

Cesium-137 i aska från förbränning av biobränslen. Tillämpning av Strålsäkerhetsmyndighetens regler

Rolf Sjöblom

Cesium-137 i aska från förbränning av biobränslen
Tillämpning av Strålsäkerhetsmyndighetens regler

Cesium-137 in ash from combustion of biofuels
Application of regulations from
the Swedish Radiation Safety Authority

Rolf Sjöblom
Tekedo AB

Projektnummer Q6-614

Abstract

Statens Strålskyddsinstitut (SSI, nu Strålsäkerhetsmyndigheten) har gett ut en föreskrift om aska som är kontaminerad med cesium-137. Den innebär bland annat att askor som innehåller 0,5 – 10 kBq/kg cesium-137 (s k kontaminerad aska) kan användas för geotekniska ändamål bara om man kan visa att ökningen av halten i en närliggande brunn inte överstiger 1 Bq/liter och att ökningen i en närliggande fiskproducerande recipient inte överstiger 0,1 Bq/liter.

I rapporten ges först lite grundläggande information om strålning, varefter SSI:s föreskrifter och underlagsmaterial sammanfattas. Därefter redovisas det internationella kunskapsläget beträffande hur kalium och cesium uppträder i mark och aska. Med stöd av spridningsanalyser som tidigare utförts inom ramen för Värmeforsks Askprogram utförs en enkel modellering av cesium-137.

Rapporten visar att kontaminerad aska i de flesta fall (d v s med vissa undantag och försiktighetsåtgärder) kan användas för vägbyggnad och andra geotekniska konstruktioner. Med hänsyn till osäkerheter och behovet av ökad kunskap föreslås att sådana projekt, i vart fall inledningsvis, utförs med stöd av ett enkelt kontrollprogram.

Sammanfattning

Statens Strålskyddsinstitut (SSI; från 2008-07-01 Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM) har gett ut en föreskrift om aska som är kontaminerad med cesium-137. Den innebär bland annat att askor som innehåller 0,5 – 10 kBq/kg cesium-137 (s k kontaminerad aska) kan användas geotekniskt bara om man kan visa att ökningen av halten i en närliggande brunn inte överstiger 1 Bq/liter och att ökningen i en närliggande fiskproducerande recipient inte överstiger 0,1 Bq/liter.

Rapporten var ursprungligen tänkt att vara en sammanställning avseende hur SSI:s regler för cesium-137 i aska kan tillämpas i praktisk verksamhet. Under arbetets gång visade det sig emellertid att vissa frågor kring bl a samvariationer med kalium samt kloridhaltens betydelse behövde utredas ytterligare, varför de företag som referensgruppen representerar skjutit till extra medel för detta. Rapporten redovisar därför också en utökad informationssökning samt ”egen” utredning och analys.

Cesium-137 förekommer i aska från biobränslen huvudsakligen till följd av kärnreaktorolyckan in Tjernobyl år 1986. Finkornigt stoft innehållande bl a cesium-137 spreds då till hög höjd och deponerades över stora delar av Sverige i form av regn några dagar senare. Under de första dagarna och veckorna penetrerade aktiviteten någon decimeter ner i marken, samt upptogs även av växter och spreds i ekosystemet.

Avsnitt 2 är av handbokskaraktär. Här ges grundläggande information om strålning, samt sammanfattningar av SSI:s föreskrifter och underlagsmaterial.

I Avsnitt 3 redovisas det internationella kunskapsläget beträffande hur kalium och cesium uppträder i mark och aska, samt hur spridning av cesium kan modelleras. Cesium uppträder på liknande sätt som kalium men med den skillnaden att cesium binds betydligt starkare till mineraljord och aska. Kalium samt cesium mark förekommer i fyra olika former: löst i porvattnet, utbytbart, icke utbytbart och som mineraliskt bundet. Mängden som är löst i porvattnet är minst och den som är mineraliskt bunden är störst. Skillnaderna är mycket stora. Övergångarna mellan cesium / kalium löst i porvattnet och utbytbart i marken är snabb. Övriga övergångar är långsamma. Över loppet av några år binds cesium som icke utbytbart, och efter några decennier kan halterna icke utbytbart och mineraliskt cesium vara jämförbara.

Migrationshastigheterna beror av tillgängligheten. Innan cesium-137 i ett nedfall hunnit fastna i jonbytespositionerna kan det följa med vattnet, därav den snabba initiala penetrationen i mark på någon decimeter. Efter det att huvuddelen av ingående cesium-137 övergått till icke utbytbart och mineraliskt är migrationshastigheten i mark bara någon millimeter per år.

Ett intressant konstaterande kan göras beträffande lera. För migrationen under kort tid efter ett nedfall ger lera en mycket bättre retention jämfört med sandjord. Detta hänger sannolikt samman med att lera har betydligt fler positioner för jonbyte. Efter det att

ingående cesium hamnat i icke utbytbara positioner och som mineraliskt cesium är emellertid lerjord och sandjord jämförbara.

Det kunde vara frestande att anta att organisk jord skulle ha en god retention eftersom den kan ta upp näringsämnen i konstgödsel och hålla dem tillgängliga för växter. Mätningar har emellertid visat att cesium-137 kan förflytta sig snabbt i jordar som saknar mineralkomponenter, t ex torvjordar. Detta kan antas hänga samman med att bindningen till de många utbytespositionerna är betydligt svagare jämfört med dem till icke utbytbara positioner och dem i mineraliskt bundet cesium.

Få data föreligger beträffande aska. De uppgifter som påträffats visar att tillgängligheten för cesium-137 är hög i färsk aska, men att bindningen till aska är anmärkningsvärt stark redan efter några år.

Man kan inte utan vidare anta att förhållanden som gäller under jonsvaga förhållanden också kan tillämpas när salthalten i porvattnet är hög. Undersökningar har dock visat att den fasta mineralfasen föredrar cesium framför kalium och natrium även i dessa fall. Även om skillnaderna är mindre i detta fall så räcker de för att cesium skall separera från kloridplymen i en spridningssituation. Efter en sådan separation kan gängse fördelningskoefficienter för jonsvaga förhållanden användas.

I Avsnitt 4 utförs en sådan enkel modellering utgående från metodik som tidigare tagits fram inom ramen för Värmeforsks Askprogram. Resultatet är att under förutsättning av att transporten sker i en jord med inslag av mineraljord så blir halterna cesium-137 i såväl närliggande brunnar som sjöar obetydliga och långt under SSI:s gränsvärden. Analysen täcker dock inte fall med rena organiska jordar, rena kalkjordar (margeljordar), eller vatten som avgår genom ytavrinning.

Resultaten från denna analys utnyttjas i Avsnitt 5 för förslag till ett enkelt kontrollprogram samt praktiska råd. För askor med ett aktivitetsinnehåll understigande 2 kBq/kg bedöms dock inte aktivitetsmätningar behöva utföras av skyddsskäl. De praktiska råden innefattar att avståndet till en brunn med dricksvattenuttag bör uppgå till minst 20 meter och att avståndet till en recipient med kapacitet att generera några kilo matfisk per år bör uppgå till minst 40 meter.

Slutsatserna från Avsnitt 5 används också för förslag till fortsatt forskningsarbete i Avsnitt 6.

Executive Summary

The Swedish Radiation Protection Authority (SSI, in Swedish “Statens Strålskyddsinstitut”; from July 1st, 2008, The Swedish Radiation Safety Authority, SSM, in Swedish “Strålsäkerhetsmyndigheten”) has issued an ordinance on ash contaminated with caesium-137. It implies amongst other things that ash containing 0,5 – 10 kBq/kg caesium-137 (so-called contaminated ash) can be used for geotechnical purposes provided that the content in a near-by well does not exceed 1 Bq/litre and that the increase in a near-by fish producing recipient does not exceed 0,1 Bq/litre.

The initial plan with the presently reported work was to provide a compilation of how the ordinance for caesium-137 can be applied in practical work. It became evident, however, in the course of the work that issues related to the co-variation between potassium and caesium needed further investigation. The companies represented by the members of the reference group therefore provided additional financing to the project. As a result, the present report comprises also a compilation of this extended information search.

Caesium-137 is present in ash as a result of the accident in a nuclear power reactor in Tjernobyl in 1986 during which material having a very small grain size was spread to a high altitude. A few days later, caesium-137 was deposited during rains over large parts of Sweden. This activity penetrated to a depth of one or a few decimetres during the course of the subsequent few days and weeks, after which it was partially taken up by plants and spread in the ecosystem.

Section 2 has the character of a handbook. It provides basic information on radiation, and also about the ordinance and other material from the SSI.

Section 3 comprises compilations of relevant international status of knowledge. This regards how potassium and caesium behave in soil and ash, and also how spreading of caesium can be modelled. Caesium behaves similarly to potassium but with the difference that caesium is bonded much more strongly to mineral soil and ash. Potassium and caesium appears in soil in four different forms: dissolved in the pore water, exchangeable, non-exchangeable and as bonded to minerals. The amount dissolved in the pore water is the smallest and that bonded to minerals is the largest. The differences are large. The transitions between caesium / potassium in the pore water and in the exchangeable positions are rapid. Other transitions are slow. Over the course of a few years, caesium becomes bonded as non-exchangeable and after a few decades, the content of non-exchangeable and mineral caesium may be comparable in magnitude.

The migration rate depends on the availability. Before caesium-137 in fallout becomes absorbed, it is transported with the water, and this is the reason for the initial rapid penetration into soil on the order of a decimetre. When most of the caesium-137 has become non-exchangeable and mineral, the migration rate may be as low as on the order of a millimetre per year.

There is an interesting finding to report about clay. For short term migration, i.e. shortly after a fallout, clay provides a retention that is far superior to that of sand. This is probably related to the fact that clay contains many more positions for ion exchange as compared to sand. After some time when most of the caesium appears in non-exchangeable and mineral positions, clay and sand are comparable.

It might be tempting to assume that organic soils would provide a good retention since they can absorb nutrients from artificial fertilizers and keep them available to plants. Measurements have shown, however, that caesium-137 may migrate rapidly in soils that lack a mineral component, e.g. soils consisting of peat. This can be assumed to relate to the fact that the bonding to the many exchangeable positions is much weaker as compared to those in non-exchangeable and in mineral positions.

The data on ash are scarce. The data found indicate that the availability of caesium-137 is high in fresh ash, but that the bonding is remarkably strong already after a few years.

It cannot be taken for granted without further information that fresh water conditions apply also when the salt content in the pore water is high. Investigations have shown, however, that the solid mineral phase prefers caesium before potassium also in such cases. Although the difference between potassium and caesium is smaller, it is nevertheless sufficient for separation of caesium from chloride in a migration situation. After such a separation has taken place, the distribution coefficients for fresh water conditions may be applied.

In section 4, techniques that have been developed previously in the Swedish Ash Programme are applied to caesium-137 in soil containing some mineral matter. The result is that the content of caesium-137 in near-by wells and lakes become insignificant and far below the limits issued by the SSI. Exceptions to this are pure organic soils, soils made up entirely of lime, and water that drains on the surface.

The results of this analysis are utilized in Section 5 as a basis for suggestions for a simple control programme as well as practical advice. However, it is assessed that no controls for the purpose of radiation protection are warranted for ash having activity content below 2 kBq/kg. The practical advice includes that the distance to a well having water used as drinking water should be at least 20 metres, and that the distance to a recipient having a capacity to generate a few kilograms of edible fish per year should be at least 40 metres.

The conclusions in section 5 are used in Section 6 in which suggestions for further work are presented.

Keywords: caesium, ash, geotechnical, ordinance, radiation,

Innehållsförteckning

1	INLEDNING	1
1.1	BAKGRUND	1
1.2	UPPDRAG	2
1.3	UPPLÄGGNINGEN AV DENNA RAPPORT SAMT HUR DEN KAN ANVÄNDAS.....	4
2	OM STRÅLNING SAMT SSI:S FÖRESKRIFT OM ASKA	6
2.1	OM STRÅLNING	6
2.2	SSI:S FÖRESKRIFT OM ASKA MED TILLHÖRANDE VÄGLEDNING	8
2.3	SSI:S UNDERLAGSMATERIAL	9
3	SAMMANSTÄLLNING AV MATERIAL SAMT UTREDNING	12
3.1	INLEDNING	12
3.2	KALIUM I MARK	15
3.3	CESIUM I MARK	18
3.4	SPRIDNING AV CESIUM FRÅN ASKA	24
3.5	MODELLERING AV SPRIDNING AV CESIUM	26
4	MODELLERING AV TRANSPORTEN FÖR CESIUM.....	31
5	SLUTSATSER	34
5.1	RESULTAT FRÅN MODELLERINGEN	34
5.2	KONTROLLPROGRAM	34
5.3	PRAKTISKA RÅD.....	35
6	FÖRSLAG TILL FORTSATT FORSKNINGARBETE	38
7	LITTERATURREFERENSER	39

Bilagor

A KOMPLETTERANDE INFORMATION AVSEENDE RETENTIONEN FÖR CESIUM I SALTVATTENMILJÖ

1 Inledning

1.1 Bakgrund

Den 1 januari 2006 trädde en ny föreskrift från Statens Strålskyddsinstitut (SSI)¹ i kraft. Den heter *Statens strålskyddsinstituts föreskrifter och allmänna råd om hantering av aska som är kontaminerad med cesium-137* och har beteckningen SSI FS 2005:1.[1-2]

Den ursprungliga orsaken till den nya föreskriften är haveriet av en reaktor i Tjernobyl i Ukraina, vilket ägde rum i april 1986. Haveriet ledde till ett omfattande utsläpp och bl a nedfall av främst cesium-137 i stora delar av Sverige. Cesiumet har trängt ner i de översta centimetrarna av jorden och fastlagts där (gäller mineraljord). Cesium, som har kemiska likheter med kalium, har också tagits upp preferentiellt av växter och djur och förts vidare i näringskedjan.

Nedfallet har därmed gett upphov till stråldos hos människor genom såväl externstrålning som internstrålning efter oralt intag (d v s att man ätit och druckit).

Händelseutvecklingen har följts i Sverige och i många andra länder, och SSI har drivit ett särskilt forskningsprogram om nedfallet i Sverige från Tjernobyl.[3]

Stråldos till människor kan även uppkomma från askor från förbränning av biobränslen genom att cesium-137 i bränslet anrikas i askan. Även här följer cesium kalium och halterna är därmed högst i flygaskorna. Stråldos kan uppkomma såväl genom externstrålning från t ex en väg byggd med aska som genom internstrålning från t ex bär och svamp som plockats på mark till vilken aska återförts.

SSI har under ett antal år studerat de doser som kan uppkomma till följd av hantering av aska och resultaten finns redovisade i ett antal rapporter, bl a [4-13], där [4] utgör en särskild vägledning till SSI:s föreskrift[1-2]. SSI tillhandahåller också kurser med syfte att man lättare skall kunna uppfylla deras föreskrift.

Föreskriften bygger således på en omfattande forskning, informationssökning och utredning av SSI och deras konsulter avseende såväl den generella problematiken kring cesium-137 som den som rör askor.

Det är viktigt att notera vad som SSI funnit behov av att reglera. Inga hot har identifierats mot biologiska populationer, och alla skyddsåtgärder gäller människors hälsa. Effekten av utsläpp från värmeanläggningar till luft och vatten har studerats[8], men SSI har kommit fram till att de är såväl låga som mycket lägre än de doser som den aska som matas ut kan ge upphov till.

¹ Den 1 juli 2008 slogs Statens Strålskyddsinstitut (SSI) och Statens Kärnkraftinspektion (SKI) samman och bildar sedan dess Strålsäkerhetsmyndigheten (The Swedish Radiation Safety Authority). Här och i det följande används dock det gamla namnet eftersom det är SSI som fram tills nu hanterat frågan om cesium-137 i aska från förbränning av biobränslen.

SSI redogör i sina rapporter för den bakomliggande strålskyddsfilosofin.[se t ex 4,8] Denna innebär att gränsvärden sätts och myndighetsingripanden görs utifrån olika förutsättningar beroende på om något betraktas som en verksamhet med strålning eller inte.

För perspektiv på detta kan nämnas att gränsen på 1 Bq/liter (från cesium-137) i brunnsvatten enligt föreskriften om aska [1] kan jämföras med resultaten i en nyligen publicerad SSI-rapport [14] om de 1,2 miljoner innevånare i Sverige som tar vatten från egen brunn, varav ca 700 000 ur bergborrhade brunnar. Rapporten berättar att 8 % av de studerade brunnarna har radonhalter som överskrider Socialstyrelsens riktvärde på 1 000 Bq/liter, samt att 30 % av brunnarna ger upphov till en stråldos som överskrider 0,1 mSv/år. Detta kan jämföras med den gräns på 0,01 mSv/år som ligger till grund för reglerna i SSI:s föreskrift om aska.[1]

Det är också intressant att jämföra med vad som gäller internationellt för hus byggda med betong som tillverkats av kolaska. Här kan doserna till dem som bor i husen uppgå till flera mSv/år, utom i Israel där exponeringen inte får överskrida 0,3 mSv/år.[15-16]²

Föga förvånande ställer sig de allra flesta vid våra värmeverk frågande till utnämningen av dem som innehavare av och ansvariga för nukleär verksamhet (ehuru ej tillståndspliktig).

