



Deposition av radionuklider

En utredning av metod för insamling av torr- och våtdeposition

CATHARINA SÖDERSTRÖM OCH MIKAEL MEISTER

Catharina Söderström och Mikael Meister

Deposition av radionuklider

En utredning av metod för insamling av torr- och våtdeposition

| | |
|------------------------|--|
| Titel | Deposition av radionuklider – En utredning av metod för insamling av torr- och våtdeposition |
| Title | Deposition of radionuclides – An investigation of methods for collection of dry and wet deposition |
| Rapportnr/Report no | FOI-R--3827--SE |
| Månad/Month | December |
| Utgivningsår/Year | 2013 |
| Antal sidor/Pages | 25 p |
| ISSN | 1650-1942 |
| Kund/Customer | SSM |
| Forskningsområde | 2. CBRN-frågor och icke-spridning |
| FoT-område | |
| Projektnr/Project no | E28290 |
| Godkänd av/Approved by | Nils Olsson |
| Ansvarig avdelning | Försvars- och säkerhetssystem |

Detta verk är skyddat enligt lagen (1960:729) om upphovsrätt till litterära och konstnärliga verk. All form av kopiering, översättning eller bearbetning utan medgivande är förbjuden.

This work is protected under the Act on Copyright in Literary and Artistic Works (SFS 1960:729). Any form of reproduction, translation or modification without permission is prohibited.

Sammanfattning

FOI har på uppdrag av Strålsäkerhetsmyndigheten undersökt om det är möjligt att finna en teknisk lösning för att separera torr- respektive våtdeposition av radionuklider, utan alltför stora ombyggnationer av de befintliga svenska stationerna för insamling av totaldeposition.

Denna rapport redogör för den utredning av metod för insamling av torr- och våtdeposition som utförts, inom vars ram provtagningsförfarandet i några närliggande länder också studerats.

FOI finner sammanfattningsvis att om en fullständig separation av torr och våt deposition är prioriterad måste en ny insamlingsutrustning införskaffas eller utvecklas då ett sådant system inte kan integreras med befintlig stationsutformning. Byte av insamlingsutrustning innebär även att en helt ny insamlingsmetod införs vilket kan försvåra jämförelser med tidigare data.

Alternativt kan befintlig insamlingstratt behållas för insamling av totaldeposition och kompletteras med en yta för torrdeposition. En sådan anordning behöver då konstrueras. Alternativet ger en kontinuitet i mätdata eftersom samma metod som idag används för totaldepositionen, en fullständig separation av torr- och våtdeposition erhålls däremot inte.

Val av system är slutligen beroende av i vilken mån total separation mellan de två depositionstyperna efterfrågas, hur stora ombyggnader av stationerna som anses rimliga samt i vilken mån en kontinuerlig mätserie önskas.

FOI rekommenderar att systemet med jonbytarkolonner för utvinning av deponerade radionuklider behålls men sammansättningen av dessa skulle kunna modifieras.

Nyckelord: nederbörd, provtagning, radionuklider, torrdeposition, våtdeposition

Summary

FOI has been commissioned by the Swedish Radiation Safety Authority to investigate whether it is possible to find a technical solution to separate dry and wet deposition of radionuclides, without major reconstructions of the existing Swedish stations for collection of total deposition.

This report describes the investigation regarding the method of collection of dry and wet deposition that was carried out. Sampling procedures in some neighboring countries has also been studied.

In summary FOI finds that, if a complete separation of dry and wet deposition is a priority, new equipment needs to be acquired or developed since such a system cannot be integrated with existing design of the stations. Change of sampling equipment also introduces a new collection method which might complicate comparison with previous data.

Alternatively, the existing collection funnel is retained for collection of total deposition and complemented with a dry deposition surface. A solution for this method needs to be constructed. This option provides continuity of measurement data since the same method as today is used for collection of total deposition. A complete separation of dry and wet deposition is however not obtained.

The selection of system hereafter depends on the degree to which the total separation of dry and wet deposition is requested. It also depends on how much the stations can be reconstructed and to what degree continuity of measurement data is demanded.

FOI recommends that the system of ion exchange columns for the extraction of deposited radionuclides is retained but the composition of these might need modification.

