

DISTRIBUCIÓN DE CS-137 Y K-40 EN ÁRBOLES DE FRUTAS TROPICALES

Marcos Rizzotto^a, Hugo Velasco^a, Roberto Meigikos dos Anjos^b, Diego L. Valladares^a, Newton Sanches^b

^aGEA - Instituto de Matemática Aplicada San Luis (IMASL). Universidad Nacional de San Luis,
Consejo Nacional de Investigaciones Científicas y Técnicas.

Ej. de los Andes 950. D5700HHW San Luis, Argentina. E-mail: rizzotto@unsl.edu.ar

^bLaboratório de Radioecologia.(LARA). Instituto de Física. Universidade Federal Fluminense.
Av. Gal. Milton Tavares de Souza SN, Niterói, RJ, 24210-346, Brasil

Palabras clave: plantas frutales leñosas tropicales, tasa de acumulación de Cs-137 y K-40, razón de discriminación K/Cs, circulación de nutrientes modelos de transporte.

Resumen. Varios estudios en los ciclos biogeoquímicos de cesio se han desarrollado en el hemisferio norte en los ecosistemas forestales y agrícolas de clima temperado, principalmente después de las pruebas con armas nucleares y del accidente de Chernobyl en 1986. En el hemisferio sur se han realizado estudios con plantas tropicales y subtropicales, provenientes de regiones donde ocurrió el accidente radiológico de Goiânia (Brasil) en 1987. Resultados experimentales en plantas leñosas de frutas tropicales han demostrado que el cesio tiene una alta movilidad dentro de una planta, exhibiendo los más altos valores de concentración de actividad en sus partes en desarrollo: frutas, hojas, ramas y cortezas. Además, se ha observado una correlación significativa entre la actividad de las concentraciones de Cs-137 y K-40, lo que sugiere la posibilidad de utilizar el cesio para predecir el comportamiento de cationes monovalentes inorgánicos (tales como K(+), Na(+), y NH₄(+)) en plantas tropicales. Por lo tanto, existe un creciente interés en la evaluación del flujo de macronutrientes vegetales y contaminantes radioactivos en diferentes ecosistemas, a través del desarrollo de modelos teóricos para predecir sus concentraciones en los órganos o compartimentos superiores de la planta, como así también su influencia en la cadena alimentaria. Así, este trabajo propone la elaboración de un modelo para describir la evolución temporal de las concentraciones de actividad de Cs-137 y K-40 en diferentes compartimentos de la planta, basado en medidas experimentales de tres especies de árboles de frutas tropicales: limón (*Citrus aurantifolia*), naranja (*Citrus sinensis*), y guava (*Psidium guajava*). El modelo plantea un sistema de ecuaciones diferenciales, que es resuelto numéricamente. Las ecuaciones contienen un conjunto de parámetros que consideran la tasa de transferencia entre los distintos compartimentos, los cuales son determinados en forma experimental. Finalmente, y como validación del modelo, se comparan los resultados teóricos con los valores experimentales de las concentraciones de nutrientes y contaminantes en los distintos compartimentos.

1 INTRODUCCIÓN

El radiocesio (^{137}Cs) es un isótopo radiactivo artificial del cesio producido por efectos de armas nucleares, accidentes radiológicos, desperdicios nucleares, etc. El cesio tiende a ser retenido en el suelo mediante fijación y absorción en minerales arcillosos y en materia orgánica, persistiendo en la zona de las raíces de las plantas durante largo tiempo debido a su elevada vida media, cuyo valor es de 30,2 años.

El potasio es uno de los principales nutrientes de los sistemas vivos, siendo el ^{40}K su radioisótopo (tiempo de vida media $1,32 \times 10^9$ años). Existe evidencia experimental que el radiocesio se comporta químicamente en forma similar a otros cationes inorgánicos monovalentes tales como el potasio (R. M. Anjos et al., 2008). Si bien ambos radionucleidos, ^{137}Cs y ^{40}K , pueden usarse como radiotrazadores para estudiar la circulación de potasio dentro de las plantas, la posibilidad de detección del ^{137}Cs es mayor que la del ^{40}K .

