Taller de simulació medi–ambiental

# Difusió de contaminants al sòl

Juan Carlos Cañadas* i Jordi Sellarès†

12 de febrer de 2002

Juan Carlos Cañadas
Barcelona (1963)
Doctor en Física
Dept. de Física i Eng. Nuclear (ETSEIT)
Universitat Politècnica de Catalunya

Jordi Sellarès
Barcelona (1969)
Doctor en Física
Dept. de Física i Eng. Nuclear (EUETIT)
Universitat Politècnica de Catalunya

*juan.carlos.canadas@upc.es
†jordi.sellares@upc.es

# Índex

# Presentació

El sòl de la superfície terrestre és el magatzem de nutrients per la vegetació i és un medi sotmès a diferents processos físics i químics que influeixen directament en el desenvolupament dels vegetals. Un dels factors que poden modificar aquest desenvolupament és la irradiació deguda a la contaminació radioactiva o presència de substàncies radioactives sobre la superfície terrestre i al subsòl. Per aquest motiu és interessant analitzar el creixement vegetal condicionat amb la presència de material radioactiu a l'atmosfera que degut a diverses condicions mediambientals, com la pluja, constitueix una font de contaminació per al sòl.

En aquesta unitat estudiarem com passa una substància tòxica (de caràcter radioactiu) des de l'atmosfera a la vegetació a través del sòl. Mitjançant un model senzill i el mètode de resolució d'equacions diferencials d'Euler mirarem de descriure la propagació temporal al sòl de contaminants radioactius.

## Objectius

- Introduir molt breument la radioactivitat i diversos punts que hi estan relacionats: radionúclids, instal.lacions radioactives, ...
- Descriure els processos que tenen lloc quan un contaminant passa de l'aire al sòl. Modelitzar-los adequadament.
- Explicar un mètode senzill per resoldre equacions diferencials numèricament.

# Esquema

# 1 Radioactivitat

## 1.1 Els processos de desintegració

Existeixen un nombre d'elements naturals a la Terra que són radioactius, és a dir, que estan formats per àtoms inestables que espontàniament per pèrdua de protons, neutrons i/o captura d'electrons es desintegren i es converteixen en altres elements, fins arribar a transformar-se en àtoms estables.

Els mecanismes més importants de desintegració dels radionúclids són els següents: uns elements radioactius es transformen en altres per l'emissió de partícules$\alpha$ (nuclis de heli, formats per dos protons i dos neutrons); altres emeten partícules $\beta$ (electrons) sense alterar el seu número màsic i augmentant en una unitat el seu número atòmic. Amb freqüència, el nucli fill format després de la desintegració $\alpha$ i $\beta$ es troba en un estat excitat i allibera aquesta energia d'excitació emetent raigs $\gamma$, radiacions electromagnètiques similars als raigs X però amb menys longitud d'ona, i per això amb més poder penetrant. Encara que existeixen altres tipus d'activitat radioactiva natural, els mecanismes que s'han descrit corresponen a la majoria dels processos espontanis de desintegració.

Aquestes radiacions donen lloc a interacions amb els àtoms i molècules de la matèria, provocant una ionització directa, pel xoc amb el medi de les partícules $\alpha$ i $\beta$ amb elevada energia cinètica, o indirecta per la radiació electromagnètica $\gamma$. La ionització es la causa dels efectes produïts per les radiacions i del seu impacte ambiental.

**Curiositat:** La velocitat d'emissió de les partícules $\alpha$ és d'uns 10000 Km/s i les partícules $\beta$ poden arribar fins a 290000 km/s. La penetració de la radiació $\alpha$ amb energia de 4 MeV a l'aire en condicions normals és d'uns 3 cm i la penetració de la radiació $\beta$ amb les mateixes condicions és de més de 15 m.

## 1.2 Fonts radioactives d'origen natural

Les fonts de radiació són tots aquells materials naturals o artificials (materials o aparells d'origen humà) que emeten o poden emetre les radiacions ionitzants.

A l'escorça terrestre existeixen dues fonts de radiació natural: la interna, que és la produïda pels radionúclids presents al seu interior, i l'externa, que és la produïda per els radionúclids que s'originen per la interacció dels raigs còsmics (veure glossari) amb els núclids de l'atmosfera (per exemple l'hidrogen-3 o triti, carboni-14, ...).