Keywords: dry deposition, precipitation, radionuclides, sampling, wet deposition

Innehållsförteckning

| | | |
|----------|--|-----------|
| 1 | Inledning | 1 |
| 2 | Provtagningsmetoder i olika länder | 2 |
| 2.1 | Danmark..... | 2 |
| 2.2 | Finland | 2 |
| 2.3 | Frankrike | 3 |
| 2.4 | Norge | 4 |
| 2.5 | Schweiz..... | 4 |
| 2.6 | Storbritannien..... | 4 |
| 2.7 | Sverige | 5 |
| 2.8 | Tyskland..... | 5 |
| 3 | Insamlingsmetoder för torr- och våtdeposition | 6 |
| 3.1 | Förhållandet mellan torr och våt deposition | 6 |
| 3.2 | Utvinning av deponerade nuklider | 7 |
| 4 | Detektionsgränser för deponerade nuklider | 8 |
| 5 | Utformning och möjlighet till modifiering av de svenska stationerna | 9 |
| 5.1 | Modifiering av insamlingsgeometri..... | 9 |
| 5.1.1 | Komplettering med torrdepositionsytta | 9 |
| 5.1.2 | Ny insamlingsutrustning för separerad torr och våt deposition..... | 10 |
| 5.2 | Modifiering av insamlingsmatris..... | 11 |
| 6 | Diskussion | 12 |
| 7 | Slutsats | 13 |
| 8 | Referenser | 14 |
| | Bilaga 1 | 16 |
| | Bilaga 2 | 17 |
| | Bilaga 3 | 18 |

1 Inledning

I Sverige finns fyra stationer för insamling av deposition av radionuklider. Stationerna drivs av Totalförsvarets forskningsinstitut (FOI) på uppdrag av Strålsäkerhetsmyndigheten (SSM). Vid samtliga stationer samlas den totala depositionen in. Ingen separation av torr- och våtdeposition utförs.

FOI har på uppdrag av SSM undersökt om det är möjligt att finna en teknisk lösning för att separera torr- respektive våtdeposition, utan alltför stora ombyggnationer av de befintliga stationerna, samt belyst eventuell problematik förenat med en sådan implementering. Syftet med föreliggande rapport är att sammanställa denna undersökning, där uppdraget mer specifikt har varit att:

- i. Översiktligt beskriva hur övriga nordiska länder hanterar såväl torr som våt deposition av radionuklider inom ramen för nationell strålskyddberedskap, samt;
- ii. Ge förslag på hur de befintliga stationerna kan modifieras för att möjliggöra en kvantifiering av såväl torr som våt deposition av radionuklider. Metoderna ska i möjligast mån vara robusta och enkla samt ge möjlighet till ökad tidsupplösning av när deposition sker.

Ambitionen har varit att i samband med studien i ett vidare perspektiv även undersöka möjligheterna till förändrade insamlingsmetoder och insamlingsmatriser.

Rapporten är upplagd enligt följande: i kapitel 2 beskrivs kortfattat provtagningsförfarandet för rutinmätningar av torr- respektive våtdeposition i några närliggande länder. I förekommande fall beskrivs även metoder som används i beredskapssyfte i händelse av en radiologisk olycka. Kapitel 3 är avsedd som fördjupning och behandlar insamlingsmetoderna i mer detalj samt diskuterar relationen mellan de båda deponeringsmekanismerna. Deponerade radionuklider och dess detektionsgränser behandlas i kapitel 4. Kapitel 5 behandlar utformning och möjlighet till modifiering av de svenska stationerna varefter rapporten avslutas med en diskussion i kapitel 6 och slutsatser i kapitel 7. Rapporten innehåller även tre bilagor, varav den avslutande, ur ett historiskt perspektiv, redogör för insamlingsmetodik, provtagning och analys av deposition i Sverige sedan starten på 1950-talet.

2 Provtagningsmetoder i olika länder

I detta kapitel beskrivs kortfattat provtagningsförfarandet för rutinmätningar av torr- respektive våtdeposition i några närliggande länder. I förekommande fall beskrivs även metoder som används i beredskapssyfte i händelse av en radiologisk olycka.

De provtagningsmetoder som redogörs för i denna rapport baseras främst på inkomna svar på ett frågeformulär som skickats ut till sakkunniga i berörda länder. Frågeformuläret återfinns i bilaga 1, där listas även de aktörer som besvarat frågorna. Även den provtagningsmetod som används i Sverige idag redovisas. I bilaga 2 sammanfattas provtagningsmetoderna i tabellformat och en längre redogörelse av provtagningshistoriken i Sverige återfinns i bilaga 3.

2.1 Danmark

I Danmark har provtagning av deposition utförts sedan 1960-talet. Insamling och analys utförs idag av DTU (*Danmarks Tekniske Universitet*) i Risø och sker vid totalt 11 stationer. Ingen separation av torr- och våtdeposition utförs.

Depositionsprover samlas in från tio platser i landet. På respektive plats finns tre epoxybelagda trattar med total vågrät area 0,42 m² från vilka nederbörden leds ned i plastflaskor. Den insamlade nederbörden slås ihop till årsprov vilka analyseras med avseende på cesium och ⁹⁰Sr.