Tanto el Cs como el K pueden ser absorbidos fácilmente por las raíces y a través del tronco ser enviados a las distintas partes de la planta, donde se distribuyen con diferentes concentraciones. Estas concentraciones cambian en el tiempo, por ejemplo, la concentración de ^{137}Cs y ^{40}K posee un mayor valor en las partes de la planta en desarrollo, como las hojas frescas, brotes y frutos verdes.

El propósito de este trabajo es desarrollar un modelo que permita describir la evolución de la concentración de actividad del ^{137}Cs y del ^{40}K en distintas partes de la planta, que tenga en cuenta la transferencia de radionucleidos entre las mismas y que sea especialmente aplicable a las plantas tropicales afectadas por el accidente radiológico de Goiânia (Anjos et al, 2002; Facure et al., 2001). Para validar el modelo desarrollado se comparan sus predicciones con medidas experimentales realizadas en el Laboratorio de Radioecología (LARA) del Instituto de Física de la Universidad Federal Fluminense (Brasil).

2 MATERIALES Y MODELO TEÓRICO

2.1 Materiales

Las muestras de las plantas tropicales que se analizan en este trabajo, fueron cultivadas en un sitio afectado por el accidente radiológico de Goiânia (Anjos et al, 2002; Facure et al., 2001). Dentro de los accidentes radiológicos reportados, el accidente de Goiânia de 1987 fue uno de los más graves. Una cápsula conteniendo una fuente de ^{137}Cs con una actividad de 50,9 TBq, fue extraída de un aparato de radioterapia perteneciente a una clínica médica abandonada, para posteriormente ser vendida como chatarra. Fascinados por el brillo azul de la sal de $^{137}\text{CsCl}$, personas no advertidas del peligro inherente a la manipulación de materiales radiológicos, quitaron la protección de la cápsula y distribuyeron entre familiares y amigos el polvo de la sal radioactiva. Como consecuencia cerca de 1000 personas fueron irradiadas, de las cuales muchas tuvieron serios problemas de quemaduras, muriendo cuatro de ellas. El proceso de descontaminación requirió demoler varios edificios y la remoción de la capa superficial del suelo de una extensa zona. El accidente generó un total aproximado de 3500 m^3 de material contaminado (IAEA, 1998; Anjos et al., 2001).

El suelo del lugar de cultivo de las plantas está compuesto de tierra roja con restos de construcción, posee una textura tipo margarcillosa-arenosa. Las principales características del suelo son: la concentración de ^{137}Cs en el suelo se encuentra en el rango 10 a 40 kBq.kg^{-1} , el contenido de potasio en el rango 0,5 a 2,9 %, el valor de pH en el rango 5,8 a 6,3, el contenido de

arena del 70 al 81 %, el contenido de limo está entre el 13 y 20 %, el contenido de arcilla desde 5,8 a 6,3 %, el contenido de materia orgánica desde 1,5 a 1,7 % y la capacidad de intercambio de cationes (CEC) se encuentra en el rango de 5,0 a 5,5 cmol.kg^{-1} de suelo.

Con el propósito de medir la actividades de ^{137}Cs y ^{40}K en las plantas, se usa el método de espectroscopía de rayos gamma standard. Mediante este método se midió la actividad en cuatro especies tropicales: limón (*Citrus aurantifolia*), naranja (*Citrus sinensis*) y guava (*Psidium guajava*). Para cada especie se muestrearon tres réplicas del suelo contaminado con ^{137}Cs y dos del mismo tipo de suelo, pero sin cesio. Las muestras se dividieron en seis partes: raíces, tronco (parte interna y cáscara), ramas, ramitas, hojas y frutos. Para cada parte, se analizaron diez muestras de material de aproximadamente 30 a 50 g de peso seco.

La preparación de las muestras y el análisis de ^{137}Cs y ^{40}K se realizó en el Laboratorio de Radioecología (LARA) del Instituto de Física de la Universidad Federal Fluminense (Brasil). Se midió la radiación gamma en las muestras mediante el uso de un detector NaI(Tl). La actividad de los radionucleidos en las plantas se calculó a partir de los picos de energía (línea de rayos gamma de 661,7 keV para el ^{137}Cs y 1460,8 keV para el ^{40}K) y de la eficiencia del detector.

