}\text{Sr}$ . En el presente trabajo se presentan los resultados alcanzados en tres áreas experimentales, las dos primeras (Área 1 y Área 2) son praderas naturales que se encuentran a unos 400 m sobre el nivel del mar. El Área 3 es un bosque de coníferas con una elevación de unos 600 m sobre el nivel del mar.

La distribución vertical de radionúclidos en suelo indisturbado puede ser aproximada por una función exponencial decreciente (Beck, 1966):

$$C(x) = C_0 \exp(-\alpha x) \quad (1)$$

donde  $C(x)$  ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ) es la concentración de radionúclidos a una profundidad  $x$  (cm)  $C_0$  es la concentración de radionúclidos cuando  $x$  se aproxima a cero y el factor  $\alpha$  ( $\text{cm}^{-1}$ ) es el coeficiente característico de la distribución. El valor del factor  $\alpha$  depende de las propiedades físico-químicas del suelo del tipo de radionúclido, y del tiempo transcurrido desde la deposición, (Coughtrey P. and Thorne M., 1983). Con el objeto de estudiar la dependencia del factor  $\alpha$  con el tiempo transcurrido desde la deposición, un modelo dinámico ha sido desarrollado. Este modelo ha sido calibrado usando concentraciones de  $^{137}\text{Cs}$  medidas a lo largo del perfil de suelo en tres áreas distintas. En una de ellas fue determinada la concentración  $^{90}\text{Sr}$  en función de la profundidad.

Teniendo en cuenta las hipótesis generales planteadas, un modelo equivalente en compartimientos es desarrollado. Los coeficientes intercompartimentales son evaluados en cada caso como una función del tiempo. Finalmente se realiza una evaluación de la contribución a la dosis externa debida al radiocésio como función de la distribución de éste en el suelo.

## II. PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL

Tres áreas experimentales han sido seleccionadas. La primera de ellas, (Área 1), está localizada en una pradera natural a unos 300 m por sobre el nivel del mar. Muestras de suelo fueron recolectadas con periodicidad estacional desde mediados de 1987 hasta fines de 1989. En el Área 2, un prado natural de características similares al anterior, fueron recolectadas muestras de suelo con periodicidad anual desde 1987 hasta 1990 (exceptuando el año 1989). El Área 3 está situada en una zona boscosa, a 600 m sobre el nivel del mar con suelos originados en rocas calcáreas. En las praderas fueron tomadas muestras de suelos hasta una profundidad de 20 ó 25 cm, dividiéndose en capas de 5 cm de espesor. En el bosque el espesor de las muestras no fue uniforme, respetando los espesores característicos de los distintos estratos.

Las muestras de suelo fueron secadas y tamizadas a través de una malla de 2 mm. Posteriormente fueron analizadas por espectrometría gamma usando detectores de germanio hiperpuro. Sobre las muestras de suelo fueron realizados, también, los siguientes análisis: textura, contenido de sustancia orgánica y pH.

El  $^{137}\text{Cs}$  presente en el suelo fue separado en sus dos componentes: la debida al accidente de Chernobyl y la originada en las explosiones nucleares de prueba realizadas en la década del '60. Para realizar esta diferenciación fue utilizado la relación entre las concentraciones de  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{134}\text{Cs}$  provenientes del accidente de la central soviética referidas al momento del accidente.

Las Tablas I, II, y III muestran algunos de los valores de concentración medidos en cada una de las áreas.

## II. EL MODELO DE RABES

Un nuevo modelo matemático ha sido desarrollado para estudiar la migración de radionúclidos en suelos indisturbados, (Velasco *et al.*, 1992). Este modelo asume que la migración ocurre solamente en la dirección vertical y está basado en dos proposiciones fundamentales:

— *Proposición 1:* la distribución vertical de radionúclidos en el suelo puede ser descripta por la siguiente ecuación:

$$C(x,t) = Q\tau\alpha \rho^{-1} \exp(-\alpha(t)x) \exp(-\lambda t) \quad (1)$$

Fecha	Capa de Suelo (cm)	Concentración (x 100) (Bq kg <sup>-1</sup> )		
		<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs (tot)	<sup>137</sup> Cs (Ch.)
Julio 87	0-5	2.1	6.3	6.2
	5-10	0.16	0.85	0.48
	10-15	0.10	0.55	0.30
	15-20	0.088	0.38	0.26
Mayo 88	0-5	0.76	3.3	3.0
	5-10	0.15	0.97	0.59
	10-15	0.061	0.42	0.24
	15-20	0.032	0.21	0.12
Octubre 89	0-5	0.50	3.3	3.0
	5-10	0.19	1.5	1.1
	10-15	0.083	0.72	0.50
	15-20	0.023	0.26	0.14

Tabla I. Área 1. Concentraciones de  $^{134}\text{Cs}$  y  $^{137}\text{Cs}$  total y  $^{137}\text{Cs}$  debido al accidente de Chernobyl. (Se han seleccionado sólo un conjunto de los datos experimentales obtenidos).