Vid Risø finns ytterligare en station, här samlas depositionen in med hjälp av en tratt av rostfritt stål med vågrät area 10 m². Regnvattnet får passera en jonbytarkolonn¹ vilken byts ut en gång i månaden. Jonbytarmassan inaskas och analyseras med högupplösande gammaspectrometri.

Vid en beredskapssituation kan analyser med avseende på specifika nuklider, t.ex. plutoniumisotoper, utföras vid behov.

2.2 Finland

Insamling och analys av deposition har utförts av STUK (*Strålsäkerhetscentralen*) sedan 1960-talet [1]. Idag sker depositionsinsamling på nio olika orter. Det finns två typer av insamlingsanordningar varav den ena separerar torr och våt deposition.

Den ena typen finns vid alla nio orter och samlar in totaldepositionen i en konstruktion av rostfritt stål (*Ritva*), se Figur 1, vars övre del består av en tratt med vågrät area 0,07 m². Utrustningen är försedd med en uppvärmningsanordning för att kunna smälta snö. Vid sex av stationerna samlas depositionen in månadsvis och vid tre stationer sker insamlingen under tre månader [2]. Vid slutet av varje insamlingsperiod sköljs tratten ur med utspädd salpetersyra och destillerat vatten vilket senare analyseras tillsammans med den insamlade nederbörden. Vattnet samlas upp i plastflaskor och analyseras, efter indunstning och inaskning, med högupplösande gammaspectrometri samt med avseende på ⁹⁰Sr och för två stationer även med avseende på tritium.

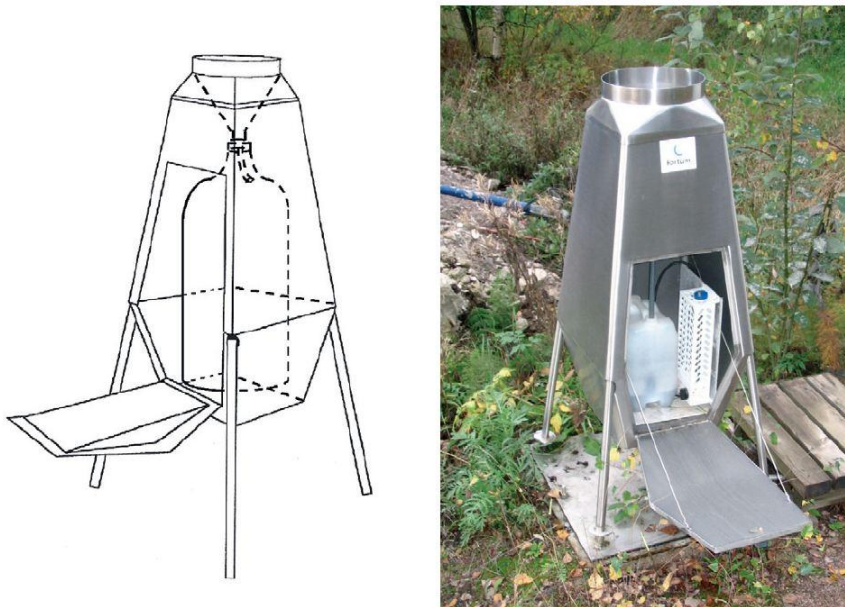
I Helsingfors finns ytterligare en insamlingsanordning (*Pirkko*²) vilken främst är avsedd för beredskapsändamål men som normalt används för rutinövervakning. För rutinmätningar är insamlingstiden en månad. För att separera torr- och våtdeposition är anordningen försedd med en regnsensor och ett lock vilket täcker den ena av trattarna beroende på om det regnar eller ej. Den vågräta arean är 0,5 m² för respektive tratt, dvs. mycket större än de för rutinmätningar (*Ritva*). Våtdepositionen samlas upp i en

¹ Jonbytarmassan består av en blandning av anjon- och katjonmassa.

² Båda insamlingsutrustningarna *Ritva* och *Pirkko* tillverkas av Senya OY (www.senya.fi).

plastbehållare (tratten sköljs ur p.s.s. som för *Ritva*) emedan torrdepositionen tas till vara genom att torka av insamlingsytan med fiberduk fuktad med destillerat vatten.

Vid en beredskapssituation sköljs våtdeponeringstratten ur med ett lösningsmedel med god affinitet för jod och cesium följt av destillerat vatten vilket analyseras tillsammans med den insamlade nederbörden utan förbehandling med högupplösande gammaspektrometri, främst med avseende på jod. Tratten sköljs därefter ur igen med salpetersyra och destillerat vatten, blandas med det tidigare analyserade vattnet, evaporeras och analyseras med högupplösande gammaspektrometri. Torrdeponeringstratten torkas ur med fiberduk, fuktad med samma lösningsmedel för jod och cesium som nämnts ovan, vilken sedan analyseras med högupplösande gammaspektrometri.