La calibración del detector para el ^{40}K se realizó usando un material de referencia bien conocido (RGK-I) obtenido de la Agencia Internacional de Energía Atómica (IAEA). Las muestras de calibración de radiocesio se lograron mezclando aserrín no contaminado con la solución líquida de ^{137}Cs preparada por la Comisión Nacional de Energía Nuclear de Brasil (CNEN). Sus resultados se compararon con dos laboratorios de Brasil.

A partir de las medidas realizadas y usando el peso seco de las muestras, las concentraciones de actividad de ^{137}Cs y ^{40}K se expresan en unidades de actividad por unidad de masa [Bq.kg^{-1}]. Las incertidumbres de la actividad específica para el ^{137}Cs se encuentran entre el 5 y el 7 % y alrededor del 10 % para la actividad específica del ^{40}K de todas las muestras de plantas. El límite de detección se estimó en $7,0 \text{ Bq.kg}^{-1}$ para el ^{137}Cs y 75 Bq.kg^{-1} para el ^{40}K .

La técnica detallada del método mediante el cual se prepararon las muestras y del método de análisis pueden obtenerse en las referencias Mosquera et al., 2006 y Carvalho et al., 2006.

2.2 Modelo Teórico

Los modelos matemáticos utilizados para describir la evolución temporal de la concentración de actividad de radionucleidos en plantas, modelan estas concentraciones mediante un sistema dinámico de ecuaciones diferenciales ordinarias acopladas. Cada ecuación diferencial describe el comportamiento temporal de la concentración de actividad en una parte de la planta o compartimento (raíz, tronco, corteza, ramas, frutas y hojas), adicionándose un compartimento para describir la evolución de la concentración en el aire y uno o más compartimentos para describir partes del suelo que desde el punto de vista de la dinámica de la circulación de nutrientes y radionucleidos poseen distintas propiedades (suelo próximo a las raíces, suelo profundo, etc). La fruta y la hoja pueden dividirse a su vez en dos compartimentos, superficie e interior, que describen los diferentes roles que poseen frente a la deposición o acumulación del radionucleido (Mitchell, 2001; Carini, 2007).

Los términos de acoplamiento en las ecuaciones diferenciales del sistema dinámico describen la posible transferencia y translocación de radionucleidos entre compartimentos. Dependiendo del modelo y del compartimento, la ecuación diferencial asociada posee términos que describen la intercepción o deposición de radionucleidos en la superficie de la parte del vegetal que se describe.

En este trabajo se utiliza un modelo de tres compartimentos, en el que los compartimentos se

asocian al tronco, hoja y fruta del árbol. La elección del número de compartimentos y los términos que describen las transferencias se basa en la situación particular que se pretende modelar: la evolución temporal actual de la concentración de ^{137}Cs y ^{40}K durante un único periodo de crecimiento de la fruta, para plantas afectadas por el accidente radiológico de Goiânia (Brasil) en 1987. Esto permite no considerar la posible deposición de los radionucleidos en la superficie del vegetal por intercepción, resuspensión o salpicado dada la baja concentración existente actualmente en el aire y en la superficie del suelo en la zona afectada por el accidente. Se incorpora en el modelo la descripción de crecimiento de la fruta y la hoja del vegetal, utilizando el modelo logístico de crecimiento en ambos casos (Kaplan y Glass, 1995; Yu et al. 1998).

De acuerdo con los datos experimentales que se poseen, la concentración de actividad de radionucleidos en el tronco (A_T) no posee un cambio apreciable en un período de crecimiento ($A_T = \text{cte.}$), esto posibilita describir las razones de cambio de la actividad (A) mediante dos ecuaciones diferenciales de primer orden:

Compartimento hoja:

$$\frac{dA_H}{dt} = I_{TH} A_T - I_{HF} A_H \quad (1)$$

Compartimento fruta:

$$\frac{dA_F}{dt} = I_{TF} A_T + I_{HF} A_H \quad (2)$$

donde λ_{TH} , λ_{TF} y λ_{HF} son las razones de transferencia tronco \mapsto hoja, tronco \mapsto fruta y hoja \mapsto fruta. Las magnitudes A_H , y A_F describen la actividad total del radionucleido en hoja y fruta, respectivamente. Se consideran dos sistemas dinámicos independientes, uno para describir la actividad del ^{137}Cs y otro para describir la actividad del ^{40}K . En las ecuaciones no se ha incluido el término correspondiente al decaimiento natural de los radionucleidos, dado que tanto el ^{137}C como el ^{40}K poseen una elevada vida media con respecto al periodo de crecimiento que se analiza en el trabajo.