En general els radionúclids interns procedeixen de sèries radioactives (veure glossari) naturals de les quals existeixen quatre fonamentals:

- sèrie del tori, tots els seus elements tenen mases atòmiques múltiples de 4
- sèrie del neptuni, masses atòmiques $4n + 1$
- sèrie del urani-radi, masses atòmiques $4n + 2$
- sèrie del urani-actini, masses atòmiques $4n + 3$

A la vegada també hi ha elements radioactius naturals de procedència interna que no formen sèries radioactives com per exemple el potassi-40.

## 1.3 Fonts radioactives d'origen humà. Protecció dels seus efectes

### 1.3.1 Reactors nuclears i aparells

Els reactors nuclears bàsics es fonamenten en el procés de fissió controlada de l'urani-235. Si els neutrons no es perden, la fissió d'un nucli dóna lloc a la inducció de la fissió de dos o més nuclis. En un reactor nuclear convencional, utilitzat per generar energia, el combustible està format per òxids d'urani que tenen un enriquiment per contenir aproximadament el 3% de $U^{235}$. Aquest enriquiment és necessari ja que el $U^{235}$ constitueix solament el 0.7% del $U^{238}$ que és l'isòtop natural i no fissionable.

**Curiositat:** Un procés de fissió bàsic és: $1\,U^{235} + 1\,n \longrightarrow 1\,Sr^{90} + 1\,Xe^{143} + 3\,n$

Els òxids d'urani estan situats en tubs de zirconi aïllats i formant un conjunt de tubs muntats a l'interior d'una estructura grossa d'acer (Fig. 1). L'aigua s'utilitza tant per refrigerar els dipòsits com per transferir aquesta energia a un generador de vapor. Aquest vapor és usat per al funcionament d'una turbina–generador elèctric.

Altres dispositius construïts artificialment que poden generar radiacions són els aparells de raigs X, els acceleradors de partícules i els explosius nuclears. De la mateixa manera que en els reactors, en aquests dispositius també és necessari interposar blindatges entre el seu entorn i la font radioactiva, amb un greu perill en el cas de les proves nuclears amb explosius. En aquest darrer cas no hi ha controls estrictes de protecció per als efectes nocius de les radiacions ionitzants en el medi ambient.

Per als aparells de raigs X, els acceleradors de partícules i altres dispositius de radiació que comporten un benefici social (per exemple exposicions necessaries per diagnòstics mèdics), existeix un sistema de protecció basat principalment en la limitació de la dosi absorvida (veure glossari) anual per a l'exposició de les persones.

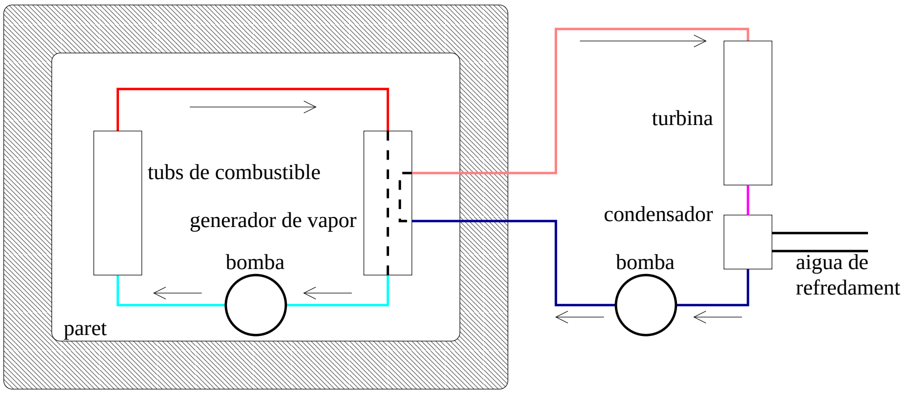


Figura 1: esquema d'una central nuclear

**Curiositat:** La unitat de la dosi absorbida en el SI és el Gray, $Gy$, absorció d'un Joule en una massa d'un quilogram

### 1.3.2 Residus radioactius

La utilització de les fonts de radioactivitat natural i artificial provoca la producció de residus radioactius que constitueixen fonts de radioactivitat controlada i aïllada al sòl. Es poden considerar diferents tipus de residus, els residus radioactius d'alta (HLW), mitjana (ILW) i baixa activitat (LLW). Els residus de alta activitat procedeixen principalment del combustible gastat pels reactors nuclears. Els residus de mitjana activitat procedeixen del procés de fabricació de combustible nuclear, de reprocessaments i d'altres fonts com, per exemple, la medicina. Els residus de baixa activitat es poden considerar formats pels residus esporàdics.