Fecha	Capa de Suelo (cm)	Concentración (x 100) (Bq kg <sup>-1</sup> )		
		<sup>90</sup> Sr	<sup>137</sup> Cs (tot)	<sup>137</sup> Cs (Ch.)
1987	0-5	46.7	1067	1061
	5-10	12.8	125	98
	10-15	9.6	54	37
	15-20	7.0	16	9
1989	0-5	38.3	920	896
	5-10	17.4	160	133
	10-15	10.2	48	35
	15-20	7.0	22	16
1990	0-5	35.7	938	905
	5-10	17.3	183	159
	10-15	10.7	78	65
	15-20	7.9	44	36

Tabla II. Área 2. Concentraciones de  $^{90}\text{Sr}$  y  $^{137}\text{Cs}$  total y  $^{137}\text{Cs}$  debido al accidente de Chernobyl.

donde cada símbolo tiene el siguiente significado:  
 $C(\text{Bq kg}^{-1})$ : es la concentración de radionúclidos a una profundidad  $x$  en el tiempo  $t$ .

$Q\tau\alpha(\text{Bq cm}^{-2})$ : es la deposición inicial de radionúclidos sobre el suelo.

$\rho(\text{kg cm}^{-3})$ : es la densidad media del suelo.

$\lambda(\text{año}^{-1})$ : es la constante de decaimiento del radionúclido.

$\alpha(t)(\text{cm}^{-1})$ : es un factor característico de la distribución.

Fecha	Capa de Suelo		Concentración (x 100)		
	(cm)		(Bq kg <sup>-1</sup> )		
			<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs (tot)	<sup>137</sup> Cs (Ch.)
Julio 87	0-1.5	(L)	48	150	140
	1.5-5.5	(F+M)	7.2	26	21
	5.5-10.5	(MS)	0.85	3.4	2.5
	10.5-15.5	(MS)	0.29	1.2	0.86
	15.5-20.5	(MS)	0.099	0.44	0.29
Agosto 88	0-1	(L)	28	120	120
	1-2	(F)	12	50	50
	2-4	(H)	4.2	21	18
	4-10	(MS)	0.60	3.5	2.5
	10-15	(MS)	0.15	1.0	0.64
Octubre 89	0-1	(L)	9.0	56	55
	1-2	(F)	8.7	56	53
	2-5	(H)	1.2	8.7	7.4
	5-10	(MS)	0.24	1.9	1.5
	10-15	(MS)	0.11	0.92	0.67
	15-20	(MS)	0.041	0.36	0.25

Tabla III. Área 3. Concentraciones de <sup>134</sup>Cs y <sup>137</sup>Cs total y <sup>137</sup>Cs debido al accidente de Chernobyl. (Se han seleccionado sólo un conjunto de los datos experimentales obtenidos).

— *Proposición II*: El factor alfa de la distribución es una función del tiempo, de la forma:

$$\alpha(t) = \alpha_0 \exp(-\alpha_1 t) + \alpha_2 \quad (2)$$

$\alpha_0$ ,  $\alpha_1$  y  $\alpha_2$  son constantes.