La inclusión en el modelo de la transferencia de radionucleidos desde el compartimento hoja a fruta está motivada en existencia de una demanda de nutrientes o productos fotosintetizados, desde la hoja por parte de la fruta, que explica el transporte y relocalización de radionucleidos como el ^{137}Cs (Carini, 2007). Si bien esta demanda posee una dependencia temporal, siendo de mayor valor durante el periodo de desarrollo de la fruta antes de la maduración, el modelo supone un valor de λ_{HF} constante.

Considerando modelos de crecimiento tipo modelo logístico para describir el desarrollo de la hoja y la fruta, es posible desde las ecuaciones (1) y (2) obtener las siguientes ecuaciones diferenciales para las concentraciones de actividad en ambos compartimentos:

$$\frac{dC_H}{dt} = \frac{I_{TH} q_H C_T}{f_H} - [I_{HF} + a_H (1 - f_H)] C_H \quad (3)$$

$$\frac{dC_F}{dt} = \frac{I_{TF} \mathbf{q}_F C_T}{f_F} + I_{HF} \frac{\mathbf{q}_F f_H}{\mathbf{q}_H f_F} C_H - \mathbf{a}_F (1 - f_F) C_F \quad (4)$$

donde: C_T , C_H y C_F describen las concentraciones de radionucleidos en los compartimentos tronco, hoja y fruta respectivamente ($C_T = \text{cte.}$); la constante \mathbf{q}_H es el cociente entre las masas del compartimento tronco y la máxima alcanzada por el compartimento hoja (m_H^{\max}); \mathbf{q}_F es el cociente entre las masas del compartimento tronco y la máxima alcanzada por el compartimento fruta (m_F^{\max}); las funciones f_F y f_H describen el crecimiento de los compartimentos hoja y fruta de acuerdo al modelo logístico:

$$f_{H,F} = \frac{m_{H,F}(t)}{m_{H,F}^{\max}} = \frac{a_{H,F}}{(1 - a_{H,F}) e^{-a_{H,F} t} + a_{H,F}} \quad (5)$$

siendo las constantes $a_H = m_H(0)/m_H^{\max}$ y $a_F = m_F(0)/m_F^{\max}$.

En todos los casos, la integración de las ecuaciones diferenciales (3) y (4) se implementó mediante un algoritmo computacional utilizando la fórmula explícita de Runge-Kutta (4,5). Los valores de los distintos parámetros utilizados en el trabajo son: C_T (^{137}Cs) = 90,0 Bq.kg⁻¹, C_T (^{40}K) = 230,0 Bq.kg⁻¹, $\mathbf{q}_H = 100,0$, $\mathbf{q}_F = 10,0$, $a_H = a_F = 0,001$, $\mathbf{a}_H = \mathbf{a}_F = 0,047 \text{ d}^{-1}$. Los valores de la concentración de actividad de ^{137}Cs y ^{40}K en el compartimento tronco se fijaron de acuerdo a los valores experimentales medidos en el árbol de limón contaminados por Cs (Anjos et al., 2008).

3 RESULTADOS Y DISCUSIÓN

Con el fin de merituar la adecuación de las predicciones del modelo con los datos experimentales y evaluar sus posibilidades de descripción, se integraron numéricamente las ecuaciones (3) y (4) para diferentes valores de los coeficientes de transferencia, manteniendo fijos los demás parámetros según los valores enumerados anteriormente.

En la Fig. 1 se muestra el comportamiento representativo de la evolución temporal de las concentraciones de actividad relativas de ^{137}Cs , en los compartimentos hoja y fruta, que predice el modelo para los coeficientes de transferencia indicados. La evolución de la concentración de ^{40}K es similar al mostrado. Como puede observarse, los valores de concentración de actividad en fruta son menores que los correspondientes en hoja durante todo el periodo de crecimiento, mostrando un máximo en los primeros días de desarrollo. La existencia de este máximo ha sido predicha por otros modelos (Yu et al, 1998), siendo un efecto asociado al crecimiento del vegetal, cuya corroboración por datos experimentales no se encuentra actualmente disponible.