Els residus radioactius d'origen humà de baixa i mitjana activitat són després d'un pretractament de filtració, compactació i un procés de condicionament en bidons metàl·lics, situats en estructures aïllades en superfície o a baixa profunditat. El seu aïllament garanteix que durant un període de segles aquests materials no constitueixen una font de contaminació per al sòl.

Per altra banda, els efectes provocats pels residus radioactius d'alta activitat són molt més difícils de controlar. Durant aquest segle s'han estudiat diverses formes d'aïllament com l'abocament en fosses marines, llançament a l'espai, emmagatzematge a gran profunditat del sòl amb barreres artificials (contenidors resistents) i barreres naturals (entorn geològic de materials, com el granit, d'un gruix de centenars de metres).

## 1.4 Model de desintegració simple de materials radioactius

Abans de començar a tractar els fluxos de radiació d'un sistema complex de plantes i sòl es necessari conèixer el procés de desintegració de la substància radioactiva mitjançant un model simple. La desintegració natural del radionuclids és un procés de primer ordre; el nombre d'àtoms d'un cos radioactiu que és desintegra per unitat de temps és proporcional al nombre total dels àtoms existents al cos.

$$\frac{dC}{dt} = -\lambda C(t)$$

a on $C(t)$ ens representa els àtoms sense desintegrar i $\lambda$ la constant radioactiva. El signe menys ens indica que, amb el temps, disminueix el nombre d'àtoms del material estudiat. La resolució d'aquesta equació ens dóna

$$C(t) = C(0)e^{-\lambda t}$$

Aquesta equació és certa pels radionúclids, es a dir, si el temps creix en progressió aritmètica, el nombre d'àtoms original disminueix en progressió geomètrica i el període de semidesintegració (veure glossari) pot ser des de segons fins a milers d'anys.

**Curiositat:** Per a l'urani el període de semidesintegració és de 4500 milions d'anys, mentre que el del poloni és de 0.16 s.

El problema surgeix quan per algun error humà, accident (per exemple el de Chernobyl) o proves d'explosions nuclears aquests materials (que hem tractat en els anteriors apartats) procedeixen a contaminar l'atmosfera i el sòl d'un entorn i comença així la possible destrucció d'un hàbitat.

# 2 Difusió de contaminants radioactius al sòl

En aquesta secció estudiarem un model compost de fonts per estimar la concentració de material radioactiu en el sòl, subsòl i plantes, mitjançant les seves relacions.

La contaminació radioactiva és la presència de substàncies radioactives en éssers vius o en el medi ambient. Això significa que una contaminació radioactiva sempre comportarà una possibilitat d'irradiació. En el cas de les plantes es distingeix la contaminació externa, que és el dipòsit de substàncies radioactives sobre la superfície de les plantes, de la interna, produïda per l'absorció d'aigua que procedeix del sòl amb fonts radioactives. En el nostre estudi es valorarà com passa una substància tòxica des de l'atmosfera a la vegetació a través del sòl.

En la Figura 2 es mostren esquemàticament els diferents processos que cal modelitzar. El model pot ser separat en subsistemes conectats seqüencialment: la deposició de l'aire, la contaminació del sòl per deposició, la contaminació de la vegetació per absorció, resuspensió i deposició, la transferència de contaminació des de les plantes als animals per ingestió i la infiltració del sòl al subsòl. En el model que tractarem a continuació es considerarà el sistema de aire-plantes-sòl-subsòl sense la intervenció dels animals. Tot i que el procediment és semblant per a qualsevol material, ho aplicarem al cas del $Cs^{137}$, un dels contaminants emesos durant l'accident de Chernobyl.