Frågan ligger dock helt och hållet utanför det som avhandlas i denna rapport.³ I det följande utgås enbart från det som stadgas i SSI:s föreskrift om askor[1] och all utredning och analys i det följande utgår från att dessa regler skall följas med en hög ambitionsnivå.

1.2 Uppdrag

Det är många som uttryckt stor uppskattning över att SSI tagit fram en särskild vägledning samt erbjuder särskilda kurser så att man får hjälp att leva upp till de krav som ställs. Detta innebär bland annat att behovet av utredningar och vägledningar från industrins sida minskar.

SSI har dock i något fall valt att inte föreskriva i detalj hur grundkraven beträffande strålskydd skall uppfyllas. Detta har på industrisidan uppfattats som en klok säkerhetsstrategi eftersom den ger utrymme för industrin att lösa frågor på sätt som är lämpliga och effektiva även ur andra synpunkter.

Ett exempel på detta är dos till person i kritisk grupp från uttag av vatten i brunn. SSI har här valt att inte föreskriva hur en geoteknisk anläggning som innehåller aska, t ex en

² Enligt muntlig uppgift från Hans Möre, SSM, pågår dock internationellt arbete med en gräns på 0,3 eller 1 mSv.

³ En separat PM som kort belyser frågeställningen kommer dock att tillställas Värmeforsk. Denna PM tar också upp vissa nyligen införda ändringar i ICRP:s rekommendationer.

väg skall vara utformad ur strålskyddssynpunkt, utan i stället ställt krav på det vatten som intas. Motsvarande gäller intag av fisk ur sjö som är recipient för lakvatten från aska i en geoteknisk konstruktion.

SSI:s gränssättningsmetodik innebär samtidigt att den som vill utföra en geoteknisk konstruktion med sk kontaminerad aska (se Avsnitt 2.2) behöver kunna visa att man innehåller de värden som SSI angivit.

Det ursprungliga uppdraget syftade främst till redovisa metodik samt ge vägledning till hur man kan utföra sådana uppskattningar med hjälp befintliga verktyg för förorenad mark. I uppdraget ingick att gå igenom Naturvårdsverkets material om detta samt utföra en begränsad litteratursökning. Uppdraget avsåg också utvärdering av metodiken med hänsyn till det aktuella behovet och i första hand skulle generella och förenklade lösningar anges.

Under arbetets gång har framkommit att de fördelningskoefficienter som bestämts för cesium uppvisar mycket stora variationer. Detta gäller såväl tidsberoendet som typ av fast fas. För att inte i onödan övervärdera risker har därför dessa frågor varit föremål för en fördjupad analys av osäkerheter och risker utöver dem som SSI utfört.

De omfattande undersökningar som redovisas i litteraturen har visat att fördelningskoefficienten för cesium kan variera över tre tiopotenser, och att denna beror av ett antal faktorer inklusive salthalt och kaliumhalt.[17-19] Undersökningar har också visat att upptag i fisk är beroende av kaliumhalten[20-23]⁴, och vidare finns det regler för kalium i dricksvatten från Socialstyrelsen, vilka ”automatiskt” begränsar halter av cesium-137 till låga värden. [24] Det har också framkommit att den mycket starka fastläggning med tiden av cesium-137 som förekommer i mineraljordar som innehåller glimrar (alla svenska mineraljordar) inte kan påräknas i rena organiska jordar.[25]

Förslag till utökning av uppdraget med ovanstående har därför lämnats till referensgruppen som (emedan budgeten i Askprogrammet var förbrukad vid det aktuella tillfället) själva ställde upp och finansierade slutförandet enligt den utökade omfattningen. Sådan kompletterande finansiering har erhållits från Econova AB, Mälarenergi AB och Svenska Energiaskor AB. God ”draghjälp” har också erhållits från ett parallelluppdrag från ENA Energi AB.

Arbetet har haft ett utomordentligt gott stöd av en referensgrupp i vilken följande personer ingått:

Malin Asplund	Econova AB
Mats Carlsson	Stora Enso Fors AB
Hans Möre	Statens Strålskyddsinstitut
Jens Nerén	Mälarenergi AB
Claes Ribbing*	Värmeforsk

* adjungerad

⁴ Två av dessa referenser har SSI:s egen konsult Lars Håkansson som författare.

Uppdragets utformning har också influerats av att SSI inte låst sig för de tillvägagångssätt som anges i föreskriften. Det finns en möjlighet till dispens. Den är tänkt att användas för den händelse att ett annorlunda tillvägagångssätt skulle visa sig vara lämpligare i något enskilt fall samt att det kan visas ge fullgod uppfyllelse av de grundläggande strålskyddskraven. SSI har också meddelat i sin vägledning[3] att man ”*planerar att efter några år göra en utvärdering om hur föreskrifterna fungerar i praktiken, om målsättningen uppfylls och vad myndigheter och verksamhetsutövare tycker.*” Dessa aspekter har hållits i åtanke under arbetets gång och det är författarens förhoppning att något av materialet i denna rapport kan komma att bidra i SSI:s ”erfarenhetsåterföring”.

Genom att uppdragets innehåll sålunda ändrats under projektets gång har informationssökning kommit att utföras i steg, där resultaten och frågorna från ett tidigare steg utnyttjats i nästkommande. På detta sätt har den viktiga Referens [22] kommit att inhämtas först i ett sent skede (å andra sidan trycktes denna ”rapport” som egentligen är en bok så sent som under 2007). Viktig information om andra tillämpningar med kontaminerade restprodukter (kolaskor) har också framkommit genom andra uppdrag som utförts parallellt.

1.3 Uppläggnings av denna rapport samt hur den kan användas

Den ändrade inriktningen av uppdraget innebär att rapporten innehåller mer av resultat av informationssökning, utredning och analys än vad som var tänkt från början. Detta står i viss mån i konflikt med syftet att rapporten skall ge en enkel handledning samt även med att redovisa SSI:s regler. De senare presenteras därför i Avsnitt 2 tillsammans med viss förklaring av några strålskyddsbegrepp. I Avsnitt 3 återfinns sammanställning av inhämtat material samt analys av detta. I Avsnitt 4 görs en modellering av transporten av cesium-137, och i Avsnitt 5 ges vägledning.

Materialet i Avsnitt 3 är hämtat från ett antal områden såsom oorganisk kemi, askkemi, geokemi, lantbrukskemi, riskanalys och kärnteknik. Skälet till detta är att de olika perspektiven från dessa områden är nödvändiga för en helhetssyn. Exempelvis är det inom lantbrukskemin som man har den bästa förståelsen för att det kan finnas höga halter av ett ämne i ett jordmaterial med att det trots detta inte behöver vara tillgängligt för växter. Där finns också den bästa förståelsen för betydelsen av kinetiken hos fastläggning och frigörelse vilket synsätt lyckligtvis också tillämpats på cesium (i t ex Referens [26]). Det går inte att samtidigt strukturera efter kunskapsområden och sakfrågor, utan dispositionen av materialet har fått lov att bli något av en kompromiss.

Ambitionsnivån med vägledningen i Avsnitt 5 är att om man följer den så lever man också upp till SSI:s föreskrift. I vissa fall handlar det emellertid om tolkningar och bedömningar. Detta anges då tydligt så att läsaren kan välja handlingsätt, och även ta kontakt med SSI för närmare diskussion om det aktuella fallet.

Vissa frågeställningar har inte kunnat redas ut i detalj inom ramen för uppdraget. Hit hör frågan om separation mellan cesium- och andra alkalimetalljoner i saltvattenmiljö. Ett

exempel kring detta ges i Avsnitt 3.5.3 men övrigt inhämtat material redovisas i Bilaga. Skälet till detta är att materialet varken är systemetiskt eller fullständigt, men att det ändå visar att separation sker i saltvattenmiljö även om den är mera effektiv i sötvattenmiljö.

2 Om strålning samt SSI:s föreskrift om aska

2.1 Om strålning

Radioisotoper (eller radionuklider) är instabila isotoper av grundämnen. Instabiliteten innebär att radioisotoper förr eller senare omvandlas till andra ämnen eller andra tillstånd. Ibland sker dessa omvandlingar i steg, men slutpunkten är alltid en stabil isotop.

Det går inte att prediktera när ett visst enskilt sönderfall sker, men vanligen har man många radioisotoper av samma slag. Sönderfallet är då exponentiellt, d v s antalet sönderfall per tidsenhet är proportionellt mot antalet instabila atomer. Relationen mellan antalet sönderfall per tidsenhet och antalet instabila atomer beskrivs ofta med hjälp av en halveringstid, d v s den tid det tar innan hälften av de instabila atomerna av ett visst slag sönderfallit.

Vid varje omvandling eller sönderfall emitteras så kallade partiklar (se nedan) som också kallas strålning. Partiklarna eller strålningen är i de flesta fall joniserande, d v s varje partikel har så hög energi att den slår sönder en eller flera kemiska bindningar innan den förlorat sin energi och blivit harmlös.

Konsekvensen av sådan nedbrytning är störst i system med stora komplexa molekyler som behöver vara intakta för att bibehålla sin rätta funktion. Levande organismer regleras av sådana stora molekyler och exponering för joniserande strålning kan bli leda till utveckling av cancer många år senare.

Det finns tre olika (huvudsakliga) typer av joniserande strålning och de kallas alfa-, beta- och gammastrålning.

- 1 **Alfastrålning** består av heliumkärnor (med två protoner och två neutroner). Partikeln är såväl starkt laddad som tung och interagerar mycket kraftigt med materia. Strålningen ger således upphov till stora skador hos kemiska ämnen men är inte penetrerande. Alfastrålning stoppas normalt av ett vanligt papper.
- 2 **Betastrålning** består av elektroner. Laddningen är av samma storleksordning som den hos alfapartikeln (hälften och med motsatt tecken), men massan är mycket mindre. Penetrationen är därför ett mellanting mellan den hos alfastrålning och gammastrålning (se nedan) och betastrålning stoppas typiskt av glasväggarna i ett vanligt laboratoriekärl.
- 3 **Gammastrålning** består av oladdade partiklar som inte har någon massa. Förmågan till penetration beror av partikelns energi (detta gäller även för alfa- och betastrålning). Ofta krävs det någon eller några centimeter stål för att reducera strålningen till hälften av den ursprungliga nivån.

Radionuklider förekommer naturligt, men kan också framställas i partikelacceleratorer och kärnreaktorer. I de senare genereras neutroner genom kärnklyvning (nukleär fission)

av t ex uran-235, och dessa neutroner ger i sin tur upphov till nya kärnklyvningar. Detta är principen för en kedjereaktion.

Cesium-137 är en sådan fissionsprodukt som förekommet i allt använt kärnbränsle. Den har en halveringstid som uppgår till 30,23 år. Det första steget innebär ett betasönderfall (d v s utsändning av betastrålning) till en metastabil isomer av barium-137 (Ba-137m). Den ger upphov till gammastrålning och har en halveringstid på 2,55 minuter. Grundtillståndet för barium-137 är stabilt.

Halveringstiden för cesium-137 är tillräckligt lång för att den inte skall hinna sönderfalla till obetydliga nivåer inom storleksordningen år. Halveringstiden är samtidigt tillräckligt kort för att en stor andel av de existerande instabila atomkärnorna skall sönderfalla inom några decennier. I konsekvens med detta är cesium-137 en av de dominerande radionukliderna efter några månader i nedfallet från en atombomb eller en kärnreaktorolycka.

En annan typ av artificiellt framställda radionuklider är aktiveringsprodukter. De uppkommer när en atomkärna fångar upp en neutron och bildar en ny radionuklid. Ett exempel på en sådan reaktion är infångning av en neutron till uran-238, varvid plutonium-239 bildas. Plutonium-239 är fissilt för termiska neutroner i en atomkraftreaktor och sådan fission bidrar med en stor del av effekten i en modern lättvattenreaktor.

Det finns modern utrustning med vars hjälp man kan mäta de olika strålslagen. Detta gäller även energin hos de partiklar som avges. Samtidig mätning av intensitet och energi är dock betydligt enklare för gammastrålning jämfört med övriga strålslag.

Mätningar av radioaktivitet karakteriseras också av att man i många fall kan genomföra mycket noggranna mätningar. Ofta kan man detektera enskilda sönderfall, vilka då räknas. Känsligheten i en mätning beror av geometrin, d v s hur stor andel av alla riktningar från provet som når detektorn.

Enheten för radioaktivitet är Becquerel (Bq), som avser antalet sönderfall per sekund.

Enheten för den s k *effektiva dosen* är Sievert⁵ (Sv). Den effektiva dosen är avsedd att återge biologiska effekter hos strålning. Den kan uttryckas i Joule per kilo, d v s energi per massenhet). Den är besläktad med den *absorberade dosen* som har enheten Gray (Gy), och som återger totalt absorberad strålenergi. Relationerna mellan Sievert och Gray kallas kvalitetsfaktorer (quality factors), vilka är dimensionslösa samt specifika för varje typ av strålning. Det finns även samband mellan Sievert och Gray enheterna vilka beror på vilken del af kroppen som exponeras, e t c.

⁵ Uppkallad efter den svenske medicinske fysikern Rolf Sievert.

För syftet med denna rapport är det tillräckligt att känna till följande begrepp:

- specifik aktivitet för ett ämne, d v s antalet sönderfall per massenhet lika med antalet Becquerel (Bq) per kilogram (eller liter), och
- effektiv dos till en person i enheten Sievert (Sv) per år som denna aktivitet på olika sätt kan tänkas ge upphov till.

Det finns en hel del material av ”handbokstyp” som omvandlar sönderfall per tidsenhet (Becquerel) till effektiv dos (Sievert). De två typer av omvandlingar som är aktuella i denna rapport är externstrålning och oralt intag.

I fallet externstrålning är det en del av strålningen från sönderfallen från ett radioaktivt material som når en människa. Man talar om en dosrat i form av antalet partiklar per ytenhet och tidsenhet som når kroppen (partiklar per kvadratmeter). Här finns det tabeller med t ex färdiga omvandlingsfaktorer från dosrat (partiklar/m²·s) till effektiv dos per tidsenhet (Sv/s).

I fallet internstrålning finns färdiga tabeller med omvandlingsfaktorer mellan oralt intag (det man ätit och druckit) i Becquerel och den effektiva dosen i Sievert.

Ytterligare information om strålning finns på SSM:s (tidigare SSI:s) hemsida, www.ssm.se, samt i SSI:s vägledning[4]. Utförlig information om radiokemi och kärnkemi finns i Referens [27].

2.2 SSI:s föreskrift om aska med tillhörande vägledning

Först skall sägas att det inte finns någon ”vägledning” som kan ersätta den verkliga författningstexten.[1-2] Det är den exakta författningstexten som gäller och var och en som vill uppfylla den måste själv läsa den och ta till sig vad den innehåller.

På liknande sätt kan sägas att ingen ”extern” vägledning kan ersätta den som SSI själva gett ut.[4] Naturligtvis är det den som utfärdat en föreskrift som också bäst vet vad som texten egentligen avser.

I det följande ges ändå ett kort sammandrag av vissa av huvudpunkterna i föreskriften.

Hantering av kontaminerad aska kräver inte något särskilt tillstånd, men däremot att vissa åtgärder vidtas. Den som inte vidtar de åtgärder som anges i föreskriften får (till att börja med) ett föreläggande om att leva upp till föreskriften (vilket i några fall också har utfärdats). Med aska avses aska från trädbränslen, och även blandaskor där någon av dessa ingår. Den som genererar mindre än 30 ton aska per år behöver inte följa de olika reglerna i SSI:s föreskrift.

Föreskriften gäller aska som är kontaminerad (förorenad) med cesium-137. Den som inte kan avgöra om en aska är kontaminerad måste anta att den är det. Det är inte trivialt att avgöra om en aska är kontaminerad eftersom den radioaktiva kalium-40 som finns

naturligt i det kalium som finns i aska avger ungefär lika mycket strålning som cesium-137 gör vid gränsvärdet för kontamination, d v s 0,5 kBq/kg.

För att kunna ”friklassa” en aska som innehåller cesium-137 måste man därför skicka den på s k nuklidspecifik mätning med gammasppektrometer. Alternativt kan man avstå från att mäta askan, men då måste man utgå från att den är kontaminerad.

Aska som innehåller mer än 10 kBq/kg måste deponeras. Uppläggningsen skall ske på deponi för icke farligt avfall (alternativt deponi för farligt avfall). Vid gränsen 10 kBq/kg är det lättare att mäta, och här kan en enklare och icke nuklidspecifik utrustning användas.

Aska med ett innehåll av cesium-137 < 10 kBq/kg får återföras på skogsmark men inte på jordbruksmark (eller lavmark i renbetesområden).

Aska med ett innehåll av cesium-137 < 10 kBq/kg får användas i geotekniska konstruktioner⁶. Om aktivitetsinnehållet i askan ligger över 0,5 kBq/kg får inte vattnet i en närbelägen brunn innehålla mer än 1 Bq/liter. För utsläpp av insamlat lakvatten till ytvattenrecipient gäller att halten cesium-137 i lakvattnet dividerat med utspädningen skall understiga 0,1 Bq/liter.

SSI:s föreskrift innehåller också diverse regler om provtagning, mätning, journalföring och för deponier även omgivningskontroll.