La velocidad vertical de migración de una superficie isoconcentrada, con concentración  $C_m$ , que se encuentra a una profundidad  $x_m$  es:

$$v_m = \frac{dx_m}{dt} = -\frac{1}{\alpha(t)^2} \frac{d\alpha}{dt} \left( \log \left( \frac{Q\tau_0}{\rho C_m} \right) + \log(\alpha(t)) \right) - \lambda(t-1) - \frac{\lambda}{\alpha(t)} \quad (3)$$

De acuerdo con las consideraciones anteriores es posible realizar un análisis compartimental del problema. Supongamos  $N$  compartimientos correspondiendo cada uno a  $N$  sucesivos horizontes de suelo. El compartimiento  $i$  estará situado entre las profundidades  $x_{i-1}$  y  $x_i$ , respectivamente. La concentración en este compartimiento ( $C_i(t)$ ) la podemos suponer como el promedio de la distribución  $C(x,t)$  en el intervalo  $x_{i-1}$ ,  $x_i$ , esto es:

$$C_i(t) = \frac{1}{\Delta x_i} \int_{x_{i-1}}^{x_i} C(x,t) dx = \frac{1}{\rho \Delta x_i} (R_{i-1}(t) - R_i(t)) \quad (4)$$

donde:  $\Delta x_i = x_i - x_{i-1}$ ,  $x_0 = 0$  y  $R_i$  es la actividad por unidad de área a la profundidad  $x_i$ :

$$R_i(t) = \int_{x_i}^{\infty} \rho C(x,t) dx \quad (5)$$

por lo tanto:

$$\frac{dC_1}{dt} = -\lambda C_1(t) + \frac{x_1 R_1(t)}{\rho \Delta x_1} \frac{d\alpha}{dt} - \frac{x_{i-1} R_{i-1}(t)}{\rho \Delta x_i} \frac{d\alpha}{dt} \quad (6)$$

En el esquema de un modelo general de compartimientos, la concentración en el compartimiento  $i$ -ésimo se rige por la ecuación general:

$$\frac{dC_i}{dt} = -\lambda C_i + k_{i-1,i} C_{i-1} - k_{i,i+1} C_i \quad (7)$$

Comparando las ecuaciones (6) y (7) obtenemos la expresión general para los coeficientes intercompartimentales:

$$K_{i,i+1}(t) = -\frac{x_i R_i(t)}{\rho \Delta x_i C_i(t)} \frac{d\alpha}{dt} \quad (i=1,2,\dots,n) \quad (8)$$

Finalmente podemos efectuar una evaluación de la dosis externa sobre un receptor situado en el aire, causada por radionúclidos gamma-emitentes que se encuentran en el suelo. Si una región tiene concentración uniforme de radionúclidos la dosis que recibe una persona inmersa en esta región se calcula a partir de la relación general (Kocher D. and Sjoreen A., 1985):

$$HEO(t) = CEO \cdot DRFEO \quad (9)$$

donde:  $HEO$  (Gy y<sup>-1</sup>) es la dosis externa,  $CEO$  (Bq cm<sup>-2</sup>) es la concentración de la fuente (con energía  $EO$ ) y  $DRFEO$  (Gy y<sup>-1</sup> por Bq cm<sup>-2</sup>) es el factor de dosis. Cuando la fuente está en el suelo y el receptor en el aire por encima del suelo,  $DRF$  se evalúa asumiendo, generalmente, las siguientes hipótesis:

- El receptor se encuentra a una altura de 1m por sobre el suelo.
- La concentración de la fuente es uniforme por sobre una superficie infinita paralela a la superficie del suelo.

Para una distribución arbitraria de radionúclidos en el suelo, la dosis externa se evalúa mediante la siguiente ecuación:

$$HEO(x_1, x_2, t) = \int_{x_1}^{x_2} C_{EO}(x, t) DR_{FEO}(x) dx \quad (10)$$

donde  $x_1$  y  $x_2$  son los límites de la región fuente. Si, como en nuestro caso, la fuente esta distribuida exponencialmente, la integral (10) se puede evaluar numéricamente (Kocher D. and Sjoreen A., 1985).

### III. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

El modelo fue calibrado con los datos disponibles. Con tal fin fue utilizado el algoritmo Nelder-Meade Simplex (Dennis J. and Woods D., 1987) para calcular los valores más adecuados de los parámetros  $\alpha_0$ ,  $\alpha_1$  y  $\alpha_2$ . Los cálculos fueron efectuados usando el programa PC-Matlab. Los valores adoptados por las constantes para cada una de las Áreas, se resume en la Tabla IV.