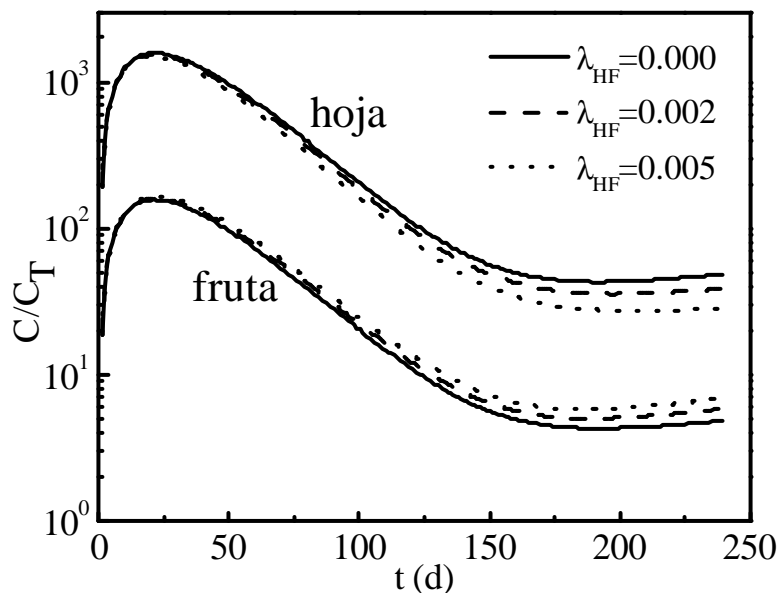


Figura 1: Concentración relativa de ^{137}Cs en hoja y fruta para diferentes valores de la razón de transferencia λ_{HF} . En todos los casos los valores de las otras dos razones de transferencia son: $\lambda_{\text{TF}}=0,002$, $\lambda_{\text{TH}}=0,002$.

La Fig. 1 muestra también el efecto que posee sobre la evolución de las concentraciones de actividad, la variación del valor de la razón de transferencia λ_{HF} . Se observa como el incremento de λ_{HF} tiene el efecto inverso sobre la concentración de actividad en los compartimentos hoja y fruta, de acuerdo a la direccionalidad de la transferencia entre la hoja y la fruta supuesta por el modelo. La variación de este parámetro no posee ningún efecto apreciable en los primeros momentos del desarrollo del vegetal ya que la evolución de la concentración se encuentra gobernada casi exclusivamente por el efecto de crecimiento.

Las Figs. 2 y 3 muestran los resultados obtenidos utilizando $\lambda_{\text{TH}}=0,0003$, $\lambda_{\text{TF}}=0,002$ y $\lambda_{\text{HF}}=0,001$ como los valores de las razones de transferencia. En ambas figuras se incluyen los valores de la concentración de actividad medidos en un árbol de limón contaminado con Cs (Anjos et al., 2008) en dos momentos de evolución de la hoja y fruta, correspondientes a hoja nueva/vieja y a fruta verde/madura. Arbitrariamente se han asignado valores del tiempo a ambos momentos de desarrollo de los vegetales, correspondiendo a un instante previo y uno posterior al comienzo de la maduración de los vegetales. El comienzo de la maduración en ambos casos (hoja y fruta) se identifica con el quiebre de la curva del modelo logístico utilizado para describir el crecimiento de la hoja y fruta, correspondiendo a $t=210$ días de acuerdo a los parámetros elegidos. Se observa en la figura que el modelo es adecuado para describir la evolución de la concentración de actividad, mostrando que las variaciones medidas de esta magnitud y que ambas partes muestran a lo largo de su desarrollo, pueden explicarse por la dinámica interna de la transferencia de los radionucleidos entre las diferentes partes del árbol.