## 2.1 Càlcul de la concentració

En primer lloc considerarem el terme de concentració radioactiva a l'aire com la font principal del sistema. Aquesta concentració es considera situada a una alçada afectada

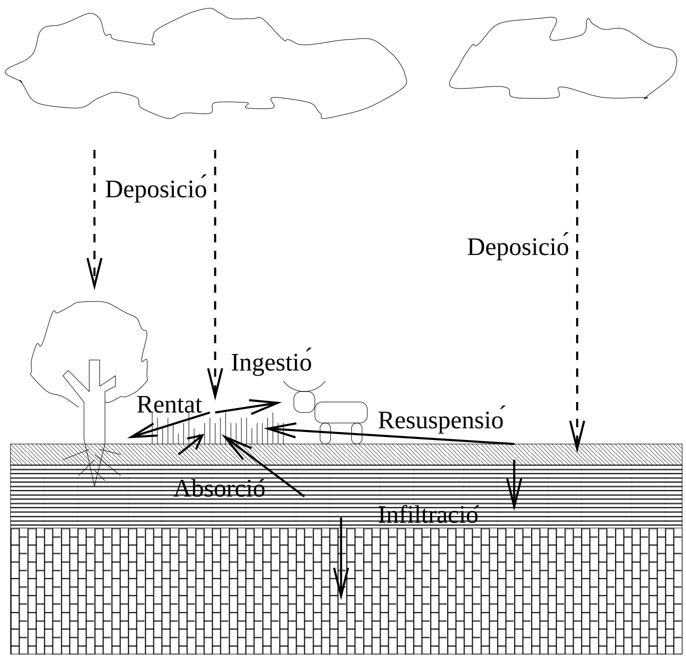


Figura 2: Processos al sòl

per les pluges dels núvols. Per aquest motiu la deposició $\Phi$ sobre la vegetació i el sòl està composta per dos termes: sec i humit . El terme sec $\Phi_S$ és la pluja radioactiva de les partícules i el terme humit $\Phi_H$ representa el rentat de l'aire per les precipitacions:

$$\Phi = \Phi_S + \Phi_H$$

La deposició $\Phi$ es mesura en Bequerels ($Bq$) per unitat de superfície i dia. Un $Bq$ és una desintegració per segon. L'expressió general de la deposició és

$$\Phi = V_g \chi + hIa\chi$$

a on $V_g$ és la velocitat de deposició ($m/d$), I és la precipitació ($mm/d$), $h$ és l'alçada dels núvols i $\alpha$ és la constant de rentat. La concentració de material radioactiu a l'aire $\chi$ es mesura en $Bq/m^3$ (El nombre de desintegracions radioactives que tenen lloc cada segon en un metre cúbic d'aire). La precipitació es mesura en $mm/d$, on un $mm$ és un $l/m2$.

A la Taula 1 es sumaritzen les dades que ens faran falta per poder fer càlculs amb aquest model.

La Figura 3 ens representa les relacions de transferència de contaminants en el sistema de aire–plantes–sòl–subsòl. La deposició constitueix el punt de partida de la dinàmica de aquest sistema, és la font de contaminació d'entrada al sòl (0.75% de la deposició) i plantes (0.25% de la deposició). La concentració de material radioactiu al sòl es pot expressar en $Bq/m^2$ (ens referim a tota l'activitat que té lloc a una superfície de 1 $m^2$ en una capa de sòl determinada). La concentració de material radioactiu a la vegetació s'expressa en $Bq/kg$. Es pot passar d'una unitat a l'altra utilitzant la densitat de vegetació ($kg/m^2$) com a factor de conversió.