Figur 1. Nederbördsinsamlaren Ritva. Från ref [1].

2.3 Frankrike

I Frankrike utförs provtagningen av IRSN (*Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire*). Det finns två typer av insamlingsanordningar varav den ena samlar totaldeposition och den andra endast våtdeposition, se Figur 2. Insamlingen utförs månadsvis för båda typerna.

Totaldepositionen samlas i en tratt av rostfritt stål, med vågrät area 1 m², varefter nederbörden leds ner i en behållare under tratten. Våtdepositionen samlas in i en tratt av polyeten med vågrät area 1 m². Denna tratt är utrustad med ett skjutbart tak som öppnas i händelse av regn.

Varje månadsskifte torkas trattarna ur och sköljs med destillerat vatten varpå nederbördsbehållarna skickas för analys. Vattnet indunstas och analyseras med högupplösande gammaspektrometri. Den torrdeponerade aktiviteten erhålls som differensen mellan aktiviteten i total- och våtdepositionen. Nederbörden analyseras även med avseende på tritium. Vid en beredskapssituation mäts och analyseras vattnet direkt utan indunstning.



Figur 2. Franska nederbördsinsamlare för våt- (vänster) och totaldeposition (höger).

2.4 Norge

I Norge utförs provtagningen av *Statens Strålevern*. Norge har tidigare haft ett program för insamling och analys av både torr- och våtdeposition vilket idag har avvecklats. 2012 startades ett nytt insamlingsprogram för insamling av totaldeposition, vilket för tillfället endast görs i Svanhovd på gränsen till Ryssland.

Samma nederbördsinsamlare som i Finland (*Ritva*) används men med tillägget att en jonbytarkolonn³ monterats under tratten. Efter att nederbörden passerat jonbytarkolonnen samlas den upp i en plastbehållare. Både jonbytmassa och vatten analyseras obehandlade med högupplösande gammaspektrometri.

2.5 Schweiz

I Schweiz utförs provtagningen av FOPH (*Federal Office of Public Health*). Det finns nio stationer för insamling av deposition, vilka främst är lokaliserade till trakterna kring kärnkraftverken. Ingen separation av torr- och våtdeposition utförs.

Nederbörden samlas in i en tratt, försedd med uppvärmningsanordning, med vågrät area 1 m², varefter vattnet leds ner genom en jonbytarkolonn⁴ monterad under tratten [3]. Jonbytmassan byts ut en gång i månaden och skickas till FOPH för analys med högupplösande gammaspektrometri. Analys av alfasönderfallande nuklider utförs årligen av vissa prover.

Specifika torrdeponeringsinsamlingar utförs inte av FOPH. Några av kärnkraftverken samlar emellertid in torrdeposition på specialkonstruerade plattor preparerade med vaselinolja för analys av totalbeta.

2.6 Storbritannien

I Storbritannien utförs provtagningen av HPA (*Health Protection Agency*). Program för insamling och analys av deposition har funnits sedan 1950-talet och idag sker insamling på sju orter. Ingen separation av torr- och våtdeposition utförs.

³ Massan består av en blandning av anjon- och katjonmassa.

⁴ Massan består endast av katjonmassa.

Nederbörden samlas in i polyetentrattar och leds därefter ner i polyetenflaskor. Direkt före utplacering av flaskorna tillsätts dessa ett lösningsmedel som minskar adsorption på flaskans väggar. Insamlingen sker kontinuerligt men skickas med olika tidsintervall till HPA där vattnet evaporeras och analyseras med högupplösande gammaspektrometri. Vissa prover analyseras även med avseende på tritium, ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am samt totalalfa och totalbeta [4].

2.7 Sverige

I Sverige utförs provtagningen av FOI och insamling av deposition sker på fyra platser. Ingen separation av torr- och våtdeposition utförs.

Nederbörd leds via en tratt av rostfritt stål med vågrät area $3,14 \text{ m}^2$ ner genom en jonbytarkolonn⁵ varefter vattnet samlas in i en tunna. Jonbytarkolonnen byts ut varje vecka, varefter fyra veckoprov slås ihop till ett månadsprov för analys. Jonbytarmassan inaskas och analyseras med högupplösande gammaspektrometri. Tidigare analyserades nederbörden även med avseende på ^{90}Sr , vilket emellertid avslutades 2001.

Vid en beredskapssituation kan analysfrekvensen ökas, vilket bl.a. gjordes veckorna efter kärnkraftsolyckan i Fukushima, då nederbördsproven analyserades veckovis [5].