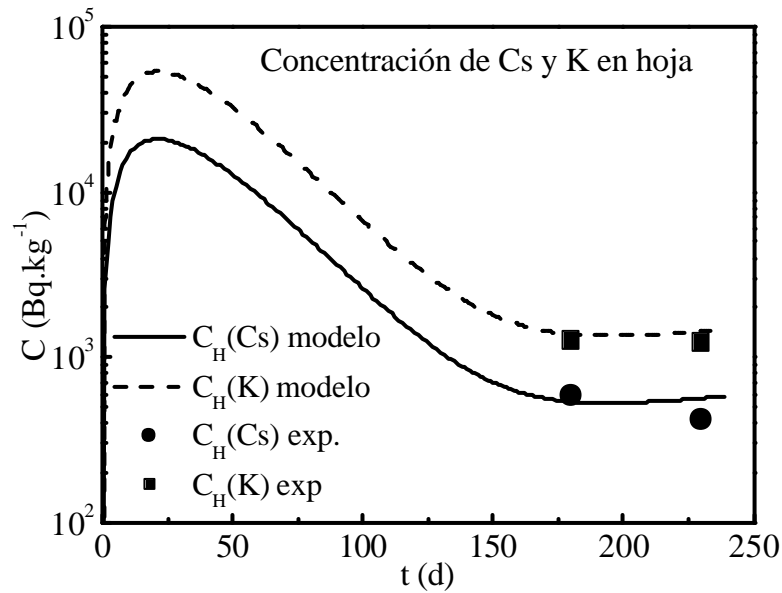


Figura 2: Concentración relativa de ^{137}Cs y ^{40}K en hoja, conjuntamente con valores experimentales de ambas concentraciones (ver texto). Los valores de las razones de transferencia utilizados son $\lambda_{\tau\text{H}}=0,0003$, $\lambda_{\tau\text{F}}=0,002$ y $\lambda_{\text{HF}}=0,001$.

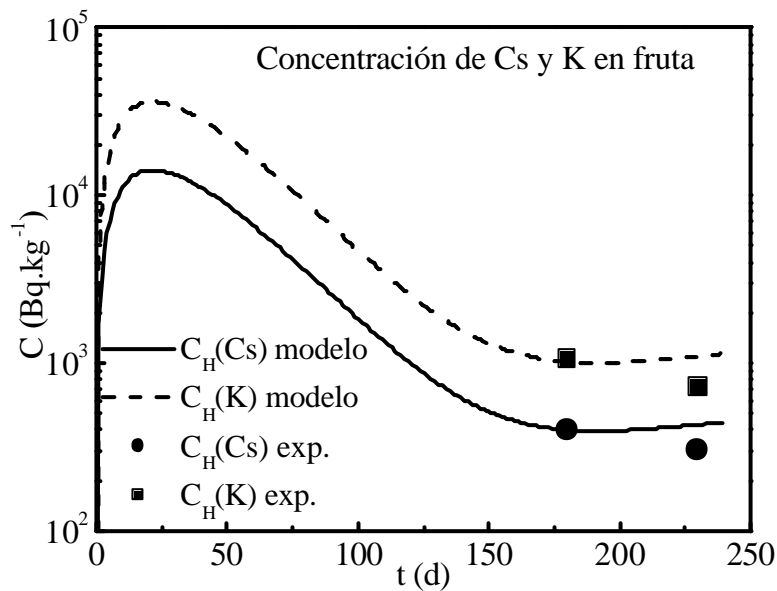


Figura 3: Concentración relativa de ^{137}Cs y ^{40}K en fruta, conjuntamente con valores experimentales de ambas concentraciones (ver texto). Los valores de las razones de transferencia utilizados son $\lambda_{\tau\text{H}}=0,0003$, $\lambda_{\tau\text{F}}=0,002$ y $\lambda_{\text{HF}}=0,001$.

Un resultado experimental importante que permite evaluar el modelo está referido al valor que posee la razón de discriminación potasio-cesio en los diferentes partes de plantas tropicales analizadas (Anjos et al, 2008). Se define esta razón como el cociente de las concentraciones relativas (C/C_T) de K y Cs. Se constata experimentalmente que el valor de la razón de discriminación es $DR=1$, para todas las partes de las plantas en las cuales se efectuaron medidas de la concentración de actividad. El análisis de las ecuaciones (3) y (4) muestra que el modelo predice una razón de discriminación unitaria si se considera que las razones de transferencia para el ^{137}C y el ^{40}K son idénticas. Esta suposición es coherente con el hecho de que ambos radionucleidos comparten los mismos mecanismos de transporte en la planta.