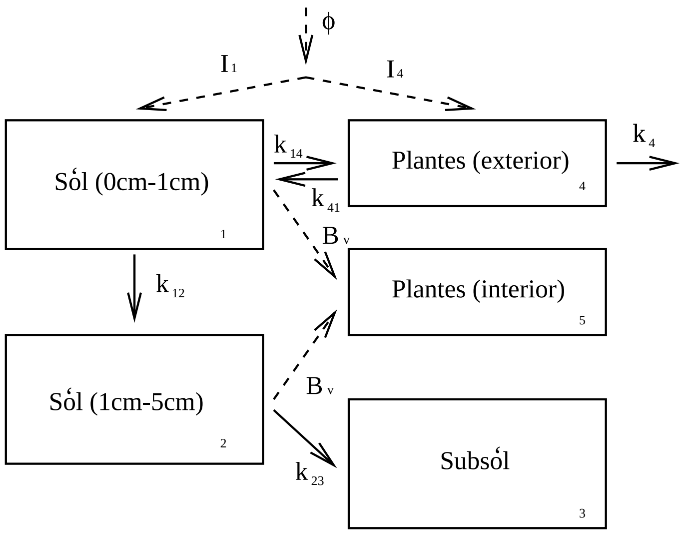


Figura 3: Modelització del sòl

Les línies discontínues representen fonts o relacions de proporcionalitat. Les línies contínues són fluxos proporcionals a la quantitat de sortida. A més hi ha una variació per la semidesintegració del material radioactiu. De aquesta manera el sistema considerat està constituït per cinc llocs o cel·les de concentració: sòl fins 1 $cm$, sòl entre 1 $cm$ i 5 $cm$, subsòl, superfície externa i interior de plantes. En aquest model els coeficients de transferència de contaminants entre aire–plantes–sòl–subsòl estan basats en resultats empírics. En la Taula 2 s'anomenen cadascú d'aquests coeficients amb el valor que correspon al cas del $Cs^{137}$. Tanbé tenim, a la Taula 3, el valor dels paràmetres que no són específics d'aquest radionúclid.

El sistema d'equacions usat per calcular el temps d'evolució de la activitat en el model plantes-sòl és el següent:

$$
\begin{aligned}
\frac{dQ_1}{dt} &= (-\lambda - k_{12} - k_{14})Q_1 + k_{41}Q_4 + I_1 \\
\frac{dQ_2}{dt} &= k_{12}Q_1 + (-\lambda - k_{23})Q_2 \\
\frac{dQ_3}{dt} &= k_{23}Q_2 - \lambda Q_3 \\
\frac{dQ_4}{dt} &= k_{14}Q_1 + (-\lambda - k_{41} - k_4)Q_4 + I_4 \\
Q_5 &= Y_m B_v \left( \frac{Q_1}{P_1} + \frac{Q_2}{P_2} \right)
\end{aligned}
$$

Les unitats dels coeficients d'activitat a les cel·les $Q_1$, $Q_2$, $Q_3$ i $Q_4$ són $Bq/m^2$ i $Q_5$ és $Bq/kg$. $K_{ij}$ representen els coeficients de transferència entre cel·les. Les primeres quatre equacions són equacions diferencials de primer ordre, en les que intervenen totes les possibles relacions existents entre les diferents cel·les del sistema, així com la desintegració en cada cel·la. La cinquena equació és l'expressió de la activitat de

| | | |
|---|---|---|
| Concentració a l'aire | $\chi$ | $Bq\, m^{-3}$ |
| Precipitació | $I$ | $mm\, d^{-1}$ |
| Densitat de vegetació (humida) | $Y_m$ | $Kg\, m^{-2}$ |

Taula 1: Entrades del model

| | | |
|---|---|---|
| Deposició (sòl) | $I_1$ | $0.75\, \Phi$ |
| Deposició (plantes) | $I_4$ | $0.25\, \Phi$ |
| Semidesintegració | $\lambda$ | $6.33 \cdot 10^{-5} d^{-1}$ |
| Infiltració | $k_{12}$ | $6.65 \cdot 10^{-4}\, d^{-1}$ |
| Infiltració | $k_{23}$ | $1.73 \cdot 10^{-4}\, d^{-1}$ |
| Resuspensió | $k_{14}$ | $8.64 \cdot 10^{-5}\, d^{-1}$ |
| Rentat | $k_{41}$ | $3.0 \cdot 10^{-2} + I \cdot 3.4 \cdot 10^{-2}\, d^{-1}$ |
| Creixement | $k_4$ | $Y'_m \cdot Y_m$ |
| Absorció | $B_v$ | $2.0 \cdot 10^{-2}$ |