Om det finns särskilda skäl får SSI medge undantag från föreskrifterna. Dosen till den mest utsatta individen bland allmänheten får uppgå till högst 0,01 mSv/år. Antalet berörda personer skall vara litet och spridning av aktivitet till områden med låg kontamination förhindras.

2.3 SSI:s underlagsmaterial

I SSI:s underlagsmaterial[3-13] redovisas ett stort antal sätt på vilka innehållet av cesium-137 i aska kan ge upphov till dos.

Reglerna för aktivitetsinnehåll > 10 kBq/kg grundar sig bl a på att det är en relativt liten andel av den totala askan som ligger över detta värde och det är därför praktiskt och enkelt att utesluta dessa från användning. Uteslutning stämmer också med principen att koncentrera och omhänderta. Dessutom ger de förhöjda doshastigheterna (antal partiklar per ytenhet) för dessa högre nivåer anledning till uppmärksamhet.

För återföring till skogsmark har SSI utfört dosberäkningar efter askåterföringar.[8]

⁶ SSI använder ordet ”utfyllnadsmaterial”. Detta används inte här eftersom namnet kan tolkas som förtäckt deponering. Ordet ”geoteknisk användning” indikerar tydligare att användningen har ett syfte som går långt utöver att bli kvitt ett restmaterial. Att SSI avser samma sak framgår av deras vägledning, sidan 3 där ”utfyllnad” återfinns under ”återvinning” och inte under ”bortskaffande”.

Mätningar efter nedfallet från Tjernobyl har använts för bestämning av förhållandet mellan aktivitet per ytenhet och dos per tidsenhet för person som vistas i skogen. Detta kända förhållande (enligt data från ICRP) har sedan användas för beräkning av dos till människa från externstrålning för olika ytaktiviteter och vistelsetider.

Mätningar efter nedfallet från Tjernobyl har också använts för bestämning av upptagsfaktorer för svamp och bär samt betande djur såsom älg och rådjur. Upptagsfaktorn anger hur hög aktiviteten blir i t ex kött för en viss ytkontamination. Dessa faktorer har sedan använts för beräkning av dos till människa från internstrålning utgående från litteraturdata för upptagsfaktorn för människa samt för godtyckliga antaganden om intag av föda.

SSI har vidare utfört beräkningar över upptag från produkter från trädgårdsodling efter spridning av aska innehållande cesium-137.[5] Analysen visar att odling av potatis ger den högsta dosen, 0,005 mSv/år vid ytaktiviteten 10 kBq/m². SSI räknar här med att upptaget till potatis är 0,003 Bq/kg(torrsvikt) / Bq/m². Potatis innehåller 21 vikts-% torrs substans. Doskonverteringsfaktorn för vuxna är 13*10⁻⁹ Sv/Bq. Årsdosen till person erhålls genom att kombinera upptagsfaktorn, doskonverteringsfaktorn och mängden.

Samtliga (eller åtminstone de flesta) upptag är beräknade utgående från faktorer som gällde för det första året efter Tjernobyl. Nedfall har alltså uppskattats vara ekvivalent med aska som återförs. SSI har dock kommenterat att det finns litteraturdata som pekar på att upptaget minskar med tiden till följd av en allt bättre fastläggning av cesium-137 i mineraljord.

SSI har således förbjudit återföring av kontaminerad (> 0,5 kBq/kg) aska till jordbruksmark på grund av att det kan ge upphov till dos till många personer samt innebära överföring av aktivitet från områden med hög kontamination till sådana med låg.

I Referens [6] har Kemakta på uppdrag av SSI uppskattat urlakningen av radionuklider från en askdeponi i ett beräkningsexempel. I detta antas att avståndet till en brunn är 200 meter samt att lakbarheten är 0,1 % per år av inventariet av cesium-137 för deponi för icke farligt avfall och för deponi för icke farligt avfall, samt 1 % per år för deponi för inert avfall. Vidare antas jämviktsskonstanden för fördelningen av cesium mellan vätska och fast fas vara 0,1 liter per kilo. Askans halt av cesium-137 är 10 kBq/kg. Deponiarea 0,7 ha.

Antagandena om lakbarhet bygger enligt uppgift [28] på vissa empiriska data. I Tabell 5-2 citeras två värden för fördelningskoefficienten för cesium vilka uppgår till 4 400 och 1 800 liter per kilo. I kalkylen för retentionen i den geologiska barriären används däremot ett värde på 0,1 liter per kilo. Detta uppges vara konservativt, och man anger också att ”om det finns mer information angående hur den geologiska barriären ser ut kan en mindre konservativ uppskattning av fastläggningen göras”.

Beräkningarna gav som resultat att uppläggning på deponi för icke farligt avfall liksom uppläggning på deponi för farligt avfall ger upphov till doser kring 0,01 mSv/år eller mindre. Uppläggning på deponi för inert avfall gav upphov till högre dos.

Kalkylen kan eventuellt ha varit ett stöd för SSI vid utformningen av sin föreskrift för aska[1] där det ju anges att aska med > 10 kBq/kg inte får läggas upp på deponi för inert avfall.

I Referens [8] har SSI kalkylerat vad dosen kan bli på en deponi där man hanterar och deponerar aska. Aska med 10 Bq/kg i ett tjockt lager ger ett tillskott till effektivdos på 1 meters höjd över ytan på 0,001 2 mSv/h. Fordon har en skärningsfaktor på mellan 0,3 och 0,7. De angivna värdena kan bara ge en uppskattning av dosen, t ex i planeringssyfte. För att erhålla den precisa dosen krävs mätningar på plats.

För vatten i brunn gäller samma doskonverteringsfaktor som för potatis ovan, d v s $13 \cdot 10^{-9}$ Sv/Bq. I Referens [6] räknar SSI med (se Tabell 5.4) att en vuxen intar oralt (dricker och äter) två liter vatten per dygn, d v s 730 Bq/år för vatten med 1 Bq/liter cesium-137. Detta ger dosen 0,01 mSv/år.

SSI har generellt använt upptagsfaktorer från första året efter olyckan i Tjernobyl. Dessa har även tillämpats för aska. SSI har samtidigt påpekat[5] att för nedfall från Tjernobyl kan denna faktor sjunka en faktor tio på ca fem år (d v s gynnsamt), men att den kan vara tio gånger högre för organiska jordar som inte binder cesium lika hårt som mineral- och lerjordar.

SSI har också mätt halter cesium-137 i aska på deponier och i lakvatten från deponier. Detta presenteras i avsnitt 3.4.

3 Sammanställning av material samt utredning

3.1 Inledning

Kemin kan sägas bestå av två olika delar: termodynamiken och kinetiken. Termodynamiken talar om åt vilket håll reaktioner kan gå och vilka tillstånd som är stabila i princip, medan kinetiken talar om vilka reaktioner som äger rum.

Det finns en teoretisk grund för båda, och i dag kan man räkna även på kinetik. I praktiken är det emellertid besvärligt och bedömningar beträffande kinetik baserar sig i hög grad på erfarenhet. För termodynamiken har emellertid datorberäkningar blivit all populärare. Ofta nöjer man sig med teoretiska beräkningar i kombination med enkla försök. Tiden som försöken pågår styrs av de tider som utvecklingsprojekt varar samt av vilka lakmetoder som blivit populära. Ofta undersöks fördelningen mellan vatten och fast fas under så kort tid som ett dygn.

Ändå saknas det inte information om att ämnen oftast binds allt starkare till fast fas med tiden. Ett fascinerande exempel i detta avseende är Falu Gruvas miljöhistoria.[29] Den första skriftliga uppgiften om koppargruvan är från 1288 och sedan dess har brytning och utvinning inneburit enorm miljöpåverkan. Detta kan – och skall – inte försvaras, och kan inte ursäktas ens med hänvisning till att man i gamla tider inte hade modern kunskap om kemi. Däremot är det mycket förvånande att kunna konstatera hur välmående naturen ändå är i dag trots sin traumatiska miljöhistoria.

En annan tydlig indikation på hur naturen fungerar kan man få genom att studera grundämnessammansättningen i havet respektive i jordskorpan, se Tabell 1. Dessa kan sägas vara ett resultat av ett jätteexperiment – en naturlig analog – som pågått under miljarder år. Lakningen är av den mest aggressiva typen nämligen med ständigt nygenererat destillerat vatten, vilket motsvarar den så kallade Soxhletlakningen på ett laboratorium.

Halterna i Tabell 1 kan omräknas till något som skulle kunna kallas ”geologiska Kd-värden”, vilka återspeglar den långsiktiga fördelningen för ett antal ämnen mellan vatten och jord. Skillnaderna mellan långtids- och korttidsvärden i Tabell 1 visar tydligt tidens betydelse även om de naturligtvis inte skall uppfattas som några absoluta sanningar i detalj.

Mera specifikt kan utläsas att kalium är 24 gånger mer benäget att ingå i jord jämfört med natrium. En liknande skillnad föreligger med cesium som är 19 gånger mer benäget att ingå i jord jämfört med kalium. Skillnaderna antyder att skillnaderna i egenskaper mellan cesium och kalium är nästan lika stora som mellan kalium och natrium. Detta konkretiseras på andra ställen i denna rapport med verkliga långtidsdata i mark.

Även om data i Tabell 1 är mycket generella kan ändå den generella slutsatsen dras att cesium i mark och aska inte kvarhålls sämre än kalium och natrium.

Tabell 1. Halter av ett antal grundämnen i jordskorpan och i havet. Data över förekomster tagna ur Referens [30]. Generella Kd-värden för miljömodellering erhållna från korttidsdata visas också som jämförelse.[31]

Table 1. Presence of several elements in the crust and in the sea. Occurrence data taken from Reference [30]. Generic Kd-values for environmental modelling based on short term data is also shown for comparison.[31]

Grund- ämne	Halt i jord- skorpan, ppm	Halt i havet, ppm	“Geologiska Kd-värden”	Kd-värden i Referens [31]
Antimon	0,2	0,000 24		
Arsenik	1,8	0,003 7	500	50
Bly	14	0,000 03	500 000	50
Cesium	3	0,0003	1 000	
Kadmium	0,15	0,000 11	1 400	20
Kalium	20 900	399	52	
Klor	145	19 400	0,007 5	
Koppar	60	0,000 25	25 000	14
Krom	102	0,0000 3	35 000	100
Kvicksilver	0,085	0,000 03	3 000	100
Natrium	23 600	10 800	2,2	
Nickel	84	0,000 56	150 000	50
Zink	70	0,004 9	15 000	30

Vad kan det då finnas för anledning till att korttidsdata förs fram och används för att beskriva långtidsförlopp? Frågan kan åtminstone delvis besvaras i ett historiskt perspektiv.

Geokemister och strukturkemister har vetat i decennier att mineral i jord ofta uppvisar stora intervall för den kemiska sammansättningen för huvudelementen samt att grundämnen som förekommer i lägre halter inte bildar egna faser utan ingår i fast lösning i de faser som bildas med de grundämnen som ingår i de högsta halterna. Vidare är kinetiken av stor betydelse, och detta gäller för olika tidsskalor. Det är också olika kemiska reaktioner som dominerar under olika tidsintervall.

För några decennier sedan hade den analytiska kemien utvecklats till en sådan precision att markkemister som arbetade med växtodling kunde undersöka närvaro och tillgänglighet för ett antal essentiella grundämnen.⁷ De upptäckte då att växter kunde uppvisa sjukdomar relaterade till brist på något visst ämne samtidigt som det förelåg i höga halter i marken. Skälet till problemen bestod i att det var bundet i en sådan form att det inte var tillgängligt för växterna.

⁷ De allra flesta av våra grundämnen är essentiella för någon levande organism. Andelen kända essentiella ämnen har ökat kraftigt under de senaste decennierna.

Motsvarande forskning har också utförts för de huvudsakliga näringsämnen eftersom även de ofta uppvisar en väsentligt lägre tillgänglighet än vad man skulle kunna förmoda utgående från totalhalt i jorden och korttidsdata för fördelningskoefficienten.

Inför modelleringar och andra bedömningar av tillgänglighet är det nödvändigt att gå igenom sådana data och ett exempel på detta återfinns i Referens [32].

De tidigare upptäckterna som gjorts av geokemister och lantbrukskemister förefaller ha varit bortglömda när man under 1970-talet drog i gång bred front med att ta fram en lösning på kärnavfallsfrågan. Tillgängligheter ”bestämde” i korttidstester och användes i säkerhetsanalyser. Så småningom kom man emellertid underfund med att användbarheten hos dessa korttidsdata var mycket begränsad. Ett standardverk från 1987 [33]summerar slutsatserna på följande sätt (understrykningar av författaren till denna rapport):

“Readers may come across many references to 'leach-testing' of all types of solid radioactive waste destined for geological disposal and it is worth pointing out that there are basically two types of experiment which should not be confused. The first is essentially a standard sorting technique, used to compare the overall quality of waste forms, for example batches of a vitrified waste with slightly different compositions. These are tests only, and give information on the bulk 'leachability' of a product. Various standard techniques are used, the IAEA recommended procedure being commonest. Some dynamic tests use continuously replenished fresh water (e.g. Soxhlet tests) as the leaching agent.

The second type of leach testing is an experimental method which attempts to replicate realistic disposal conditions. As discussed later, the disposal environment will be characterized by virtually zero groundwater flow, so these experiments are generally closed-system, static leaching tests. Data are produced in the form of individual element concentrations in solution as a function of time, temperature, solid to fluid ratio, and so on. This second type of experiment is the only reliable means of providing data for release modelling and, as many authors have pointed out (e.g. Ogard and Bryant, 1982; Savage and Chapman, 1982), data on bulk leach rates from flow-through tests should not be applied to realistic safety assessments. The leaching of various waste forms has been very intensively studied and is now quite well understood.”

Dessa slutsatser förefaller bortglömda i dag när långtidsegenskaper för avfall som inte är kärnavfall skall bestämmas. I hela Europeiska Unionen används korttidstest (24 timmar) för att bedöma om avfall kan accepteras för uppläggning på deponier vilka åtminstone enligt Naturvårdsverket skall fungera på tilltänt sätt under hundratals och tusentals år.[34]

Problemet med att bedöma långtidsegenskaperna på ett riktigt sätt är inte begränsat till experimentella bestämningar av tillgänglighet utan finns också i samband med termodynamisk modellering. En modellering kan utnyttja parametrar med tillräcklig koppling till experiment för att ge rimliga resultat för korttidseffekter. För att ge rimliga

prediktioner beträffande långtidseffekter kan t ex fast löslighet och absorbtion på inre ytor m m behöva modelleras. Detta är i allmänhet inte möjligt med de verktyg som finns i dag. Problemet finns ganska väl beskrivet i Referens [35] där resultat från beräkningar hela tiden jämförs med jordtillgänglighet från mätningar. Dessa är vanligen lägre än för alla realistiska faser som ingått i beräkningarna.

I mineraljordar finns det två typer av mineral som fångar upp sådana övergångs- och tungmetaller som finns i låga halter: glimrar och faser med höga halter järn och mangan. Inga uppgifter har påträffats som pekar på att de senare skulle fånga upp kalium och cesium, varför de inte tas upp i det följande i denna rapport.

Den generella utgångspunkten i denna rapport är således att cesium kvarhålls mycket starkt i mineraljord och troligen också i jordliknande material såsom aska (efter härdning, jfr Avsnitt 3.4). För att kunna användas för planering av verksamhet och för redovisning till myndigheter behöver denna hypotes bekräftas för aktuella situationer. Det är också rimligt att utgå från att denna goda kvarhållning av cesium inte gäller generellt och därför är syftet med genomgången också att identifiera under vilka förhållanden cesium kan vara mobilt.

3.2 Kalium i mark

Kalium i mark är av intresse eftersom kalium och cesium liknar varandra kemiskt och binds i jord och jordliknande material på likartat sätt. Kalium i mark är också av intresse eftersom det är tänkbart att mätning av kalium i vatten kan användas för att bestämma en övre gräns för cesium-137. Sådan mätning av kalium kan enkelt ske på plats. Detta diskuteras vidare i Avsnitt 4.2.