4 CONCLUSIONES

Ha sido desarrollado un modelo para describir la evolución temporal de las concentraciones de actividad de ^{137}Cs y ^{40}K en los compartimentos hoja y futa, que incorpora los efectos del crecimiento de los compartimentos. El modelo está especialmente adaptado para describir la concentración de actividad de radionucleidos actualmente existente en las plantas afectadas por el accidente radiológico de Goiânia en 1987, dado los supuestos sobre los cuales se fundamenta.

Es posible obtener todos los parámetros del modelo a partir de medidas experimentales, salvo las razones de transferencia, las cuales deben estimarse a partir de la comparación de los resultados del modelo con datos experimentales de la concentración de actividad. Para este trabajo, algunos parámetros del modelo han sido estimados a partir de medidas experimentales realizadas en una especie afectada por el accidente citado, el limón (*Citrus aurantifolia*). Esto permitió contrastar las predicciones del modelo con medidas de la concentración de la actividad en este árbol. Se observa que con la correcta elección de los parámetros del modelo, en especial las razones de transferencia, la evolución de la concentración de actividad de ^{137}Cs y ^{40}K en los compartimentos hoja y fruta es acorde con los resultados experimentales en dos etapas de desarrollo de estos compartimentos.

El modelo muestra un importante máximo en la concentración de actividad de los radionucleidos en una etapa temprana de desarrollo de los compartimentos hoja y fruta. La corroboración de la existencia de este máximo hace necesaria la realización de nuevas medidas experimentales, en especial durante la primera etapa de crecimiento de ambas partes del vegetal, tarea que se encuentra en pleno desarrollo al momento de la presentación de este trabajo en otras especies de plantas tropicales además del limón, en naranja (*Citrus sinensis*) y guava (*Psidium guajava*).

Finalmente, como una validación adicional del modelo, se muestra su adecuación con el valor obtenido experimentalmente para la razón de discriminación potasio-cesio que poseen las diferentes partes de las plantas analizadas en este trabajo.

REFERENCIAS

- Anjos, R. M., Facure, A., Lima, E.L.N., Gomes, P.R.S., Santos, M.S., Brage, J.A.P., Okuno, E., Yoshimura, E.M., Umisedo, N.K., Radioactivity teaching: environmental consequences of the radiological accident in Goiania (Brazil). *American Journal of Physics*, 69,377-381 (2001).
- Anjos, R. M., Umisedo, N. K., Facure, A., Yoshimura, E. M., Gomes P. R. S. y Okuno, E., Goiania: 12 Years After the ^{137}Cs Radiological Accident. *Radiation Protection Dosimetry*, 101:201-204, 2002 .

- Anjos, R. M., Mosquera B. Sanches N., Cambuí C. A. y Mercier H. Caesium, potassium and ammonium distributions in different organs of tropical plants. *Environmental and Experimental Botany*, 2008. *In press*.
- Carini F. In IAEA TECDOC. Radioecological Models and Parameters for radiological assessments. November 2007. *In press*.
- Carvalho C., Anjos R. M., Mosquera B., Macario K., Veiga R., Radiocesium contamination behavior and its effect on potassium absorption in tropical or subtropical plants. *Journal of Environmental Radioactivity*, 86:241-250, 2006.
- Facure A., Umisedo N. K., Okuno E., Yoshimura E. M., Gomes P. R. S. y Anjos R. M. Remains of ^{137}Cs contamination in the city of Goiania, Brazil. *Radiation Protection Dosimetry*, 95:165-171, 2001.
- IAEA 1998. *The Radiological Accident in Goiania*. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- Kaplan D. y Glass L., *Understanding Nonlinear Dynamics*. Springer Verlag, 1995.
- Mitchell N. G., Models for radionuclide transfer to fruits and data requirements. *Journal of Environmental Radioactivity*, 52:291-307, 2001.
- Mosquera B., Carvalho C., Veiga R., Mangia L. and Anjos R. M., ^{137}Cs Distribution in Tropical Fruit Trees After Soil Contamination. *Environmental and Experimental Botany*, 55:273-281, 2006.
- Yu K. N., Mao S. Y. y Joung E. C. M., Assessment of the transfer of ^{137}Cs in three types of vegetables consumed in Hong Kong. *Applied Radiation and Isotopes*, 49:1695-1700, 1998.