La suma  $\alpha_0 + \alpha_2$  ( $\text{cm}^{-1}$ ) corresponde al factor del valor  $\alpha$  cuando  $t$  tiende a 0 (instante de la deposición). El valor de esta suma obtenida en el Área 3 (bosque) para  $^{137}\text{Cs}$ , es cercano al doble del valor calculado para las otras áreas (praderas), ésto está de acuerdo con la mayor concentración de radio-núclidos localizada en las capas superficiales en los suelos de bosque. La cantidad  $\alpha_1$  ( $\text{año}^{-1}$ ) es una medida del cambio de la distribución vertical. Los resultados obtenidos para el caso del  $^{137}\text{Cs}$ , muestran que en el caso del Area 3 que este valor es significativamente más bajo que en el Area 1 y 2. Esto debe ser atribuido a la alta concentración de sustancia orgánica que caracteriza los horizontes superficiales de los suelos de bosques. En estos horizontes, el radiocésio es fuertemente ligado a componentes orgánicos del suelo por un largo período de tiempo.

Las Tablas V y VI muestran para las Areas 1 y 3 en forma respectiva, valores de la velocidad de migración correspondiente a una superficie horizon-

	Area 1	Area 2		Area 3
	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$
$\alpha_0$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	0.30	0.16	0.28	0.75
$\alpha_1$ ( $\text{día}^{-1}$ )	9.0E-04	2.1E-04	1.0E-03	6.0E-04
$\alpha_2$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	0.14	0.017	0.22	0.11

Tabla IV. Valor de los coeficientes  $\alpha_0, \alpha_1$  y  $\alpha_2$  obtenidos durante la calibración del modelo para cada una de las Areas. Se indica el radionúclido correspondiente.

tal con una concentración de  $^{137}\text{Cs}$  ( $Bq/kg$ ) igual a deposición inicial de este radionúclido dividido por  $10^3$ . Estos valores de velocidad de migración han sido calculados para distintos tiempos, utilizando la ecuación (3). En estas mismas tablas, se muestran los valores correspondientes a los coeficientes intercompartimentales para las tres primeras capas de suelos. La Tabla VII, muestra los valores correspondientes a los coeficientes intercompartimentales correspondientes al Área 2, confrontando los valores obtenidos para  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{90}\text{Sr}$ .

	1987	1989	1991	
Veloc. de Migrac. ( $\text{cm/año}$ )	1.4	1.2	0.8	
Coeficientes ( $1/\text{año}$ )	$k_{12}$	8E-02	7E-02	6E-02
	$k_{23}$	1.6E-01	1.5E-01	1.3 E-01

Tabla V. Area 1. Velocidad de migración y coeficientes intercompartimentales para  $^{137}\text{Cs}$ .

	1987	1989	1991	
Veloc. de Migrac. ( $\text{cm/año}$ )	0.8	0.9	1	
Coeficientes ( $1/\text{año}$ )	$k_{12}$	2E-02	4E-02	5E-02
	$k_{23}$	4E-02	8E-02	9 E-02

Tabla VI. Area 3. Velocidad de migración y coeficientes intercompartimentales para  $^{137}\text{Cs}$ .

tiempo	$k_{12}$ $\text{año}^{-1}$		$k_{23}$ $\text{año}^{-1}$	
	Cs-137	Sr-90	Cs-137	Sr-90
1987	0.051	0.043	0.102	0.086
1988	0.050	0.044	0.100	0.088
1990	0.038	0.046	0.075	0.092

Tabla VII. Área 2. Coeficientes intercompartimentales para  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{90}\text{Sr}$ .

La Fig. 1(a) muestra la distribución vertical de  $^{137}\text{Cs}$  en el Área 1. La Fig. 1(b) muestra esta misma distribución para el Área 3. Las Figs. 2(a) y 2(b) se refieren al Area 2, y muestran respectivamente

las concentraciones de  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{90}\text{Sr}$  en función de la profundidad. En estas figuras se señalan los puntos experimentales y las curvas teóricas referidas a la primera y última fecha de muestreo.

Finalmente en las Areas 1 y 3 fue evaluada la contribución a la dosis externa en el aire debida a  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{134}\text{Cs}$  depositado en el suelo. La Fig. 3

muestra en forma respectiva para cada una de las áreas, este valor de dosis representado como una función del tiempo transcurrido desde la deposición de los radionúclidos en el suelo. Las barras en esta figura se refieren a los errores asociados con las medidas experimentales de las concentraciones.