Som framgår av Tabell 1 är medelhalten kalium i jordskorpan 2,1 %. Detta värde innehålls ofta av svenska mineraljordar. Kalium är ett av huvudelementen i kalifältspat som utgör ungefär 15 % av litosfären (mineralen i bergarterna).[36] Om man försiktigt räknar med att det bara är det som finns i jorden i de översta 25 centimetrarna som tas upp av växterna så finns det totalt ca fem kilogram kalium per kvadratmeter. Behovet av kalium i en gröda som helt och hållet bortförs, till exempel hö, är av storleksordningen 15 gram per kvadratmeter.[37]

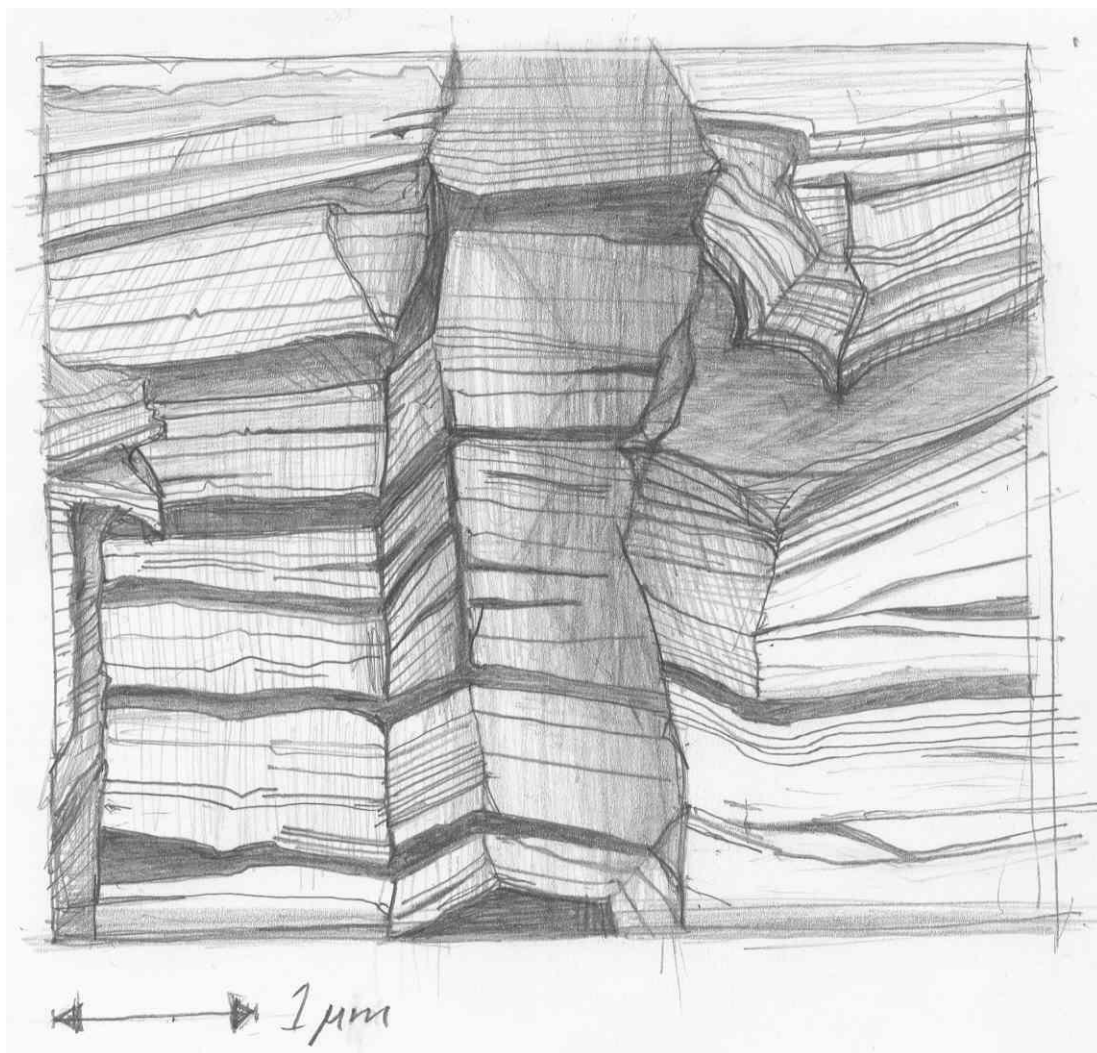
Det kunde därför vara frestande att anta att tillgängligheten till kalium aldrig kan vara något problem för växter. Detta är emellertid inte alls fallet. När våra förfäder hade skördat och utarmat jorden på tillgängligt kalium och andra näringsämnen fick de lov att låta jorden ligga i träda för att näringsbalansen skulle kunna återhämta sig genom vittring, nedbrytning av organiskt material och andra processer.

Vittring av fältspat är emellertid en långsam process. Kalifältspat har ett tredimensionellt nätverk av silikat (tektosilikat) som genomgår inkongruent⁸

⁸ Inkongruent upplösning innebär att mineralet i fråga inte går i lösning i sin helhet. I stället är det en del av ämnet som går i lösning medan resten bildar ett eller flera mineral med annan sammansättning jämfört med det ursprungliga.

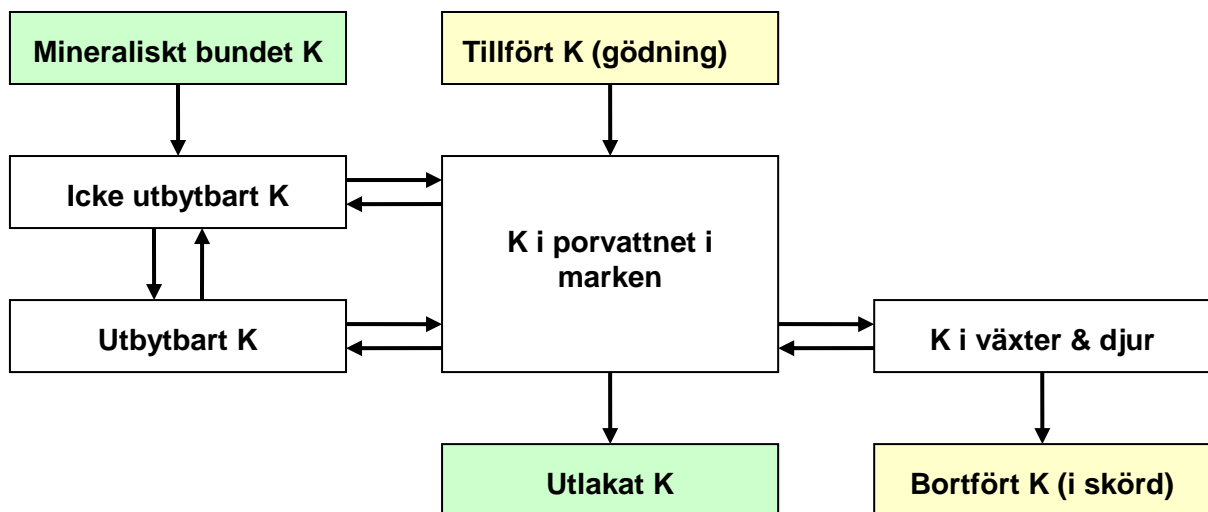
upplösning. Vittringen av kalifältspat innebär också att ett ytskikt utarmas på kalium och anrikas på kisel. För upplösning av kalium krävs att det diffunderar genom ytskiktet, vilket är en långsam process. Försök med finmalning av kalifältspat har uppvisat en ökad utlakning, vilket bekräftar mekanismen med ett skyddande ytskikt.[36]

Litteraturen anger i stället att glimmermineral såsom de vanligt förekommande muskovit och biotit är betydligt mera vittringsbenägna, och bidrar betydligt mer till tillgängligt kalium än fältspater. Glimrar är skiktssilikat (fyllosilikat) med motjoner såsom kalium mellan skikten. Deras vittringsprodukter är våra vanliga lermineral.



Figur 1. "Frayed edges" (fransade eller slitna kanter) och spallerade lager av naturligt åldrad glimmer (biotit). Ytan för den vittrade strukturen kan vara flera gånger större än för ovittrat material. Teckning efter ett fotografi i [38]

Figure 1. The frayed edges and spalled layers of naturally weathered mica (biotite). The available weathered surface may be many times that of an unweathered particle. Drawing after a photograph in [38]



Figur 2. Relationer och dynamik mellan de olika förekomstformerna för kalium i jord. Figuren ritad efter Referens [36]. Grön färg indikerar tillförsel och bortförande av kalium genom mer eller mindre naturliga processer (lakningen är emellertid starkt beroende av hur marken används) medan gul färg avser antropogena effekter.

Figure 2. Relations and dynamics between the various forms of occurrence for potassium in soil. Image drawn after Reference [36]. Green refers to addition and depletion of potassium by more or less natural processes (although leaching is strongly influenced by soil utilization) while yellow refers anthropogenic processes.

Vittring av glimrar leder initialt till bildning av så kallade ”frayed edges” (frayed = fransad eller sliten) med spallerade strukturer.[36] Ett typiskt resultat av vittring av glimmermineral visas i Figur 1 som är en teckning efter ett fotografi i Referens [38].

Studier som utförts av kalium i mark kan summeras som framgår av Figur 2. Tillfört kalium, kalium i porvattnet och utbytbart kalium är snabbt tillgängligt för växter. Den begränsande faktorn är normalt diffusion genom porvattnet eller över partiklarnas ytor. Reaktionen med icke-utbytbart kalium är långsamma och dem med mineraliskt kalium mycket långsamma.

Poolernas storlek är omvänt proportionella mot tillgängligheten. Poolen för mineraliskt kalium är störst, och den för icke-utbytbart kalium är näst störst. De övriga poolerna är små, vilket bl a framgår av att poolerna med tillgängligt kalium utarmas av bara några skördar med krävande gröda.

För praktiska ändamål kan de olika poolerna associeras till vad som kan extraheras med olika extraktionsmedel. Det är relativt allmänt accepterat att extraktion med rent vatten fångar upp det kalium som finns i porvattnet, och att extraktion med ammoniumacetatlösning fångar upp utbytbart kalium. Icke utbytbart kalium kan extraheras med salpetersyra, medan fullständig upplösning (t ex med fluorvätesyra som löser silikater) erfordras för att få med mineraliskt bundet kalium.

Det finns anledning att utgå från att cesium i mark uppträder på ett liknande sätt. Dock bör noteras, som redan nämnts, att tillgängligheten för cesium är betydligt lägre än den för kalium. Eftersom poolerna med utbytbar cesium är större än porvattenpoolen uppkommer retention i mark, d v s i en så kallad geologisk barriär, utav rena utspädningsskäl. Eftersom poolen med icke utbytbar cesium är mycket större än den för utbytbar cesium uppkommer en liknande effekt för detta utbyte, som dock bara har effekt för längre kontakttider. Till detta kommer att cesium binds bättre till fast fas jämfört med vatten och detta bidrar också till retentionen.

3.3 Cesium i mark

3.3.1 Bakgrund

Av alla fissionsprodukter och aktiveringsprodukter som genererats till följd av mänsklig aktivitet, och som släppts ut till miljön, är cesium-137 den som ofta visat sig vara den som dominerar dosen till människa under lång tid. Detta har föranlett det amerikanska organet NCRP (National Council on Radiation Protection & Measurements⁹) att ge ut en särskild rapport om cesium-137 i miljön.[22]

Den största källan till cesium-137 i biosfären är de atmosfäriska prov med atombomber som Förenta Staterna och det forna Sovjetunionen utförde under 1950- och 1960-talen. Man räknar med att ungefär 1 EBq (10^{18} Bq) cesium-137 har släppts ut totalt och att ungefär 90 % av detta kommer från atmosfäriska prov. Ungefär 6 % genererades vid olyckan i Tjernobyl och ungefär 4 % kommer från upparbetning av kärnbränsle. Det senare gäller troligen militära anläggningar, och utsläppen från upparbetningsanläggningar har minskat drastiskt under de senaste decennierna. Olyckan i Tjernobyl gav upphov till mycket större utsläpp än samtliga övriga olyckor sammantagna.

3.3.2 Cesium i nedfall

Det radioaktiva nedfallet från atmosfäriska bombprov kan ha varierande kemisk och radiokemisk sammansättning beroende bl a på typ av bomb (uran-235 eller plutonium-239), höjd för detonationen, samt om den skett över hav eller över land. Vid atmosfäriska bombprov på låg höjd över land dras t ex jordmaterial upp i plymen och blandas med fissionsprodukter.

Olyckan i Tjernobyl innebar först en ångexplosion som lyfte reaktorlocket och frilade härden.¹⁰ Därefter uppstod brand i grafiten, varvid en del av innehållet i härden, inklusive bränslerester spreds till hög höjd. Bränslerester och annat fast material bildade partiklar som i huvudsak spreds i området kring Tjernobyl. Cesium destillerades

⁹ NCRP består av vetenskapsmän och andra experter och arbetar på uppdrag av amerikanska kongressen.

¹⁰ Tjernobylreaktorn var lättvattenkyld och grafitmodererad. Vattnet leddes runt bränslet i rör. När härden exploderat fanns inget vatten kvar som kunde leda bort det restvärme som utvecklas även när kedjereaktionen avstannat. Detta uppgår till initialt någon procent av maximeffekten, men sjunker efterhand. Genom restvärmets blev branden i grafiten synnerligen svårsläckt, men så småningom fick man stopp på branden genom att härden täcktes med sand.

emellertid av från dessa partiklar, samt från härden, och ingick i en synnerligen finkornigt aerosol vilken fördes till hög höjd och spreds över stora avstånd.[22]

Det har uppskattats [39] att det totala nedfallet av cesium-137 över Sverige uppgick till 4,25 PBq ($4,25 \cdot 10^{15}$ Bq) vilket svarar mot kanske fem procent av de totala utsläppen.

Nedfallet i närområdet bestod huvudsakligen av torr deposition medan nedfallet på större avstånd, inklusive i Sverige, skedde genom våt deposition, d v s med regn¹¹. [40] Det är inte trivialt att ange den kemiska sammansättningen hos nedfallet. Dock kan konstateras att indunstningsåterstoden måste ha varit mycket liten, d v s de små partiklarna som spreds över stora avstånd hade en mycket hög specifik aktivitet. Därmed måste regnvattnet ha haft mycket nära ordinarie kemisk sammansättning. Det är rimligt att tänka sig att den stökiometriskt sett mycket ringa mängden cesium-137 förelegat i jonform.

Detta innebar att cesium-137 initialt följde med regnvattnet och ner i jorden ända tills det hann reagera med jordpartiklarna. Utgående från analogin med kalium som beskrivits ovan är det rimligt att anta att cesiumet först hamnade i utbytbara positioner och därefter i icke utbytbara positioner i jorden.

I det följande redovisas några av de många data som tagits upp för cesiumnedfallet, samt analyseras om verkligheten överensstämmer med denna ”modell”.

Det har rapporterats av SSI[5] att cesium-137 från nedfall har en hög mobilitet i organiska jordar (mull- och torvjordar). Liknande information presenteras i Referens [41] som meddelar att så mycket som två tredjedelar av det cesium-137 som nedfallit förlorats inom loppet av ett år. Detta kan förefalla förvånande mot bakgrund av den höga jonbyteskapacitet som kan finnas i organiskt jordmaterial. Absorptionen är emellertid svag och växttillgängligheten för näringsämnen i organiska jordar är hög. Framförallt saknas de mineralämnena som diskuteras i bl a Avsnitt 3.2, och som binder cesium på ett icke reversibelt sätt.

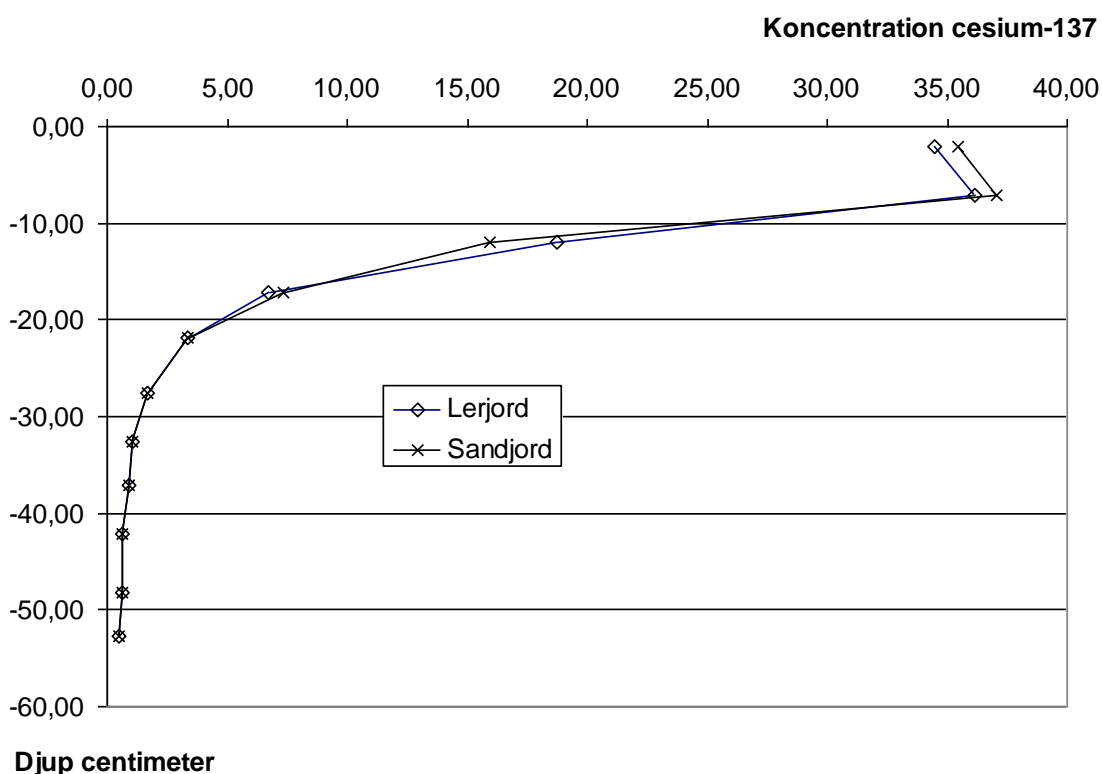
Slutsatsen är att någon påtaglig retention inte kan påräknas i sådana jordar som saknar ingående mineraljord. Detta är det enda fall som påträffats i informationssökningen där cesium är mobilt i jordmaterial.