2.8 Tyskland

I Tyskland utförs provtagningen av DWD (*Deutscher Wetterdienst*). Det finns ett fyrtiotal stationer med möjlighet att samla in deposition. Ingen separation av torr- och våtdeposition utförs.

Insamlingssystemet består av ett tråg med vågrät area $0,64 \text{ m}^2$. Tråget är placerat ungefär en meter ovanför markytan och kan vintertid värmas upp med infravärme. Nederbörden samlas upp i en behållare under tråget vilken byts ut dagligen. Om det inte varit någon nederbörd under dygnet samlas torrdepositionen upp genom att skölja tråget med destillerat vatten. Vattnet får sedan indunsta varefter de insamlade dygnsproven slås ihop till ett månadsprov för analys med högupplösande gammaspektrometri.

Vissa prover analyseras med avseende på $^{234,235,238}\text{U}$, $^{238,239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am samt $^{89,90}\text{Sr}$. Utöver detta analyseras vissa dygnsprov även med avseende på totalbeta. I en beredskapssituation slopas indunstningssteget och nederbörden analyseras direkt med högupplösande gammaspektrometri [6].

⁵ Jonbytarkolonnen är tvådelad, en del för anjoner och en för katjoner, och filterförsedd för att effektivt även kunna samla upp partiklar.

3 Insamlingsmetoder för torr- och våtdeposition

Följande kapitel behandlar några frågeställningar rörande insamling och analys av deposition. Detta innefattar förhållandet mellan torr och våt deposition, hur insamlingen av dessa båda skiljer sig åt samt hur deponerade nuklider utvinns.

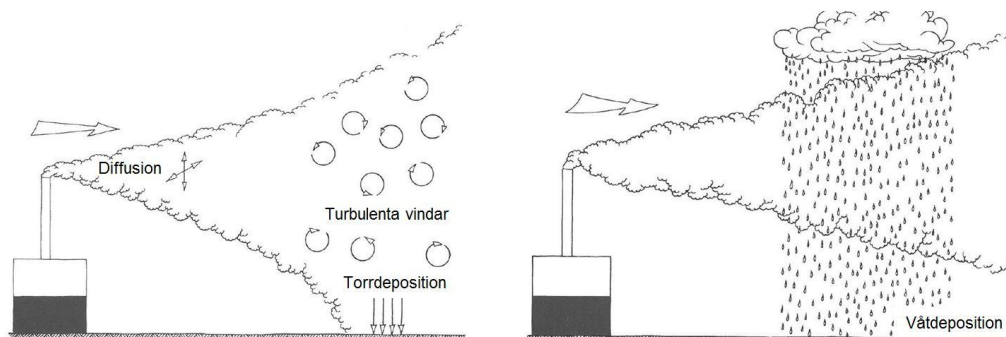
För att kunna separera torr- och våtdeposition krävs en regnsensor och en mekanisk lösning som kan reglera om depositionen under en viss tidsperiod ska samlas in som torr eller våt deposition. Frankrike och Finland är de enda länderna i denna undersökning som skiljer på de båda deponeringsmekanismerna. Övriga länder samlar totaldeposition.

Det franska insamlingssystemet separerar endast ut den våta depositionen medan det finska systemet helt separerar den torra och våta depositionen. För det franska systemet erhålls två prover där det ena endast representerar den våta depositionen och det andra den totala depositionen, den torra depositionen beräknas sedan genom att ta differensen mellan dessa två. För det finska systemet erhålls också två prover varav det ena representerar den torra och det andra den våta depositionen.

För utvinning av insamlade nuklider i depositionen kan olika metoder användas. Danmark, Norge, Schweiz och Sverige använder sig av en metod där regnvattnet får passera genom en jonbytarmassa som sedan analyseras med avseende på innehåll av radioaktiva nuklider. Övriga länder analyserar det insamlade regnvattnet, oftast genom indunstning och mätning av den rest som bildas.

3.1 Förhållandet mellan torr och våt deposition

Torrdeposition uppstår då partiklar berör växter och mark eller då de på grund av sin tyngd faller mot marken. Våtdeposition sker då partiklar i luften binds till regndroppar och faller till marken, se Figur 3. Mängden torrdeposition är i stor utsträckning beroende av depositionsytans beskaffenhet medan detta inte gäller för mängden våtdeposition. Effektiviteten för insamling av våtdeposition är direkt proportionell mot insamlingsytans vågräta area emedan effektiviteten för insamling av torrdeposition snarare är proportionell mot insamlingsytans totala area. Att för torrdepositionen få en insamlingsyta som motsvarar en naturlig yta är knappast möjligt utan förhållandet mellan vald depositionsyta och torrdeposition på en naturlig yta (gräs, skog etc.) fås istället genom att relatera uppmätt deposition till uppmätt beläggning från in situ-mätningar och omgivningsprover [7].