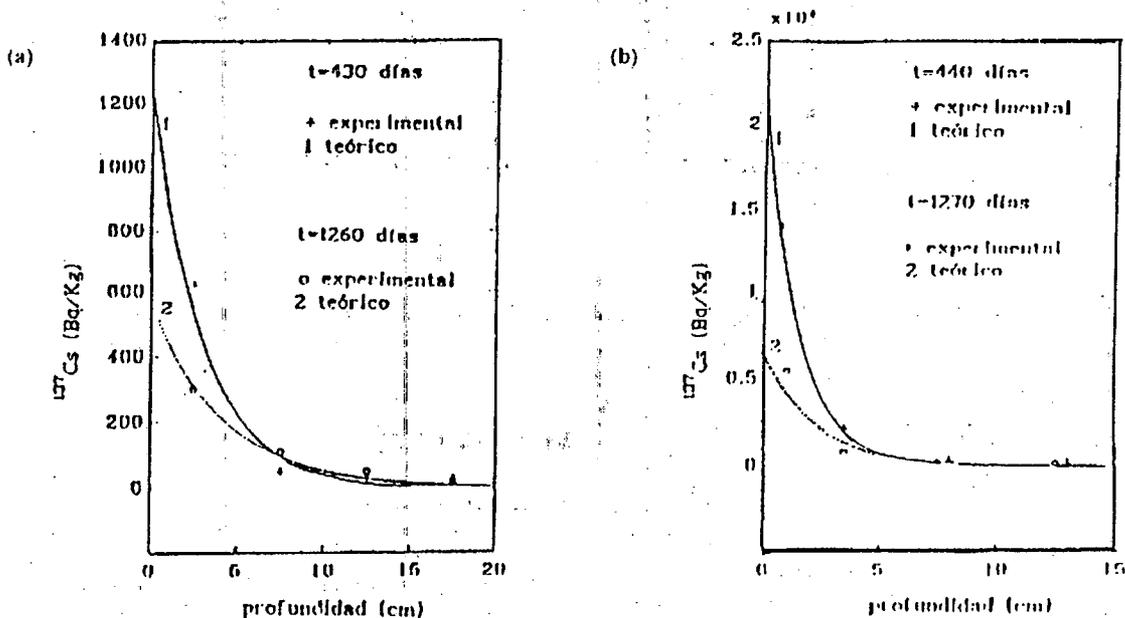


Fig. 1: Concentración de  $^{137}\text{Cs}$  vs. la profundidad: (a) Área 1; (b) Área 3. Se muestran los puntos experimentales y las curvas teóricas para la primera y última fecha de muestreo.

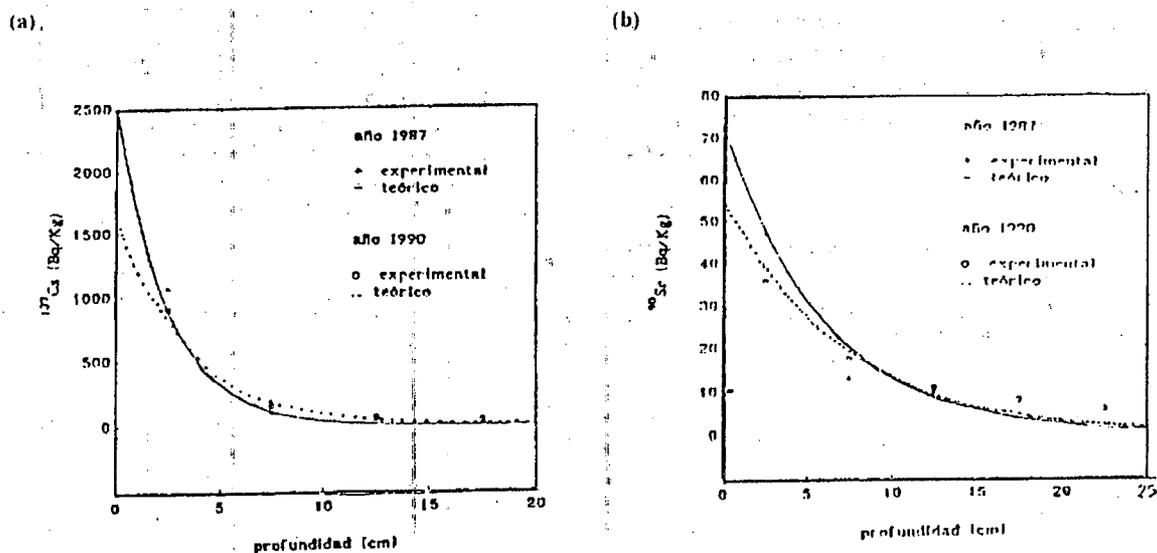


Fig. 2: Área 2. (a) Concentración de  $^{137}\text{Cs}$  vs. profundidad; (b) Concentración de  $^{90}\text{Sr}$  vs. profundidad. Se muestran los puntos experimentales y las curvas teóricas para la primera y última fecha de muestreo.