Dock har många forskare funnit att cesium-137 varit mobilt under tiden (veckor och månader) efter nedfallet. Det förefaller som om denna initiala migration utgör huvuddelen av den migration som cesium genomgår över huvud taget. I mineraljordar är migrationen typiskt några centimeter eller som mest någon eller några få decimeter.

¹¹ Därav den mycket ojämna geografiska fördelningen hos nedfallet.

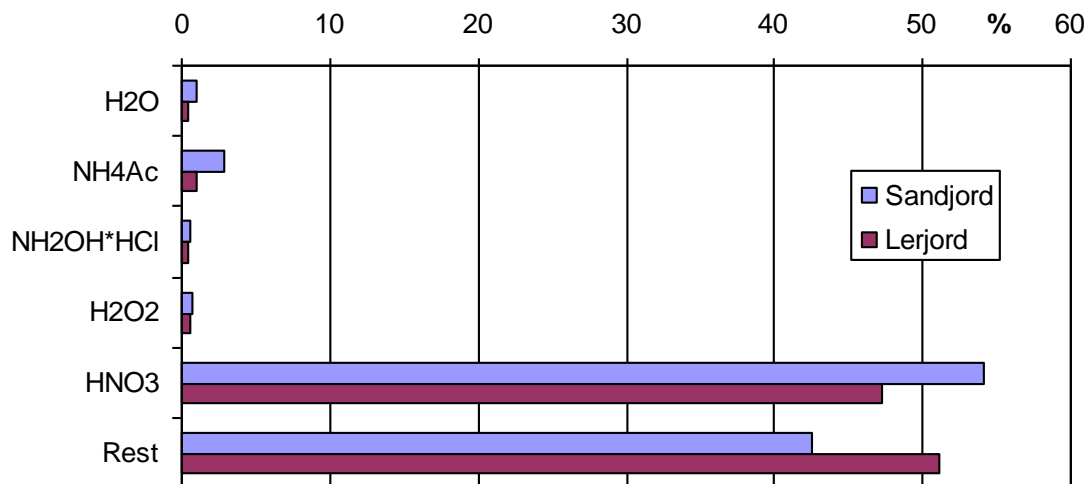
Den bästa källan som påträffats beträffande tillgängligheten för cesium under olika förhållanden är Referens [26]¹². Den initiala migrationshastigheten för cesium-137 under perioden 1961/64 till 1977 var 8 mm / år i sandjord och 13 mm / år i lerjord. Från 1967 till 1997/98 var migrationshastigheten 2 respektive 1 mm / år. Detta illustrerar betydelsen av den initiala migrationen.

Den rumsliga fördelningen i lerjord och sandjord visas i Figur 3. Ingen större skillnad kan identifieras mellan lerjord och sandjord.



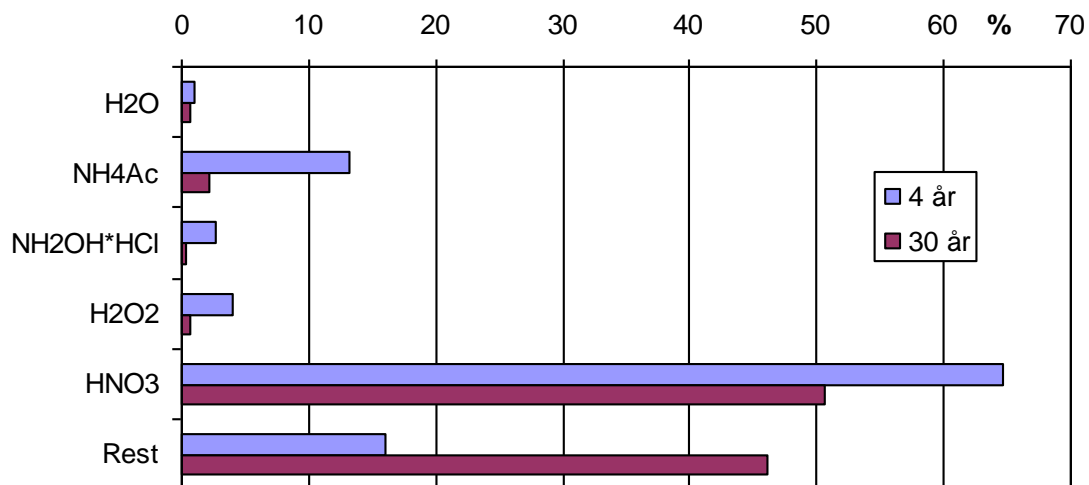
Figur 3. Koncentrationen av cesium-137 som funktion av djup i marken 30 år efter nedfall från atmosfäriska atombombprov. Figuren ritad efter data i Referens [26].
Figure 3. The concentration of cesium-137 as a function of depth in the ground 30 years after fallout from atmospheric atom bomb tests. The figure drawn from data in Reference [26].

¹² För en rättvisande jämförelse med tidigare publicerade rapporter bör nämnas att denne författare som publicerat sitt material år 2002 hade bättre förutsättningar än tidigare författare att få fram långtidsdata för nedfallet från Tjernobyl. Vidare hade han tillgång till en testyta som etablerades redan 1961.



Figur 4. Den kemiska tillgängligheten hos cesium-137 i lerjord respektive sandjord efter 30 år. Figuren ritad efter data i Referens [26].

Figure 4. The chemical availability of cesium-137 in clay soils and sandy soils after 30 years. The figure drawn from data in Reference [26].



Figur 5. Den kemiska tillgängligheten hos cesium-137 i jord efter 4 respektive 30 år. Figuren ritad efter data i Referens [26].

Figure 5. The chemical availability of cesium-137 in soil after 4 years and 30 years. The figure drawn from data in Reference [26].

I ett fall som refererats i papper III i [26] observerades en lägre migrationshastighet i sandjord jämfört med lerjord. I den referensen förklarade författaren skillnaden med att rotmattan var tätare i sandjorden. Denna tolkning stämmer dock inte särskilt väl med observationen i Referens [41] om att migrationen var större i organiskt material jämfört med sådant som innehöll mineraljord.

En rimligare tolkning kan vara att retentionen i lerjord kan vara högre initialt till följd av den högre jonbyteskapaciteten. Förmågan till långsiktig och irreversibel bindning av cesium hänger dock samman med innehållet av partiellt vittrade glimmermineral och tillgången till sådana är god såväl i sandjorden som i lerjorden.

Oavsett vad den exakta tolkningen må vara så kvarstår det faktum att ingen källa påträffats som visar på någon påtaglig skillnad mellan sand- och lerjord efter lång tid. Detta skiljer sig från förhållandena efter kort tid där mobiliteten i sandjord kan vara högre till följd av högre halt i porvattnet, vilket transferfaktorerna till gröda antyder.

Den kemiska tillgängligheten för cesium-137 i sandig respektive lerig jord visas i Figur 4, vilken ritats utgående från data från [26]. Figuren visar att sandjord och lerjord är ganska lika efter lång tid. Efter 30 år är nästan inget av ingående cesium-137 utbytbar längre.

Den kemiska tillgängligheten för cesium-137 efter 4 år och 30 år visas i Figur 5, vilken ritats utgående från data från [26]. Figuren visar att efter fyra år finns fortfarande en del av ingående cesium-137 tillgängligt för utbyte. Det har således fortfarande en viss potential att förflytta sig i marken och också att tas upp av växter.

Även för korta tider minskar tillgängligheten för cesium i mark med tiden. Data för detta återfinns till exempel i Referens [42]. Till exempel, enligt Figur 4.1 b i [42] så ökar K_d med en faktor 13 under tiden mellan dag 2 och dag 28 efter initial kontakt med jordmaterialet.

3.3.3 Cesium i utsläpp från kärntekniska anläggningar

Under det kalla krigets dagar och särskilt under dess tidiga skeden skedde stora utsläpp av cesium-137 till mark. Uppgifterna i det följande är hämtade från Referens [22].

Savannah River i Sydkarolina är ett av de National Laboratories som inrättades i USA under andra världskriget. Området är 800 kvadratkilometer stort. I Savannah River släppte man totalt ut 71 TBq ($71 \cdot 10^{12}$ Bq) cesium-137, varav 22 % kom från upparbetning och 78 % från driften av reaktorerna. Huvuddelen av cesiumet från upparbetningen leddes ut i infiltrationsbassänger där huvuddelen absorberades i sedimenten. Ungefär 30 % av de totala utsläppen av vätskeformigt avfall gick till kanaler, reservoarer och andra vattendrag inom området. Cesiumet i utsläppen till strömmande vattendrag absorberades typiskt i sedimenten nära utsläppspunkten.

Det sker ett kontinuerligt läckage från dessa sediment på grund av deras låga innehåll av absorberande leror. Marken i Savannah River området är sur och är naturligt utarmad på kalium. Upptagsfaktorerna från våtmarkerna hör till de högsta i världen. Upptagen har dock minskat sedan 1960-talet allteftersom verksamheterna har minskat och cesiumet fastlagts.

De stora utsläppen till mark har historiskt också lett till utsläpp till vatten. I dag är emellertid de senare förvånansvärt låga och ligger alla enligt [22] under 1,7 Bq cesium-137 per liter. I floden Savannah River är nivån 0,16 Bq per liter och lägre. Halten cesium-137 i ätbara delar i fisk från Savannah River ligger i intervallet 2 – 14 Bq cesium-137 per kg otorkat material.

Oak Ridge i Tennessee i USA är ett annat National Laboratory och dess område är ca 140 kvadratkilometer stort. Under första hälften av 1940-talet släpptes flytande uppberedningsavfall, efter utspädning, direkt ut i White Oak Creek. Därefter inrättades sedimentationsbassänger, uppehållsbassänger för avklingning samt en dammanläggning. Under 1950- och 1960-talen grävdes gropar och diken för infiltration av högaktivt uppberedningsavfall till Conasauga-skiffern som har en god förmåga att absorbera radionuklider med höga Kd-värden inklusive cesium-137. Totalt släpptes ungefär 22 PBq ($22 \cdot 10^{15}$ Bq) cesium-137 ut på detta sätt.

Marken i Oak Ridge har en hög halt illit-lera, varför den absoluta huvuddelen av utsläppen hamnat i sedimenten. Den spridning som fortfarande äger rum sker genom partiklar som suspenderas i strömmande vatten. Transporten genom den akvatiska näringskedjan sker genom att insekter äter växter som tagit upp cesium-137 från sedimenten. Detta cesium går sedan vidare och når så småningom människan genom fisk.

Halten cesium-137 i ytvatten från kontaminerade vattensystem i Oak Ridge ligger i allmänhet under 40 Bq per liter, och det filtrerade vatten som lämnar området ligger på < 1 Bq per liter. Orsaken till de förhållandevis mycket låga värdena är att cesiumet absorberats irreversibelt i den illitrika jorden.

Man har beräknat Kd-värden för de åldrade sedimenten och kommit fram till värden mellan 69 000 och 370 000 liter per kilo. Man har också räknat på jämvikten mellan suspenderat material i vattnet och vattnet och fått fram ett värde på fördelningskoefficienten som är 300 000 liter per kilo.

Ett tredje National Laboratory i USA som avhandlas i Referens [22] är *Hanford* i Washington State. Området är 1 450 kvadratkilometer stort och ligger i en öken med 170 mm nederbörd per år. Totalt har mer än 1 EBq ($1 \cdot 10^{18}$ Bq) deponerats eller lagrats i marken, inklusive förvaring av högaktivt flytande avfall i stora tankar. Totalt har 500 miljoner ton flytande avfall innehållande mer än 1,5 PBq ($1,5 \cdot 10^{15}$ Bq) infiltrerats i marken. Genom detta kunde cesium-137 och andra radionuklider absorberas i marken innan de nådde grundvatten och Columbiafloden.

I dag sker efterbehandling av mycket av det material som lagrats/deponerats i Hanford. Hittills har ca 1,8 tusen ton innehållande ungefär 7 PBq ($7 \cdot 10^{15}$ Bq) cesium-137 omhändertagits.

Till följd av det arida klimatet finns det inget ytvatten som på ett naturligt sätt strömmar ut i en recipient. Columbiafloden har en hög vattenomsättning och utspädningen är stor

varför halterna cesium-137 var låga i den redan under den tid då reaktorerna direktkyldes med dess vatten.

Däremot finns ett par intressanta observationer att göra beträffande den föreställningsförmåga som krävs om man på ett uttömmande sätt vill inventera scenarier för spridning av radionuklider in miljön.

Jord kontaminerad med cesium-137 hade täckts med två meter ren jord. Cesiumet var tillräckligt väl bundet till den kontaminerade jorden för att inte följa med perkolerande vatten neråt. Växter lyckades ändå penetrera skyddsskiktet och ta upp cesium-137 till nivå 10 miljoner Bq per kilo torrsvikt.

I ett annat fall hade cesium-137 i form av cesiumklorid placerats i diken som sedan fyllts med inert material. Grävande djur bosatte sig därefter i marken och åt av saltet, som var mycket eftertraktat eftersom det inte finns några naturliga "salt-licks" inom området. Aktiviteten fördes vidare i näringskedjan vilket ledde till kontamination över stora ytor genom de fekalier som utsöndrades. På detta sätt hade ca 540 GBq ($540 \cdot 10^9$ Bq) spridits till de översta 30 centimetrarna av marken.

Enligt [22] har man observerat att växter i allmänhet kan ta upp 40 – 80 % av tillgängligt cesium i marken, och mossor och lavar kan ta upp nära 100 %. Man har också observerat en viss anrikning i näringskedjan.

Referens [22] redogör ganska ingående för skälen till att den stora spridningen av cesium-137 lett till trots allt så låga halter i vatten och fisk.

Man anger att till skillnad från många andra radionuklider så beror absorptionen av cesium-137 i hög grad på mineralsammansättningen hos mark och sediment. Av störst intresse i sammanhanget är glimrar och deras nedbrytningsprodukter illit, vermikulit och smektit. Man tar också upp egenskaperna hos partiellt vittrad glimmer med "frayed edges" d v s fransade kanter vilket också redovisats ovan i Avsnitt 3.2. Man tar upp att bindning av cesium på ett irreversibelt sätt kan ta tid samt att en hög jonbyteskapacitet och snabb absorption inte nödvändigtvis behöver betyda den bästa kvarhållningen över lång tid. Systematiken för detta finns dock kanske bättre beskrivet i till exempel referenserna till Avsnitten 3.2 och 3.3 och upprepas därför inte här.

3.4 Spridning av cesium från aska

Utgående från vad som är känt från askbildningsprocesser är det rimligt att tänka sig att färsk aska som inte hunnit åldras kan ha en hög utlakning. Detta har också bekräftats från SSI.[43]

Askbildningsprocesser inklusive bildning av alkaliklorider har undersökts i ett antal rapporter från Värmeforsk, inklusive Referens [44]. Halten klor i bränslet varierar, och är ofta högre i returbränslen jämfört med jungfruliga bränslen. Saltsyra i gaserna i pannan konkurrerar med vatten, varför halten klorid i askan varierar med fukthalten i

bränslet. Fukthalten beror bland annat på om man har rökgaskondensering eller inte (d v s får tillbaka ångbildningsvärmets värme för vattnet eller inte). Kloridhalten i askan beror också på halten svavel där mer svavel ger mindre klorid i askan. Ibland sätter man till svavel för att höja sintringstemperaturen för aska och därmed minska påslaget på tuberna. Halten klorid i askan är mycket högre i flygaskan jämfört med bottenaskan eftersom klor och klorföreningar är flyktiga i pannan. Halten klorid beror också på om man blandat rökgasreningsprodukt med flygaskan eller inte. Rökgasreningsprodukt från torr eller halvtorr rening kan innehålla höga halter kalciumklorid. Vid kontakt med luft och vatten omsätts denna till kalciumkarbonat, vilket innebär att klorid kan bli tillgängligt för att i stället binda till alkali, inklusive cesium.

För ren flygaska överstiger kloridhalten normalt inte summahalten kalium och natrium, allt räknat i atomviktsenheter. En faktor är också tillgången till kisel, som binder alkali till silikat och därmed undandrar alkali från bindning till klorid.

För ren flygaska är det troligt att all klorid eller huvuddelen av ingående klorid binder till alkali-elementen kalium och natrium. För icke åldrad aska är denna klorid lättlakad.

Lakning av aska samt mätning av utlakad alkali presenteras i Referens [45] där man funnit att färsk aska lakar natrium och kalium samt att även åldrad aska gör det.

Lakning av cesium-137 i aska har utförts som följer. Enligt paper I i Referens [46] har askgranuler med 2,1 kBq/kg återförts till skogsmark år 1989. Återförandet skedde i Skogaby i sydvästra Sverige som var nästan helt befriat från nedfall från Tjernobyl. Under fem år i skogen förlorade askan 11-24 % av sitt initiala innehåll av cesium-137 (efter korrektion för avklingning).

Mätningar utfördes också på cesium-137 i marken och även detta resultat visade att det mesta av innehållet av cesium-137 var kvar i askan fortfarande efter fem år. Därefter blockades askgranulerna bort för hand och nya mätningar utfördes. Ingen skillnad kunde då observeras mellan mark till vilken aska återförts och kontrollytan. Detta innebär att tillförseln av kalium från askan inte hade påverkat läget för cesiumet i marken. (Det finns dock andra undersökningar som pekar på att tillförsel av kalium har effekt på sådant cesium som finns i utbytbara positioner.)