Figur 3. Illustration av torr- och våtdeponeringsmekanismer. Från ref [19].

Olika material kan användas som torrdepositionsyta, vanligast är att använda en plåt eller plastyta, men även andra möjligheter finns. Gummerade filter användes tidigt (under 1950-talet) för att samla deposition, dessa exponerades både för torr och våt deposition [8], även oljebelagda filter för enbart torrdeposition har använts [9]. Torrdeposition kan

också ske på en vattenyta. Om en våt depositionsyta används krävs extra tillsyn, dels på vintern då vattnet kan frysa dels på sommaren då ytan kan torka ut.

Studier har visat att insamling av torrdeposition på en torr yta inte är lika effektiv som insamling på en våt yta. Rosner et al. [10] har påvisat att för en torr insamlingsyta är torrdepositionen av ^7Be ca 25 % av torrdepositionen på en våt yta. Dueñas et al. [11] har studerat totaldeposition och visat att en våt depositionsyta samlar in ungefär dubbelt så mycket ^7Be som en torr insamlingsyta. I Finland ses skillnader mellan depositionen för de stationer som mäter totaldeposition och den station som mäter torr och våt deposition separat. Summan av den torra och våta depositionen är ca 40 % lägre än totaldepositionen [1]. Orsaken till denna skillnad är inte klarlagd.

Huvuddelen av depositionen av stratosfäriskt förekommande radioaktiva ämnen sker i norra Europa generellt som våtdeposition. Den torra depositionen utgör här ca 10 % av den totala depositionen av ^7Be och en tydlig korrelation till total nederbörds mängd kan ses för den totala depositionen av nukliden [1,10,12,13]. Före Tjernobylolyckan 1986 rådde liknande förhållande för ^{137}Cs , eftersom detta deponerats i stratosfären vid de atmosfäriska kärnvapenproven [13]. Efter 1986 har det cesium som detekteras vid de svenska stationerna till största del sitt ursprung i lokal resuspension av nedfallet från Tjernobylolyckan. Det ses bland annat genom att uppmätt deposition i Sverige är högst i Gävle, där nedfallet var störst [14]. Studier i Europa för tiden efter 1986 och fram till idag har visat att den torra depositionen av ^{137}Cs nu står för minst 30 % av den totala depositionen⁶ [1,10]. Ingen korrelation mellan totaldeposition och total nederbörds mängd kan påvisas för cesiumdepositionen [12,13]. För deposition av jod finns det studier som tyder på att den torra depositionen är större än för t.ex. ^{137}Cs , detta kan bl.a. bero på att en del av jodet är i gasfas [15].

3.2 Utvinning av deponerade nuklider

Som tidigare nämnts använder fyra länder ett system med filtrering av regnvattnet genom en jonbytarkolonn för insamling av deponerade nuklider. Övriga länder analyserar hela vattenmängden. I Norge och Danmark används en blandad anjon/katjonbytare, i Sverige används separata anjon och katjonbytare och i Schweiz används endast katjonbytare. I Norge görs mätningar på både jonbytermassan och det insamlade regnvattnet. Ingen förbehandling av jonbytermassan sker innan analys. Även i Schweiz mäts jonbytermassan direkt utan förbehandling, det insamlade vattnet analyseras inte. I Sverige och Danmark inaskas jonbytermassan innan mätning.

Effektiviteten för jonbytermassan som används vid de svenska stationerna utreddes när systemet infördes på 1950-talet och visades vara > 95 % för de nuklider som studerades [7,16]. Några nya studier av effektiviteten har inte återfunnits och inte heller har eventuella förluster vid inaskningsprocessen studerats i någon större utsträckning. Studier av den katjonmassa som används i Schweiz har visat att effektiviteten för denna är mycket hög [3]. Studier av den blandade anjon/katjonmassa som används i Norge har visat att insamlingseffektiviteten för olika nuklider varierar och ligger över 70 % för ett antal relevanta nuklider [17].

Förluster vid inaskning torde vara nuklidberoende och främst beroende av flyktigheten för nukliden. Speciellt av intresse är hur inaskningen påverkar flyktiga nuklider som t.ex. jod. Eftersom jod är en viktig nuklid ur strålskyddssynpunkt blir det här extra viktigt att ha kännedom om eventuella förluster.

För de länder som analyserar hela den insamlade vattenmängden ser analysprocessen något olika ut för respektive land. Insamlad vattenmängd reduceras genom indunstning och nuklider i återstoden utvinns och analyseras. Detta förfarande kräver hantering av stora vattenmängder. Effektiviteten för dessa processer har inte studerats i denna rapport.

⁶ Stora variationer mellan rapporterade värden finns.