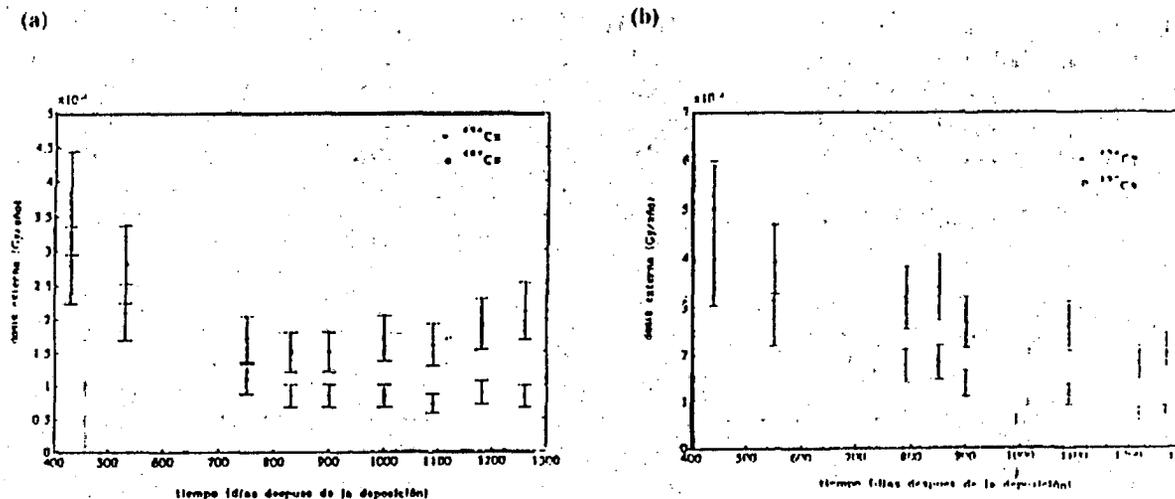


Fig. 3: Dosis externa como función del tiempo desde la deposición, debida al radiocesio, sobre un receptor situado en el aire por encima del suelo. (a) Area 1; (b) Area 3.

#### IV. CONCLUSIONES

En este trabajo ha sido formulado un nuevo modelo matemático para estudiar la migración vertical de radionúclidos en suelos indisturbados.

El modelo ha sido calibrado en tres estaciones experimentales siendo sensible a las distintas propiedades físico-químicas que caracterizan a las mismas. En todos los casos se encuentra un buen acuerdo teórico-experimental.

Un gran número de variables físicas desempeñan un rol significativo en la descripción del comportamiento en el suelo de los radionúclidos considerados en este trabajo, y de sus consecuencias. Como ha sido dicho, el modelo RABES toma en cuenta alguna de estas variables y permite su evaluación como una función del tiempo.

Esto permite un mejor conocimiento de los mecanismos relacionados con la acumulación y transferencia de radioactividad en el ambiente, el objetivo primordial del presente estudio.

#### REFERENCIAS

1. Beck, H. *Environmental gamma radiation from deposited fission products, 1960-1964*. Health Phys. 12, 313-322 (1966).
2. Coughtrey, P. J.; Thorne, M. C. *Radionuclide distribution and transport in terrestrial and aquatic ecosystems*. Vol 1. A. A. Balkema. Rotterdam (1983).
3. Dennis, J. Jr & Woods D. *New Computing Environments: Microcomputers in Large-Scale Computing*. Ed. Woulf A., SIAM, pp. 116-122 (1987).
4. Kocher, D. C.; Sjoreen, A. L. *Dose-rate conversion factors for external exposure to photon emitters in soil*. Health Phys. 48, 193-205 (1985).
5. PC-MATLAB™ for MS-DOS Personal Computers. The Mathworks, Inc. (1990).
6. Velasco, R.; Belli, M.; Sansone U. & Menegon, S. *Radiocaesium behaviour after the Chernobyl accident. Formulation and Calibration of a Mathematical Model*. Health Phys. 1992. En prensa.