Eftersom aska kan laka cesium kan man befara att cesium-137 kan laka ut från deponier och hamna i recipient. Som tidigare nämnts innebär SSI:s föreskrift om aska att tillförseln till recipient inte får överstiga 0,1 Bq per liter. SSI har därför utfört ett stort antal mätningar vid olika deponier i nedfallsområden för att undersöka hur höga halter som släpps ut samt vilka halter dessa utsläpp kan ge upphov till efter utspädning.[11] Mätningarna avsåg aktivitetskoncentrationen i vatten efter perkolation genom aska som lagts upp på deponi samt i vissa fall efter passage genom viss omgivande mark.

SSI fann att deponierna i vart fall i stort uppfyllde kraven för utsläpp till recipient. I de flesta fall klarade grundvatten från deponierna även kraven på dricksvatten från brunn.

Mätningarna säger dock inte något om vilka halter som kan komma att uppmätas i framtiden.[11]

3.5 Modellering av spridning av cesium

3.5.1 Om modellering

Det har redovisats i avsnitt 3.1 hur korttidsläkning har kommit att användas som grund för t ex bedömning av egenskaper över hundratals och tusentals år för material som skall läggas upp på deponi. Det har också redovisats i Avsnitt 3.3 ovan hur koefficienten som anger fördelningen av cesium-137 mellan vätska och fast fas är kraftigt tidsberoende.

Det bör också observeras att modellen med fördelningskoefficienter, K_d -värden, som anger fördelningen mellan ämne i fråga i vätskefas och fast fas bara stämmer för vissa typer av reaktioner (t ex jonbyte). Den kan därför generellt sett bara användas för "grovsortering". Precisa värden kan bara erhållas med hjälp av mera avancerade modelleringsverktyg eller genom mätningar.

Användbarheten av modellering med fördelningskoefficienter avhandlas i en konsultrapport som givits ut av Naturvårdsverket[47]:

"Olika ämnens biogeokemiska processegenskaper beskrivs vanligen med makroparametrar, t.ex. retardationskoefficienter och nedbrytningskonstanter. Dessa beror ofta på fysiska egenskaper i jord och hos ämnet. Sorptionen beskrivs t.ex. ofta som förhållandet mellan upplöst ämne och i jorden adsorberat ämne (K_d). Likaså beskrivs ofta ett ämnes nedbrytning eller avklingning med en enkel halveringstid. Denna typ av parametrar återfinns ofta i litteratur för specifika ämnen under olika markförhållanden. Denna typ av makroparametrar är naturligtvis en kraftig förenkling av de verkliga biogeokemiska processerna, men det saknas ofta tillräckligt med data för en mer detaljerad och korrekt beskrivning av de geokemiska processerna. Detta förhållningssätt kan dock ge helt felaktiga resultat i en konkret riskbedömning. Litteraturvärden bör därför justeras genom kalibrering mot uppmätta koncentrationer och för aktuella parametrar bör det genomföras känslighetsanalyser."

Environmental Protection Agency (EPA) i USA har gjort en stor genomgång av data för jämviktsmodellering.[17-19]. I inledningen till var och en av de tre delrapporterna lämnas tydlig varningstext som påminner om begränsningarna med metodiken. Den bör hållas i minnet i samband med all användning av resultat från sådan modellering och lyder som följer:

"The K_d parameter is very important in estimating the potential for the adsorption of dissolved contaminants in contact with soil. As typically used in fate and contaminant transport calculations, the K_d is defined as the ratio of the contaminant concentration associated with the solid to the contaminant concentration in the surrounding aqueous solution when the system is at equilibrium. Soil and geochemists knowledgeable of sorption processes in natural environments have long known that generic or default K_d

values can result in significant error when used to predict the absolute impacts of contaminant migration or site-remediation options. Therefore, for site-specific calculations, Kd values measured at site-specific conditions are absolutely essential.”

Det har redan nämnts att Referens [22] anger att fördelningskoefficienter från just cesium är särskilt förrädiska.

3.5.2 Fördelningskoefficienter för cesium i mark

Referens [18] anger att specieringen för cesium i vatten är mycket enkel genom att Cs⁺ knappast bildar några komplex. Exempelvis är komplexen med humus- och huminsyror mycket svaga. Retentionen uppges bero på närvaro av glimmer-besläktade skiktssilikater samt halterna av katjoner som K⁺ och Na⁺ som kan konkurrera med cesium.

Absorptionen i illitleror och liknande är selektiv för cesium. Kalium har något för liten jonradie för att passa in perfekt och joner av tvåvärda alkaliska jordartsmetaller är alltför stora genom sin hydratisering.

Spårhalter av cesium absorberas praktiskt taget fullständigt vid pH > 4. Vid höga salthalter blir sorptionen av cesium sämre men ligger cesiuminnehållet under 1 % av katjonbyteskapaciteten (CEC) så är effekten av konkurrerande katjoner ringa. Detta villkor är alltid uppfyllt för kontamination med cesium-137.

En sammanfattande tabell över de 139 Kd-värden som påträffats och använts i Referens [18] återfinns i Tabell 2. Det lägsta pH-värdet är 4,0, och det är troligt att de lägsta värdena svarar mot de lägsta pH-värdena. Det påpekas i Referens [18] att fördelningskoefficienterna är generellt sett mycket lägre för sorption jämfört med desorption. Detta är en indikation på att Kd-värdena avser korta tider, och att högre värden kan förutses för långa tider och i verkliga fall.

Tabell 2. Uppskattade intervall för Kd-värden baserade på de fördelningskoefficienter som påträffats i genomgången i Referens [18]. CEC = katjonbyteskapacitet.

Table 2. Estimated range of Kd-values based on the partitioning coefficients found in the compilation in Reference [18]. CEC = cation exchange capacity.

Fördelningskoeffi- cient (liter / kg)	CEC (meq/100 g) / Lerinnehåll (wt %)		
	<3 / <4	3 – 10 / 4 - 20	10 – 50 / 20 - 60
Median	200	500	1 500
Lägsta	10	30	80
Högsta	3 500	9 000	26 700

3.5.3 Spridningsberäkningar vid hög salthalt

De stora tankar i Hanfort i USA som i vart fall tidigare innehållit flytande avfall från upparbetning av bestrålat kärnbränsle förlades i mark med enkel inneslutning¹³. Många av dessa har läckt. Innehållet bestod av salter av bl a natrium, kalium och cesium-137.

För ett sådant fall kan inte ”vanliga” fördelningskoefficienter användas eftersom de beskriver fördelning mellan besättning med oxoniumjoner (vätejoner) och cesium-137. För det aktuella fallet med salter behövs i stället fördelningskoefficienter mellan de olika aktuella katjonerna.

För fallet med en läckande tank med salter från upparbetning av bestrålat bränsle har såväl mätningar som modellberäkningar utförts.[48] Mätningar har visat att det cesium som läckt ut i form av 250 kubikmeter avfallslösning under en vecka år 1965 fortfarande befinner sig nära tanken. Modelleringen har gett samma resultat samt också givit rimliga fördelningar för övriga joner.

Exemplet visar att cesium-137 i mark kan förväntas ha en hög retention även i fall där vattnet innehåller höga halter av salt som i hög grad följer med vattnet.

Detta har betydelse för bedömning av migrationen av cesium-137 i mark för sådana fall där lakvatten från aska även innehåller diverse salter.

Det går också att identifiera principerna för transport genom aska. Här är emellertid de olika fördelningskoefficienterna mindre kända.

Retentionen för cesium i förhållande till kalium och natrium har inte varit föremål för någon systematisk och uttömmande informationssökning. Ytterligare uppgifter som påträffats redovisas emellertid i Bilaga.

3.5.4 Askanvändning i anläggningsbyggande

Den enklaste formen av modellering ”chemical reaction modelling” utgår från att det existerar en fördelningskoefficient, K_d , mellan fast fas och vätska. Fördelningskoefficienten anger hur hög halt av ämnet i fråga som finns i fast fas (Bq/kg) i förhållande till hur hög halt av ämnet i fråga som finns i en vätska som kontaktar den fasta fasen (Bq/liter). Fördelningskoefficienten får därmed sorten liter per kilo.

När vätskan rör sig transporteras den del av ämnet som finns i lösning, men inte den del som finns absorberad på och i den fasta fasen. Eftersom det hela tiden sker utbyte mellan det lösta ämnet i vätskan och det absorberade på den fasta fasen så får man just inte någon spridning av ämnet i vätskefasen av detta skäl. Däremot blir transporten med vätskan mycket långsammare än den för vätskan.

¹³ Modern standard innebär dubbel inneslutning, d v s man har två tankar i varandra med läckagekontroll emellan. Vid enkel inneslutning finns risk för utläckage till grundvattnet, vilket bl a kan innebära mycket höga saneringskostnader.

Man brukar definiera [17,49] en retardationsfaktor, R_f , enligt följande:

$$R_f = \frac{\text{transporthastigheten för vätskan}}{\text{transporthastigheten för föroreningen}} \quad (1)$$

Där

$$R_f = 1 + \frac{\rho_b}{n_e} K_d \quad (2)$$

och

ρ_b = skrymdensiteten hos det porösa mediet (kg/liter)

n_e = effektiva porositeten för det porösa mediet vid mättnad med vätska

Men det sker också en spridning, och denna är mycket viktig eftersom den kan leda till en reduktion av koncentrationen. Den uppkommer normalt till följd av att strömningsvägarna för vätskan är lite olika i ett poröst material, så spridningen är en rent geometrisk effekt. Dock kommer föroreningen ut långsammare och får en större utspädning eftersom den rör sig långsammare.

Det är förståeligt att en så enkel modell blivit så populär trots att villkoren för dess användande ofta inte är uppfyllda, se Avsnitten 3.5.1 och 3.5.2.

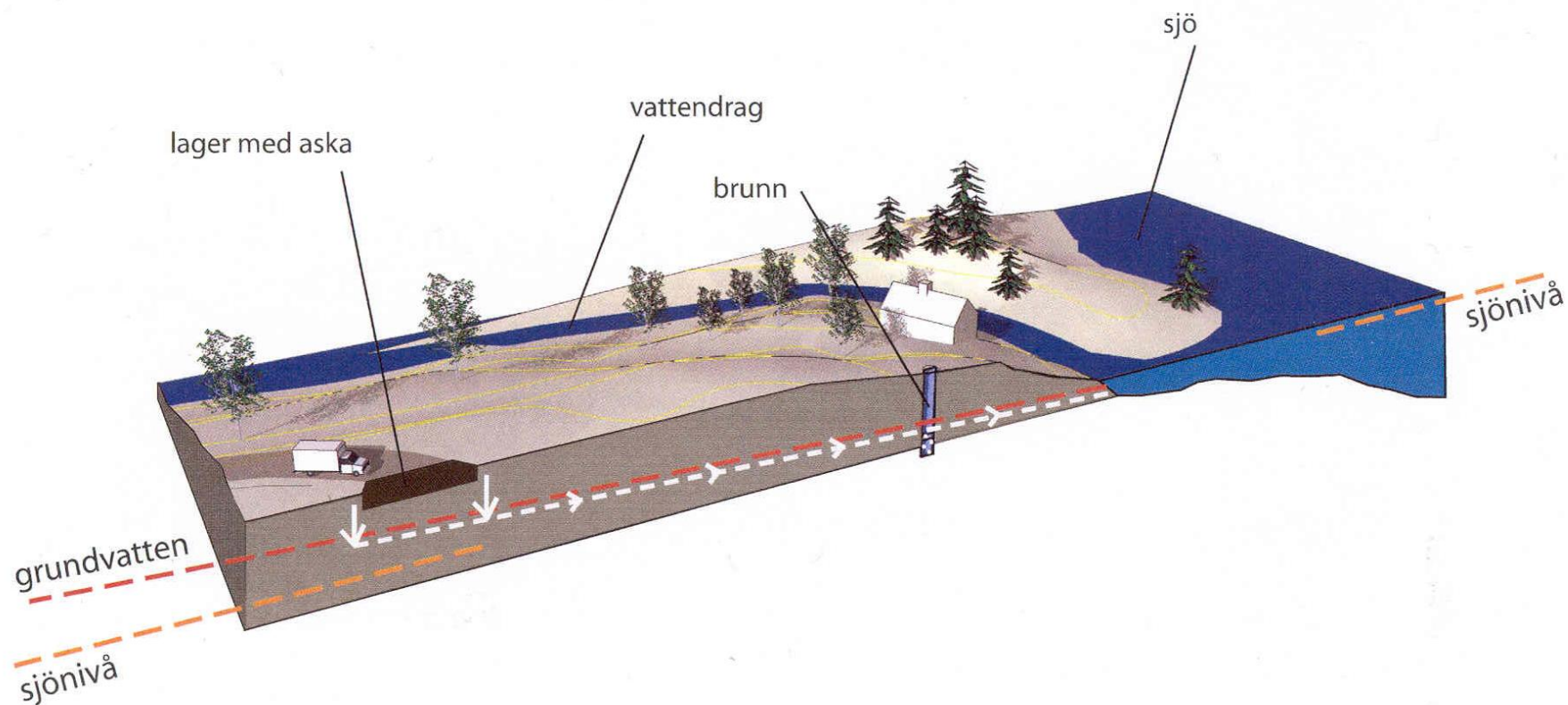
Modellen har använts i Referenserna [50-51] och i det följande beskrivs ett av referensfallen i [51].

Modellen eller principen för oralt intag via dricksvatten från brunn samt fisk i en sjö visas i Figur 6. Grundvattenytan ligger högre än sjönivån, varför grundvatten strömmar genom marken mot sjön. På vägen fångar det upp föroreningar som lakar från vägen till följd av nederbörden som perkolerar genom den. Föroreningarna späds i grundvattnet samt fördröjs i marken genom absorption på och i jordpartiklarna.

Enligt [51] antas diverse övergångs- och tungmetaller laka och konsekvensen för hälsan hos de som bor i stugan på bilden i Figur 6 beräknas. Man räknar också baklänges, d v s hur mycket får materialet i vägen laka för att man skall kunna innehålla vissa hälsokriterier för dricksvatten. På detta sätt kan man komma fram till vilka föroreningshalter och vilka tillgängligheter för dessa som är acceptabla.

Det går också att tillämpa metodiken för att analysera känsligheter, t ex vilken betydelse har ett större uppsamlingsområde för regnvatten till vänster om vägen, och vilket betydelse har ett ändrat avstånd till brunnen.

Exempel på andra typer av analyser är Referens [52] där man modellerat i två dimensioner för en väg byggd med kolaska. Här ville man bland annat veta maximihalter i marken vid väggkanten.



Figur 6. Spridningsväg för cesium-137 från en väg byggd med aska till en brunn för dricksvatten och till en liten sjö med fisk. I samband med häftiga regn kan även ytavrinning förekomma.

Figure 6. Path of transfer for cesium-137 from a road built with ash to a well for drinking water and to a small lake with fish. Surface transfer of meteoric water may take place in conjunction with heavy rains.

4 Modellering av transporten för cesium

Värmeforsk har genom sitt program Miljöriktig användning av askor tagit fram ett generellt verktyg – som också kan användas med platsspecifika parametrar – för utvärdering av miljökonsekvenser i samband med anläggningsbyggande med askor. Syftet med verktyget är att uppfylla de krav på hälsa och miljö som finns.[50-51]

Det är därför en stor fördel om samma metodik och verktyg kan tillämpas för analys av hur kraven SSI:s föreskrift om aska [1-2] också kan uppfyllas. Kraven består ju i att dricksvatten i brunn skall understiga 1 Bq per liter och utsläpp i recipient får vara högst 0,1 Bq per liter efter utspädningen.

Genomgången i Avsnitt 3 ovan visar att det troligaste beträffande källtermen är att utlakningen för cesium-137 är långsam för åldrad aska. Data saknas emellertid, och det finns uppgifter om att utlakningen av cesium är hög för färsk aska. Eftersom utlakningen är lägre för cesium-137 än för kalium skulle man ha kunnat gränssätta cesium baserat på utlakningen av kalium. Denna är emellertid varierande. En rimlig tolkning är att det i första hand är natrium som binds till ingående klor i askan, men när natriumet inte räcker till så bildas även kaliumklorid.¹⁴

Därför antas inför modelleringen av transport för cesium-137 att allt cesium-137 initialt föreligger som cesiumklorid, och att denna lakar lika snabbt som övrig klorid.

Det har redovisats i Avsnitt 3.5.3 ovan, se även Bilaga, att även vid saltvattenförhållanden så separerar cesium-137 i mark från övriga salter inklusive kalium, natrium, kalcium och magnesium. Cesium-137 antas således inte följa med kloridplymen i marken.¹⁵

Detta gäller sannolikt även kalium i förhållande till övriga (även om explicita data för detta inte citeras i denna rapport). Kalium kan antas jonbyta mot natrium som finns i mineral i marken. Detta förhållande har betydelse för uppläggningsprogrammet efter en getoteknisk installation.

Spridningsberäkningar för cesium-137 i mark kan således utföras för på samma sätt som för övriga retarderande element, men med den skillnaden att utlakningen från askan är i stort sett momentan (d v s följer klorid). För övriga retarderande element antas i [51] att utlakningen ges av vissa gränser i Naturvårdsverkets acceptanskriterier.