4 Detektionsgränser för deponerade nuklider

Detekterade radionuklider i deposition är i stort sett samma nuklider som återfinns i marknära luft. ^7Be är den nuklid som detekteras i högst koncentration men även ^{137}Cs detekteras frekvent i Sverige, dock i lägre koncentrationer. Efter en radiologisk olycka kan även andra radionuklider förekomma i både luft och deposition. En betydelsefull nuklid i sammanhanget är radioaktivt jod.

Den årliga totala depositionen i Sverige av ^7Be är av storleksordningen 500 Bq/m^2 , något varierande över landet med högst deposition i Ljungbyhed och lägst i Kiruna [12]. Med antagande att den torra depositionen är 10 % (se kap. 3.1) motsvarar detta en årlig torrdeposition av ^7Be på ca 50 Bq/m^2 , dvs. ca 4 Bq/m^2 per månad. Detektionsgränsen (MDA) för ^7Be vid ordinarie depositions­mätningar är ca $0,15 \text{ Bq/m}^2$. Torrdeposition på en area motsvarande dagens trattarea skulle därför kunna detekteras vid en insamlings- och mät­effektivitet motsvarande effektiviteten för dagens depositions­mätningar.

Den årliga totala depositionen av ^{137}Cs är betydligt lägre än för ^7Be och var 2012 ca $0,14 \text{ Bq/m}^2$ i Kista och $1,0 \text{ Bq/m}^2$ i Gävle. Med antagande om en torr andel på 30 % av den totala depositionen fås en torrdeposition per månad på ca $0,003$ respektive $0,023 \text{ Bq/m}^2$. Detektionsgränsen för ^{137}Cs vid ordinarie depositions­mätningar är ca $0,004 \text{ Bq/m}^2$. Detta medför att torrdepositionen i Gävle bör kunna detekteras emedan torrdepositionen i Kista ligger nära detektionsnivån för insamling på en yta motsvarande befintlig trattarea.

Efter kärnkraftsolyckan i Tjernobyl 1986 var depositionen av radionuklider mycket stor i Sverige. För vissa områden i Gävletrakten var den totalt deponerade aktiviteten av ^{137}Cs i storleksordningen 10^5 Bq/m^2 , i dessa områden skedde depositionen huvudsakligen som våtdeposition [14]. För de områden där depositionen under den första tiden till största del var torrdeposition, t.ex. Gotland och Stockholm, uppmättes en total deposition av ^{137}Cs under de första fyra veckorna till ca 250 Bq/m^2 [18]. Detta motsvarar ca 10 Bq/m^2 per dygn, vilket är högt över detektionsgränserna enligt ovan.

Efter kärnkraftsolyckan i Fukushima, Japan, i mars 2011 utfördes insamling och mätning av totaldepositionen veckovis under några veckor efter olyckan. Förutom cesium detekterades även jod i depositionsprover från de svenska stationerna. Under perioden uppmättes en maximal total veckodeposition av ^{131}I på 8 Bq/m^2 [5]. Om torrdepositionen även här antas vara 30 % motsvarar detta $2,4 \text{ Bq/m}^2$. Detektionsgränsen för de veckovisa mätningarna var ca $0,1 \text{ Bq/m}^2$ för ^{131}I vilket medför att torrdepositionen skulle kunna ha detekterats med befintlig trattarea.

Detektionsgränsen för respektive nuklid påverkas generellt av insamlingsytans storlek, insamlingseffektiviteten och mät­effektiviteten. En minskad insamlingsyta ger en högre detektionsgräns. Vid införande av en ny utrustning för separat insamling av torr- och våtdeposition kan depositionsytan komma att bli mindre än idag. Med en tiondel av dagens depositionsyta och med samma insamlings- och mät­effektivitet som idag skulle t.ex. en deposition av ^{131}I på 1 Bq/m^2 kunna detekteras. Givet antagandena ovan bör den torra depositionen av ^7Be kunna detekteras i ett månadsprov men inte ^{137}Cs , inte ens i Gävle. För enveckasprov är mängden torrdepositionen av ^7Be nära detektionsgränsen, men jod från Fukushima skulle varit detekterbart.

Vid en eventuell olycka då snabb analys av depositionen av olika nuklider är önskvärd kan jonbytarkolon­nerna bytas oftare än vad som sker idag. För att få en snabbare analys kan jonbytarmassan mätas i ursprungligt skick, dvs. utan inaskning. Detta ger en något sämre mät­effektivitet och därmed högre detektionsgränser, men eventuella osäkerheter i mängden deponerat jod minskar eftersom inga inaskningsförluster fås.