Taula 2: Paràmetres del model

| | | |
|---|---|---|
| Alçada de barreja | $h$ | $1000\, m$ |
| Constant de rentat | $\alpha$ | $0.6\, mm^{-1}$ |
| Velocitat de deposició | $V_g$ | $210\, md^{-1}$ |
| Densitat sòl (capa 1) | $P_1$ | $13\, Kg\, m^{-2}$ |
| Densitat sòl (capa 2) | $P_2$ | $52\, Kg\, m^{-2}$ |

Taula 3: Constants del model

la concentració al interior de les plantes i $P_1$, $P_2$ representen les densitats a les dues capes superficials de sòl amb valors: $P_1 = 13\,kg/m^2$ (fins 1 $cm$), $P_2 = 52\,kg/m^2$ (1–5 $cm$).

Ara pots fer les activitats 1 i 2.

## 2.2 Resolució del sistema pel mètode d'Euler

El mètode d'euler serveix per resoldre equacions diferencials del tipus

$$\frac{dx}{dt} = f(x,t)$$

No es pot fer servir quan $f(x_0,t) = 0$. L'algoritme d'aquest mètode és:

1. Partim d'uns valors inicials $x_0$ i $t_0$.
2. Dividim el temps en pasos discrets d'una durada $\Delta t$

$$t_i = t_{i-1} + \Delta t$$

3. Per a cada pas, trobem el valor de la variable dependent

$$x_i = x_{i-1} + f(x_{i-1}, t_{i-1} + \frac{\Delta t}{2})\,\Delta t$$

4. Un cop ja tenim $x_i$ podem obtenir un valor millor iterant (això és opcional!)

$$x_i = x_{i-1} + f(\frac{x_i + x_{i-1}}{2}, t_{i-1} + \frac{\Delta t}{2})\,\Delta t$$

5. Es torna a repetir el procés amb el següent pas.

Per aplicar aquest esquema a un sistema d'equacions diferencials, només cal dibuixar una fletxeta de vector a sobre de cada $x$.

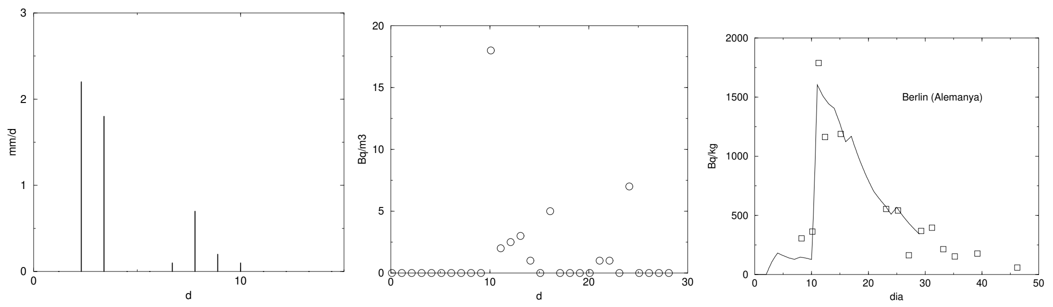


Figura 4: Dades i resultats del model

## 2.3 Exemple representatiu i validesa del model

Com exemple representatiu de la validesa del model i del mètode de resolució d'equacions diferencials per la propagació temporal de contaminants radioactius, podem comparar els resultats obtinguts amb les dades reals corresponents a Berlín després de la contaminació que va sofre l'aire amb l'accident de Chernobyl. En la Figura 4 s'observen els resultats: la primera gràfica ens representa la pluja observada ($mm/d$) en un període de 15 dies; la segona gràfica la concentració de $Cs^{137}$ a l'aire observada en un període de 30 dies; i la tercera gràfica és la que ens mostra els resultats experimentals de concentració radioactiva a la vegetació (punts) amb les prediccions efectuades amb el model (línia).

Per aprendre més coses sobre la contaminació al sòl, fes l'activitat 3.

# Resum

En aquesta unitat hem analitzat un model dinàmic de concentració radioactiva en un sistema aire–sòl–vegetació. Inicialment s'han enumerat els mecanismes més importants de desintegració dels radionúclids i les fonts de radiació: naturals o artificials, i una descripció de la protecció dels seus efectes. S'ha descrit els fonaments de desintegració natural de la substància radioactiva mitjançant un model simple per començar a tractar els fluxos de radiació d'un sistema complex de plantes i sòl.