De generella modellparametrar som använts i [51] återges i Tabell 3. För detaljer kring hur dessa parametrar används hänvisas till Referens [51].

¹⁴ Detta gäller inte torr och halvtorr rökgasreningsprodukt med kalciumklorid.

¹⁵ Detta gäller inte nödvändigtvis för spridning från en askdeponi där av olika skäl salt och cesium-137 kan tänkas följas åt i vattnet under lång tid.

Tabell 3. Generella modellparametrar som använts i Referens [51], se även Figur 6.
Table 3. General model parameters used in Reference [51], see also Figure 6.

Parameter	Dimension	Värde	Förklaring
b	m	10	konstruktionens bredd
x_1	m	20	avstånd väggkant - dricksvattenbrunn
z_1	m	5	djup grundvattenakvifär
ε		0,3	porositet aska
θ	m^3/m^3	0,25	vattenhalt aska
ρ_{aska}	kg/m^3	$1,5 \cdot 10^3$	densitet aska
ρ_{jord}	kg/m^3	$1,5 \cdot 10^3$	densitet underliggande jordlager
Δz	m	0,5	tjocklek underliggande jordlager där jordkvalitetskriterium ansätts
q_L	m/år	0,3	årlig lakvattenbildning
q_{gv}	m/år	10	grundvattenflöde
φ		0,3	porositet grundvattenakvifär
λ	m	2	dispersivitet i grundvattenakvifär
Q_{yt}	$m^3/år$	$1,0 \cdot 10^6$	ytvattenflöde
L	m	$1,0 \cdot 10^3$	askonstruktionens längd parallellt med ytvattnet

Spridningsberäkningar för klorid finns redovisade i Bilaga F i [51]. Man har antagit att askan innehåller 15 gram klorid per kilo och att utlakningen av klorid är 8,5 gram per liter. Med den linjära modellen samt parametrarna i Tabell 3 ger detta enligt beräkningarna 0,24 gram per liter. Halten i brunnen är således ca 35 gånger lägre jämfört med lakvattnet. Av detta härrör en faktor 18 från utspädning med det strömmande grundvattnet och en faktor två från dispersion (utbredning av plymen till följd av olika strömningsvägar i jorden).

Analogt erhålls följande enligt det pessimistiska antagandet att cesium-137 lakar som klorid, samt ett helt hypotetiskt antagande om att cesium-137 också skulle spridas i mark på samma sätt som klorid.

Askan antas innehålla 10 kBq/kg, vilket enligt analogin ger $10 \cdot 8,5 / 15 = 5,7$ kBq/liter i lakvattnet och $5,7 \cdot 0,24 / 8,5 = 0,16$ kBq / liter i brunnen. *OBS! Detta är ett helt hypotetiskt värde där retentionen ännu inte räknats med.*¹⁶

Vid val av fördelningskoefficient beaktas att kontaminerad aska (d v s aska med mer än 0,5 kBq/kg) inte rekommenderas användas för geotekniska konstruktioner nära jordar med högt innehåll av organiskt material (mull- och torvjordar). Inte heller rekommenderas användning av kontaminerad aska i samband med rena mörkeljordar som saknar andra mineral än kalciumkarbonat, och vidare skall jorden innehålla minst några procent finfraktion. (Dessa restriktioner behövs dock inte där avstånd till dricksvattenbrunnar och recipienter är stora.)

¹⁶ För radon i brunnar har Socialstyrelsen ett riktvärde som uppgår till 1 kBq / liter.

Med dessa förutsättningar samt utgående från uppgifterna i Tabell 2 och i Referenserna [17-19] uppskattas fördelningskoefficienten för cesium-137 i mark inte understiga 30 liter per kilo.

Retentionens påverkan på tiden till utläckage till brunnen samt halten i vattnet kan uppskattas med formlerna (1) och (2) ovan. Med insatta värden från Tabell 3 erhålls:

$$R_f = 1 + 5 \cdot K_d \quad (3)$$

För $K_d = 30$ erhålls $R_f = 151$.

Detta innebär att cesium-137 kommer ut 151 gånger långsammare och späds ytterligare 151 gånger, d v s ovan nämnda 0,16 kBq/liter skall delas med 151, vilket ger 1,06 Bq / liter, d v s strax över SSI:s gränsvärde.

Det bör emellertid observeras att transporten tar 151 gånger längre tid, d v s i stället för 10 månader som det tog för kloriden får vi $151 \cdot 10/12$ år = 126 år. Detta motsvarar ungefär fyra halveringstider, d v s cesium-137 hinner avklinga till en sextondel av den ursprungliga aktiviteten. Högsta halten i brunsvattnet blir således 0,07 Bq per liter.

Resultaten av vissa variationer i antagandena redovisas i Tabell 4 i Avsnitt 5.1.

5 Slutsatser

5.1 Resultat från modelleringen

Resultaten från modelleringen redovisas i Tabell 4. Förutsättningarna för kalkylen finns beskrivna i Avsnitt 4. Kalkylerna gäller jord som innehåller mineraljord. Som redovisats tidigare i rapporten är osäkerheterna stora. Ansatta värden för referensfallet är dock försiktigt valda.

Tabell 4. Resultat från modellering av halten cesium-137 i en brunn i närheten av en väg byggd med kontaminerad aska. Referensfall (i fet kursiv stil) samt variationer.
Table 4. Results from modelling of the concentration of cesium-137 in a well in the vicinity of a road built using contaminated ash. Reference case (in bold italic font) as well as variations.

Ansatta värden			Resultat av kalkyl		
Kd liter/kg	Aktivitet i askan kBq/kg	Avstånd väg – brunn m	Retentions- tid år	Halt i brunn, ej avklingning Bq/liter	Halt i brunn, med avklingning Bq/liter
30	10	20	126	1,06	0,07
30	10	10	63	2,12	0,53
30	2	20	126	0,21	0,01
30	2	10	63	0,42	0,11
100	10	20	419	0,10	< 0,01
100	10	10	210	0,19	0,03
100	2	20	419	0,02	< 0,01
100	2	10	210	0,04	< 0,01

5.2 Kontrollprogram

Som framgår av informationssammanställningen i Avsnitt 3 innebär sannolikt det utläckage som framräknats i Avsnitt 4.1 en kraftig överskattning. Dock bör man generellt vara misstänksam mot jämviktsmodelleringar. Man bör också tänka på att det kan vara svårt att komma på speciella fall som kan ge andra (och kanske mindre positiva) resultat.

Därför kan det vara klokt att ha någon form av kontrollprogram åtminstone för de första installationerna med kontaminerad aska. Syftet skall vara följande:

- Att om möjligt identifiera brister och svagheter i de analyser som görs i denna rapport så att risken för att hälsorisker underskattas minimeras
- Att bekräfta att utsläppen blir minst så små som uppskattats
- Att få fram underlag för förbättrad kontroll och modellering i framtiden

Kontrollprogrammet bör utföras samordnat med övriga behov av kontroll, vilka främst avser följande

- Halt klorid i brunnsvattnet, vilket enligt *Livsmedelsverkets föreskrifter (SLVFS 2001:30) om dricksvatten* får anmärkning om halten överskrider 100 mg klorid per liter.
- Halt kalium i brunnsvattnet vilket enligt *Socialstyrelsens allmänna råd (SOSFS 2003:17) om försiktighetsmått för dricksvatten* inte får överskrida 12 mg per liter.

Enligt genomgången ovan bör en ökning av salthalten i en närbelägen brunn kunna uppmätas inom loppet av ca ett år. Samtidigt som man konstaterar förhöjda värden kan man också mäta kalium vars ökning dock kan tänkas komma betydligt senare än den för klorid. Halterna kan också förväntas vara lägre än vad som svarar mot förhållandet mellan kalium och klor i askan. Detta på grund av jonbyte i marken mellan kalium och natrium.

Mätning av kaliumhalt i vattnet kan också ge en ”garanti” för att halten cesium-137 i vattnet är låg. Antag att den aska som används innehåller 1 % kalium, d v s 10 g/kg, och 10 kBq/kg cesium-137. Varje ökning i brunnsvattnet med 1 mg K / liter innebär då en ökning med halten cesium-137 med teoretiskt allra högst 1 Bq / liter, enligt ovan dock sannolikt många tiopotenser lägre.

Vid kraftiga höjningar av kaliumhalten kan det därför vara lämpligt att skicka ett vattenprov för kontroll av innehållet av cesium-137. Det är viktigt inför tolkningen av sådana provsvar att tillräckligt stora vattenprov tagits och sparats från tiden före den geotekniska installationen.

Kontroll av såväl total salthalt som kaliumhalt i vattnet i en brunn är synnerligen enkla att genomföra. Salthalt kan mätas indirekt genom att man mäter den elektriska ledningsförmågan. Enkla, små och batteridrivna sådana instrument med tillräcklig kvalitet och noggrannhet kan köpas för något tusental kronor.

Ett enkelt, litet och bärbart instrument för mätning av kalium med en turbidimetrisk metod kan köpas för under SEK 4 000, inklusive reagens. Ett sådant instrumentet kan mäta i intervallet 0 – 50 mg per liter och har en noggrannhet som är bättre än $\pm 15\%$ utom för de lägsta värdena.

Att mäta 1 Bq/liter för cesium-137 i vatten (d v s SSI:s krav för dricksvatten) kräver att ett prov på några liter skickas till ett kvalificerat radiologiskt laboratorium. Att mäta på nivån 0,1 Bq/liter (d v s SSI:s krav för recipient) är betydligt svårare men går enligt [22] att utföra med avancerad metodik.

5.3 Praktiska råd

Här kommer en sammanfattning av slutsatser från analysen ovan tillsammans med praktiska råd. Dessa skall ses som komplement till SSI:s bestämmelser [1-2] och råd [1-

2,4] och ersätter inte dessa. Var och en måste själv läsa dessa dokument [1-2,4] eftersom det som står i dem i de flesta fall inte upprepas här.

Att använda aska, inklusive kontaminerad¹⁷ aska med ett aktivitetsinnehåll under 10 kBq/kg, i geotekniska anläggningar är ett utmärkt sätt att såväl hushålla med naturresurser som att fastlägga potentiellt hälsostörande cesium-137 i jord till dess att radioaktiviteten avklingat.

Man bör i sammanhanget skilja mellan geometrisk spridning och radiologisk. Att använda kontaminerad aska geotekniskt må innebära geometrisk spridning, men är radiologiskt sett en fastläggning i sådana strukturer från vilka strålning av betydelse aldrig kommer att nå några människor.

Man bör undvika viss externstrålning. SSI:s råd ([1] § 5) att täcka med icke kontaminerat material till en tjocklek av 20 centimeter är lika effektivt som enkelt och kräver inte någon särskild handledning att utföra.

Utsläppen till dricksvattenbrunnar och vattendrag från vilka man tar upp och äter fisk är sannolikt helt obetydliga, men metodiken för att bestämma detta är ofullkomlig. Därför rekommenderas följande försiktighetsmått vid användande av kontaminerade askor.

- De bör inte användas på jordarter bestående av mull- eller torvjord, inte heller på rena märgeljordar som nästan bara innehåller kalciumkarbonat, eller på jordar som har andel finfraktion lägre än några procent. Minsta avstånd till sådana jordar bör vara 50 meter.
- Kontaminerade askor bör inte användas närmare en brunn med dricksvattenuttag än 20 meter.
- Kontaminerade askor bör inte användas närmare recipient med kapacitet att generera några kilo matfisk per år än 40 meter.
- Man bör se upp med ytavrinning så att inte vatten som perkolerat genom en väguppbyggnad tillåts rinna direkt ner i recipient. På platser men sådana förutsättningar bör askor med < 0,5 kBq/kg användas.
- Ett kontrollprogram bör utföras enligt Avsnitt 5.2 (se nedan beträffande undantag).

Det finns två skäl för kontrollprogram:

- Att omöjliggöra större utsläpp till en dricksvattenbrunn för den händelse att mycket stora fel mot förmodan skulle förekomma i kalkylerna i denna rapport.
- Att verifiera metodiken enligt denna rapport, samt att ge underlag för en mindre sträng gränssättning.

Som redovisats i Avsnitt 4 är det osannolikt att halten cesium-137 i ett brunnsvatten kan överstiga 1 Bq/liter om halten kalium ligger under gränsvärdet, dvs under 12 mg/liter. Någon särskild mätning av Cs-137 är alltså inte motiverad såvida inte gränsen för

¹⁷ Med kontaminerad aska avses aska med ett aktivitetsinnehåll i intervallet 0,5 – 10 kBq/kg.

kalium överskridits. För askor med ett aktivitetsinnehåll understigande 2 kBq/kg bedöms aktivitetsmätningar över huvud taget inte behöva utföras av skyddsskäl.

På grund av osäkerheterna i bestämningarna av fördelningskoefficienter för cesium är det angeläget att kunna verifiera metodiken i denna rapport samt förhoppningsvis även få fram underlag för en mindre sträng gränssättning. Sådana undersökningar kan med fördel utföras med aska med hög kontaminationsnivå eftersom det då blir enklare att mäta med god precision.

6 Förslag till fortsatt forskningsarbete

Även om denna rapport kunnat resultera i handfasta råd beträffande hur man skall förfara för att hålla sig under stipulerade 1 Bq/liter till brunn och 0,1 Bq/liter till recipient finns det ändå besvärande brister i kunskapsunderlaget.

Dessa gäller främst följande:

- 1 Tillgänglighet cesium-137 från olika askor, före och efter åldring
- 2 Transport av cesium-137 genom aska och mark med vatten med förhöjd salthalt
- 3 Data från pilotförsök med transport i aska och mark
- 4 Undersökning av jordmaterial

Tillgänglighet cesium-137 från olika askor, före och efter åldring.

I dag saknas i stort sett data för tillgänglighet för cesium-137 i olika askor före och efter åldring. Därför har det varit nödvändigt att mycket pessimistiskt anta att cesium-137 i aska är lika lättillgängligt som klorid, även efter åldring. Analyser av spridning från geotekniska konstruktioner skulle bli väsentligt robustare och mindre konservativa med tillgång till sådana data.

Transport av cesium-137 genom aska och mark med vatten med förhöjd salthalt.

För denna rapport har med stöd av några referenser antagits att cesium-137 separerar från kloridplymen, så snart denna nått jordmaterialet. Det finns en litteratur kring detta som det inte varit möjligt att gå igenom inom ramen för det arbete vars resultat redovisas i denna rapport. Dessutom behöver mätningar göras för aska och kanske också för saltlösning med sådan sammansättning som erhålls från aska.

Data från pilotförsök med transport i aska och mark

Redovisningen i denna rapport pekar entydigt på att det aldrig kommer att gå att observera några förhöjda värden på cesium-137 i brunnsvatten, och än mindre i en recipient. Därför är det angeläget att ta reda på var gränserna egentligen går. Detta kan utrönas med hjälp av arbete i fält men i betydligt mindre skala än en hel väg. Då blir transportsträckorna mindre och tiderna rimliga. Troliga lämpliga dimensioner är omkring en meter eller mindre.

Undersökning av jordmaterial

Det har framkommit ovan att det inte är riktigt samma mineral som ger den långsiktiga kvarhållningen som de som har hög absorption på kort sikt. Ofta rekommenderas leror som har en hög absorption på kort sikt men som kanske ändå inte har lika bra absorption på lång sikt som t ex glimrar har. Det finns mer att inhämta i litteraturen än vad som redovisats i denna rapport. Frågan om lång- respektive kortsiktig bindning går också att koppla till de olika jordarter som finns i Sverige, vilket bara gjorts mycket summariskt i denna rapport.

7 Litteraturreferenser

- [1] Författarefternamn Författarförnamnsinitial; ”Rapporttitel”, Utgivare/Förlag, Utgivningsort Utgivningsmånad Utgivningsår
- [1] *Statens Strålskyddsinstitutets föreskrifter och allmänna råd om hantering av aska som är kontaminerad med cesium-137*. SSI FS 2005:1.
- [2] *The Swedish Radiation Protection Authority's Regulations and General Advice on the handling of Ashes Contaminated by Caesium-137*. SSI FS 2005:1. English unofficial translation. Original title: Statens strålskyddsinstitutets föreskrifter och allmänna råd om hantering av aska som är kontaminerad med cesium-137.
- [3] Moberg L Editor. *The Chernobyl Fallout in Sweden*”. The Swedish Radiation Protection Institute, 1991. ISBN 91-630-0721-5.
- [4] Möre H and Hubbard L M. *Kommentarer och vägledning till föreskrifter och allmänna råd om hantering av aska som är kontaminerad med cesium-137*. SSI Report 2005:07.
- [5] Möre H and Hubbard L. *Strålskyddskonsekvenser vid villaeldning med ^{137}Cs -kontaminerad ved*. SSI Report 2002:06.
- [6] Jones C and Pers K. *Radioaktivt avfall från icketillståndsbunden verksamhet (RAKET) – identifiering av aktuellt avfall, sammanställning av relevanta regler och principer, förslag på system för omhändertagande*. SSI rapport : 2001:15. Juli 2001.
- [7] Thunholm B, Lindén A H och Gustafsson B. *Concentrations of Uranium, Thorium and Potassium in Sweden*. SSI Rapport 2005:04. SKI Report 2005:10. April 2005.
- [8] Hubbard L M och Möre H. *Strålskyddskonsekvenser från ^{137}Cs vid användning av biobränsle i stora anläggningar*. SSI-rapport 1998:15.
- [9] Möre H och Hubbard L. *Stråldoser vid användning av torvbränsle i stora anläggningar*. SSI Rapport 2003:02. Februari 2003.
- [10] Kartläggning av radioaktivt avfall från icke kärnteknisk verksamhet (IKA). SSI Rapport 2003:22. November 2003.
- [11] Möre H och Mossfelt L. *Läckage av ^{137}Cs från deponier och utfyllnader*. SSI Dnr 2006/2098-40.
- [12] Mossfelt L. *Provtagning och mätning av lakvatten från deponier och utfyllnader med avseende på ^{137}Cs* . SSI Dnr 2006/2098-40. December 2006.
- [13] *Statens strålskyddsinstitutets bedömning av krav på utformningen av deponier som innehåller ^{137}Cs -haltiga biobränsleaskor*. 2000-01-17. Dnr 822/172/00.
- [14] Ek B-M och Thunholm B, Östergren I, Falk R och Mjönes L *Naturligt radioaktiva ämnen, arsenik och andra metaller i dricksvatten från enskilda brunnar*. Britt-Marie Ek och Bo Thunholm, SGU, Inger Östergren, Rolf Falk och Lars Mjönes. SSI Rapport 2008:15. April 2008.

-
- [15] Sjöblom R. Radioactive waste in perspective. Properties, volumes and current disposal practices and re-use of residues from thermo-chemical energy production. OECD/NEA in print.
- [16] Sloss L L. Trace elements and fly ash utilisation. IEA Clean Coal Centre, March 2007. ISBN 92-9029-440-X.
- [17] *Understanding variation in partition coefficient, K_d, values. Volume I: The K_d Model, Methods of Measurement, and Application of Chemical Reaction Codes.* United States Environmental Protection Agency, Office of Air and Radiation, Report EPA 402-R-99-004A, August 1999. <http://www.epa.gov/rpdweb00/docs/kdreport/vol1/402-r-99-004a.pdf>.
- [18] *Understanding variation in partition coefficient, K_d, values. Volume II: Review of Geochemistry and Available K_d Values for Cadmium, Cesium, Chromium, Lead, Plutonium, Radon, Strontium, Thorium, Tritium (3H), and Uranium.* United States Environmental Protection Agency, Office of Air and Radiation, Report EPA 402-R-99-004B, August 1999. <http://www.epa.gov/rpdweb00/docs/kdreport/vol2/402-r-99-004b.pdf>
- [19] *Understanding variation in partition coefficient, K_d, values. Volume III: Review of Geochemistry and Available K_d Values for Americium, Arsenic, Curium, Iodine, Neptunium, Radium, and Technetium.* United States Environmental Protection Agency, Office of Air and Radiation, Report EPA 402-R-04-002C, July 2004. <http://www.epa.gov/radiation/docs/kdreport/vol3/402-r-04-002c.pdf>
- [20] Håkansson L, Chairman. *Modelling of the transfer of radiocaesium from deposition to lake ecosystems.* Report of the VAMP Aquatic Working Group Part of the IAEA/EC Co-ordinated Research Programme on the Validation of Environmental Model Predictions (VAMP). IAEA-TECDOC-1143. ISSN 1011-4289. March 2000.
- [21] Håkansson L. *Modelling radiocaesium in lakes and coastal areas – new approaches for ecosystem modellers.* Kluwer Academic Publishers, 2000. ISBN 0-7923-6245-4.
- [22] *Cesium-137 in the environment: radioecology and approaches to assessment and management.* NCRP Report No 164. National Council on Radiation Protection and Measurements. See http://www.ncrponline.org/Press_Rel/Rept_154_press_release.pdf.
- [23] Bergström U, Nordlinder S, Aggeryd I. *Models for dose assessments Modules for various biosphere types.* SKB Technical Report, TR-99-14. December, 1999.
- [24] *Socialstyrelsens allmänna råd om försiktighetsmått för dricksvatten.* SOSFS 2003:17.
- [25] Bergman R, Nylén T, Palo T and Lidström K. *The behaviour of radiocaesium in a boreal forest ecosystem.* FOA Report A 40066-4.3, October 1991. ISSN 0281-0220.
- [26] Forsberg S. *Behaviour of ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr in agricultural soils.* Doctoral thesis. The Swedish University of Agricultural Sciences, Agraris 212, 1999.

-
- [27] Choppin G, Liljenzin L-O and Rydberg J. *Radiochemistry and nuclear chemistry, 3rd edition*. Butterworth-Heinemann, 2002. ISBN 0-7506-7463-6.
- [28] Möre H. Personlig kommunikation.
- [29] Lindeström L. *Falu gruvas miljöhistoria*. Ahlqvist & Wiksell, 2003. ISBN 91-631-3535-3.
- [30] Enghag P. *Encyclopedia of the elements*. WILEY-VCH Verlag GmbH, 2004. ISBN 3-527-30666-8.
- [31] Bentz D, Svensson P, Elert M and Jones C. *Underlag till kriterier för återvinning av avfall i anläggningsändamål*. SGI 2008.
- [32] Sjöblom R. *Underlag för val av referenssubstans för zink inför klassning enligt Avfallsförordningen*. Avfall Sverige. Rapport F2007:03. ISSN 1103-4092.
- [33] Chapman N A and McKinley I G. *The geological disposal of nuclear waste*. Page 81. John Wiley & Sons Ltd 1987. ISBN 0 471 91249 2.
- [34] *Deponering av avfall Handbok 2004:2 med allmänna råd till förordningen (2001:512) om deponering av avfall och till 15 kap. 34 § miljöbalken (1998:808)*. Naturvårdsverket Handbok 2004: 2, maj 2004.
- [35] Lindsay W L. *Chemical equilibria in soils*. The Blackburn Press, 2001. ISBN 1-930665-11-3.
- [36] Bertsch P M and Thomas G W. *Potassium status of temperate region soils*. In Munson R D Editor. *Potassium in agriculture*. Proceedings of an international symposium held 7-10 July in Atlanta, Georgia. American Society of Agronomy, 1985.
- [37] Salomon E. *Availability of potassium to clover and grass from soils with different potassium fertilization histories*. Doctoral thesis. The Swedish University of Agricultural Sciences, Agraris 149, 1999.
- [38] Graf H. *Factors of mica transformation*. In "Potassium in soil". Proceedings of the 9th colloquium of the International Potash Institute held at Landshut / Federal Republic of Germany, 1972. Printed by the International Potash Institute.
- [39] Edvarson K. *Fallout over Sweden from the Tjernobyl accident*. In Moberg L Editor. *The Chernobyl Fallout in Sweden*". The Swedish Radiation Protection Institute, 1991. ISBN 91-630-0721-5.
- [40] *Environmental Consequences of the Chernobyl Accident and their Remediation: Twenty Years of Experience*. Report of the Chernobyl Forum Expert Group 'Environment'. International Atomic Energy Agency, 2006. (Radiological assessment reports series, ISSN 1020-6566) STI/PUB/1239 ISBN 92-0-114705-8.
- [41] Bergman R, Nylén T, Palo T and Lidström K. *The behaviour of radiocesium in a boreal forest ecosystem*. FOA Report A 40066-4.3, October 1991. ISSN 0281-0220.
- [42] Funebo T. *Cesium sorption / Desorption behaviour on soil*. Diploma thesis for the degree of Master of science in Chemical Engineering. Department of Nuclear Chemistry, Chalmers University of technology, Göteborg 1995.
- [43] Möre H. Personlig kommunikation.

-
- [44] Sjöblom R. *Hypoteser och mekanismer för bildning av beläggningar innehållande zink och bly i samband med förbränning av returflis*. Värmeforsk, Miljö- och förbränningsteknik 734. September 2001.
- [45] Steenari B-M. *Chemical properties of FBC ashes*. Doctoral thesis. Department of Environmental Inorganic Chemistry, Chalmers University of Technology. Göteborg, 1998. ISBN 91-7197-618-3.
- [46] Ravila A. *Radiocesium in the forest and forest industry*. Doctoral thesis. Department of Radiation Physics, Lund University Hospital, 1998. ISBN 91-628-3091-0.
- [47] Gustafsson L-G och Refsgaard A. *Datormodeller för förorenings-spridning, fas 2*. Naturvårdsverket, Hållbar Sanering, Rapport 5676, sidan 21. Stockholm, februari, 2007. ISBN 91-620-5676-X.
- [48] Steefel C I. *Reactive transport modeling of multicomponent cation exchange at the laboratory and field scale*. April 1, 2004. Lawrence Berkeley National Laboratory. Paper LBNL-55986. <http://repositories.cdlib.org/lbnl/LBNL-55986>.
- [49] Warrick A W Editor. *Soil Physics Companion*. CRC Press Inc, 2001. ISBN-10: 0849308372 ISBN-13, 978-0849308376.
- [50] Håkansson K, Wik O, Bendz D, Helgesson H och Lind B. *Miljöriktlinjer för nyttiggörande av askor i anläggningsbyggande – del 1*. Miljöriktig användning av askor 879. Oktober 2004.
- [51] Bendz D, Wik O, Elert M och Håkansson K. *Miljöriktlinjer för askanvändning i anläggningsbyggande - etapp 2*. Värmeforsk, Miljöriktig användning av askor 979. Juli 2006.
- [52] Li L, Benson C H and Edil T B. *Assessing Groundwater Impacts from Coal Combustion Products Used In Highways*. Geo Engineering Report No. 05-22. Department of Civil and Environmental Engineering, University of Wisconsin-Madison, Madison, Wisconsin, 53706 USA. December 2005.

Bilagor

A Kompletterande information avseende retentionen för cesium i saltvattenmiljö

Retentionen för cesium i saltvattenmiljö har inte undersökts på något systematiskt och uttömmande sätt i denna rapport. Visst material har dock påträffats och här följer några uppgifter vilka kompletterar dem som ges i Avsnitt 3.5.3.

A.1 Från ”*The surface chemistry of clay minerals*”

Källa: Brady P V and Krumhansl J L. *The surface chemistry of clay minerals*. Från Wingrave J A Editor: Oxide surfaces pp 281 – 301. Marcel Dekker Inc, 2001. ISBN 0-8247-0000-7.

Artikeln (= kapitlet i en bok) refererar undersökningar av retention av cesium i natriumrika vatten, vilka genereras i samband med behandling av kärnavfall. I saltmiljö sorberar leror cesium enligt följande, med de bäst sorberande först: illit, biotit, hydrobiotit, montmorillonit och kaolinit.

För natrium konstaterades att ett linjärt samband föreligger mellan logaritmen för natriumkoncentrationen och logaritmen för fördelningskoefficienten (K_d) för cesium. Generellt sett minskade fördelningskoefficienten med en faktor 70 när natriumhalten i vätskan höjdes från 0,01 molar till 1 molar. Orsaken till detta bedömdes vara ökad konkurrens om platserna för natrium joner på ytorna.

Cesium-137 tas initialt upp på jonbytespositioner i ytorna. Därefter reagerar cesium med lermineral så att det därefter krävs ”extrema åtgärder” (”extreme measures”) för att frigöra cesiumet igen. Här finns således en mycket kraftig hysteresiseffekt. Den snabba processen äger rum över sekunder till timmar medan den långsamma tar dagar och veckor. Den snabba reaktionen påverkas av salthalten i vattnet, men knappast den senare. Detta har tolkats som att den snabba reaktionen äger rum på ytor medan den långsamma resulterar i att cesium hamnar i positioner inne i mineralen med låg energi.

Huruvida laddningsbalansen förekommer i tetraedriska eller oktaedriska skikt har en avgörande betydelse för sorptionen av cesium-137. (Oktaedriska skikt utgör mitt-skikt omgivet av ett tetraedriskt skikt på varje sida i leror med tre (del)skikt). Underskott av positiv laddning i tetraedriska skikt innebär att kalium och cesium binds särskilt starkt medan underskott av positiv laddning i det oktaedriska skiktet inte gör så stor skillnad för sorptionen av kalium, cesium, natrium och kalcium. Av detta skäl kan illit, trots sin lägre jonbyteskapacitet jämfört med andra leror, ändå ha en högre halt kalium än t ex en smektit (montmorillonit tillhör denna klass).

A.2 Från "understanding variation in partition coefficient"

Från: *Understanding variation in partition coefficient, K_d, values. Volume II: Review of Geochemistry and Available K_d Values for Cadmium, Cesium, Chromium, Lead, Plutonium, Radon, Strontium, Thorium, Tritium (3H), and Uranium.* United States Environmental Protection Agency, Office of Air and Radiation, Report EPA 402-R-99-004B, August 1999. <http://www.epa.gov/rpdweb00/docs/kdreport/vol2/402-r-99-004b.pdf>

"D.2.4 Cesium Adsorption onto Mica-Like Minerals"

Cesium adsorption onto mica-like minerals has long been recognized as a non-reversible reaction (Bruggenwert and Kamphorst, 1979; Comans et al., 1989; Cremers et al., 1988; Douglas, 1989; Evans et al., 1983; Francis and Brinkley, 1976; Sawhney, 1972; Smith and Comans, 1996; Tamura, 1972). This is an important property in adsorption reactions because 1 of the assumptions in applying the K_d model to describe adsorption is that the rate at which adsorption occurs is equal to the rate at which desorption occurs. This phenomena is referred to as an adsorption hysteresis. Cesium adsorption onto mica-like minerals is appreciably faster than its desorption. The reason for this is that the cesium ion fits perfectly into the hexagonal ring formed on the tetrahedral sheet in the crystallographic structure of mica-like clays. This perfect fit does not permit other cations that exist at much greater concentrations in nature to exchange the cesium from these sites. This can be demonstrated using the data of Tamura (1972) (Table D.5). He measured cesium K_d values for mica, vermiculite, and kaolinite using a water and 0.1 M NaCl background solution. For mica, the K_d value remained about the same for both solutions. For the vermiculite and kaolinite, the cesium K_d values greatly decreased when the higher ionic strength solution was used. This indicates that the sodium, which existed at 11 orders of magnitude higher concentration than the cesium could out compete the adsorption of cesium on the vermiculite and kaolinite but not on the mica. Another point of interest regarding this data set is that the cesium K_d values do correlate with CEC of these different mineral phases when water is the background solution. However, when the higher ionic strength solution is used, the correlation with CEC no longer exists.

Table D.5. Effect of mineralogy on cesium exchange. [Data are from Tamura (1972) who used an initial concentration of dissolved cesium of 1.67x10⁻¹² M.]

Mineral Phases	CEC (meq/100 g)	K_d in Water (ml/g)	K_d in 0,1 M NaCl (ml/g)
<i>Mica</i>	<i>20</i>	<i>26,000</i>	<i>28,600</i>
<i>Vermicullite</i>	<i>127</i>	<i>52,000</i>	<i>2,700</i>
<i>Kaolinite</i>	<i>11.2</i>	<i>2,500</i>	<i>94</i>

Comans et al. (1989) measured cesium K_d values of a mica (Fithian illite) by desorption and adsorption experiments. Portions of their data are presented in Table D.6. Cesium K_d values based on desorption experiments are appreciably greater than those measure in adsorption experiments."

Här följer tabellen ovan i svensk översättning:

Mineralfaser	Katjonbyteskapacitet (miliekvivalenter/100 g)	Kd i vatten (ml/g)	Kd i 0,1 M NaCl (ml/g)
Glimmer	20	26 000	28 600
Vermikulit	127	52 000	2 700
Kaolinit	11,2	2 500	94

A.3 Från "NMR spin-lattice relaxation study of cesium and sodium adsorbed on illite"

Från: Kim Y and Kirkpatrick J. *NMR T_1 relaxation study of ^{133}Cs and ^{23}Na adsorbed on illite*. American Mineralogist, Volume 83, pages 661-665, 1998.

Notera att cesium-133 och natrium-23 båda är stabila isotoper, samt de isotoper av respektive grundämne som naturligt förekommer i högst halt.

Spin-gitter relaxationstiden T_1 återspeglar utbyteshastigheten mellan olika tillstånd, och mätningar av denna storhet kan därför utnyttjas för att få fram kinetiken.

Undersökningen visar att utbyte med natrium sker snabbt medan det sker långsamt för cesium. Cesium binds preferentiellt till ytorna och mycket starkare än natrium ("strong preference") även vid saltkoncentrationer som uppgår till 0,1 M. Skillnaden består i att natrium binds med sitt hydratiseringsvatten (outer sphere sorption), medan cesium tappar sitt vid absorptionen (inner sphere sorption).

Värmeforsk är ett organ för industrisamverkan inom värmeteknisk forskning och utveckling. Forskningsprogrammet är tillämpningsinriktat och fokuseras på energi- och processindustriernas behov och problem.

Bakom Värmeforsk står följande huvudmän:

- Elforsk
- Svenska Fjärrvärmeföreningen
- Skogsindustrin
- Övrig industri

VÄRMEFORSK SAMARBETAR MED
STATENS ENERGIMYNDIGHET

VÄRMEFORSK SERVICE AB
101 53 Stockholm
Tel 08-677 25 80
Fax 08-677 25 35
www.varmeforsk.se

Beställning av trycksaker
Fax 08-677 25 35