Com resultat de accidents o proves nuclears atmosfèriques hem considerat una concentració de $Cs^{137}$ a l'aire que dóna lloc a la deposició radioactiva al sòl i a les plantes d'un entorn amb la possible destrucció d'un hàbitat. El model que es planteja en aquesta unitat està separat en subsistemes o cel·les (sòl fins 1 $cm$, sòl entre 1 i 5 $cm$, subsòl, superfície externa i interior de plantes) relacionats de forma directa i indirecta mitjançant: la deposició de l'aire, la contaminació del sòl per deposició, la infiltració del sòl al subsòl i la contaminació de la vegetació per absorció, resuspensió i deposició.

De aquestes relacions s'ha presentat el sistema d'equacions per calcular el temps d'evolució de la activitat radioactiva en el model. S'han tingut en compte totes les possibles relacions existents entre les diferents cel·les del sistema, així com la desintegració en cada cel·la. La resolució de aquest sistema pel mètode d'Euler ens ha permès arribar a descriure l'activitat radioactiva a l'aire i precipitacions com, per exemple, a Berlín.

# Glossari

**raigs còsmics** radiació electromagnètica y partícules carregades que s'originen en diferents llocs del univers. La radiació electromagnètica del Sol és en la seva majoria infraroja, visible i ultra violeta, cau contínuament sobre la Terra i produeix una sèrie de efectes importants, com el clima i la fotosíntesis.

**sèries radioactives** és el conjunt de materials lligats per desintegració natural, es a dir, que s'obtenen uns dels altres per eliminació de partícules $\alpha$ i $\beta$, s'anomenen sèries radioactives.

**dosi absorbida** és el quocient entre el valor mitja de l'energia impartida per la radiació a la matèria en un volum elemental i la massa continguda en aquest volum.

**període de semidesintegració** temps necessari perquè el nombre de nuclis de la mostra es redueixi a la meitat.

# Referències addicionals

- **Josep Lluís Font et alter:** *A model of radionuclide transfer from air into foodstuff.* CIEMAT, Madrid (1994).

  En aquest llibre trobareu el model desenvolupat en aquesta unitat amb una descripció més amplia dels coeficients utilitzats, així com el estudi dels efectes del $Cs^{137}$ i d'un altre material radioactiu ($I^{131}$). Aquest estudi es fa per comparar les prediccions amb els resultats experimentals obtinguts en 13 llocs del món afectats per l'accident de Chernobyl.

## Activitats

1. Segons la figura 3 que ens representa la modelització del sòl, hem plantejat el sistema de equacions diferencials a tractar, troba una manera de modificar aquest esquema i en conseqüencia el sistema de equacions si es consideren tambè els efectes deguts a la pastura d'animals, com per exemple vaques.

2. Observant les 4 equacions diferencials tractades, planteja com ha de ser l'expressió general de la velocitat de transferència de activitat radioactiva $dQ_i/dt$ de un compartiment o cel·la $i$.

3. Busca informació sobre alguna contaminació del sòl que fos considerada important (excepte Chernobyl). Comenta els estudis i resultats als que s'han arribat. No cal que el contaminant sigui radioactiu.

4. Realitza les activitats descrites al guió de pràctiques corresponent a aquesta unitat.

## Exercicis d'autocomprovació

1. Quin dels següents contaminants no formen sèries radioactives naturals:
   (a) Tori
   (b) Urani
   (c) Radi
   (d) Potassi
2. De les següents afirmacions quina és falsa?
   (a) El període de semidesintegració del urani es de 4500 milions d'anys
   (b) El subsòl influeix en la contaminació de les plantes per absorció
   (c) La activitat de la concentració al interior de les plantes (Q5) es inversament proporcional a l'absorció
   (d) El rentat de les plantes per pluja és un flux de sortida de la contaminació exterior de les plantes al sòl
3. La unitat de la deposició és:
   (a) $Bq\, m^{-2}\, d^{-1}$
   (b) $Bq\, m\, d^{-1}$
   (c) $Bq\, m^2\, d$
   (d) $Bq\, m^2$

## Solucions dels exercicis d'autocomprovació

1. (d) 2. (c) 3. (a)