5 Utformning och möjlighet till modifiering av de svenska stationerna

I Sverige finns idag sex filterstationer [5], insamling av deposition sker på fyra av dessa. Samtliga stationer utom den i Ljungbyhed står på inhägnat område. Inget vatten eller avlopp finns indraget till stationen. Lokala stationsoperatörer besöker stationen två gånger i veckan. Stationerna är individuellt utformade och på de ställen där depositionsinsamling sker är tratten en integrerad del av taket, se Figur 4. Insamlad nederbörd passerar igenom en jonbytarkolonn som är placerad under tratten inomhus. Endast totaldepositionen som passerat jonbytaren analyseras och stationsoperatören behöver därför inte regelmässigt tillträde till taket. Trattens yta samt normal nederbörd i Sverige medför att den insamlade regnmängden på en station under en månad ofta överstiger 100 liter med befintlig konstruktion. Skillnaderna i utformning och placering av stationerna gör att en modifiering av insamlingsutrustningen för att kunna separera torr och våt deposition kommer att behöva vara specifik för respektive station. För att få en kontinuitet i mätdata bör de olika förändringssteg som tas undersökas med avseende på dess inverkan på mätresultatet.



Figur 4. Insamlingsstationerna i Gävle (vänster) och Ljungbyhed (höger). Stationen i Gävle är så liten att nederbördstratten upptar större delen av takytan, stationsbyggnaden i Ljungbyhed är drygt dubbelt så stor.

5.1 Modifiering av insamlingsgeometri

För att kunna separera torr och våt deposition krävs en regnsensor som styr på vilken yta deposition ska ske. Att modifiera befintlig tratt med ett flyttbart lock så att endast våtdeposition samlas in kan vara komplicerat på grund av trattens storlek. En möjlighet kan vara att ha kvar befintlig insamlingstratt för totaldeposition och komplettera denna med en mindre yta för torrdeposition. Om fullständig separation mellan torr och våt deposition önskas behöver befintlig insamlingstratt ersättas med en ny modell för separat insamling av torr- och våtdeposition, även här måste insamlingsytan bli mindre.

Det finns därför i princip finns två olika lösningar på hur insamling av torr och våt deposition vid stationerna kan lösas:

1. Befintlig insamlingstratt kompletteras med en torrdepositionsyta.
2. Befintlig insamlingstratt ersätts med en utrustning som kan samla torr och våt deposition separat.

5.1.1 Komplettering med torrdepositionsyta

Den befintliga tratten behålls för att samla totaldeposition och kompletteras med en yta som enbart samlar torrdeposition. Ett lock styrt av en regnsensor täcker torrdepositionsytan vid nederbörd. En lösning för detta behöver konstrueras.

Torrdepositionsytan kan vara en yta av samma material som tratten (rostfritt stål), men annat material kan också användas. Ett enkelt alternativ kan vara att som torrdepositionsyta använda de glasfiberfilter för insamling av luft som redan finns vid stationerna. För att kunna omhänderta deponerade nuklider krävs tillgång till torrdepositionsytan. Att placera denna yta på taket av stationen är därför mindre lämpligt, speciellt bör arbetsmiljöriskerna vintertid beaktas. Användning av ett glasfiberfilter som torrdepositionsyta innebär en relativt enkel hantering då ingen behandling av ytan behöver göras för att samla in torrdepositionen, eftersom hela filtret tas tillvara⁷.

För att totaldepositionen i tratten ska motsvara hela depositionen för perioden krävs att tratten sköljs ur för att få med den torrdeposition som skett sedan senaste regnet. Trattens placering och storlek gör det svårt att säkerställa att detta görs korrekt och en viss osäkerhet fås därför. Ett alternativ är att försumma denna delmängd av depositionen och låta den komma med nästa gång det regnar, på samma sätt som görs idag. Om glasfiberfilter används som torrdepositionsyta är byte av filter den enda extrahantering som krävs vid stationen.

Fördelar:

- Enkel metod som utnyttjar material som redan finns vid stationerna och innebär en mindre del extraarbete för stationsoperatören.
- För totaldepositionen används samma metod som idag vilket gör resultaten jämförbara.

Nackdelar:

- Ingen total separation mellan torr och våt deposition erhålls.
- Olika depositionsytor för insamling av den torra och den våta depositionen kan ge osäkerheter i effektiviteten speciellt då den våta depositionen beräknas som differensen mellan de två uppmätta värdena.
- Kräver en ny konstruktion av torrdepositionsdelen.

5.1.2 Ny insamlingsutrustning för separerad torr och våt deposition

Befintlig insamlingssträtt ersätts med en helt ny insamlingsutrustning för separat insamling av torr och våt deposition. Idealt placeras utrustningen fristående från stationen, på ett tillräckligt avstånd så att stationshuset inte stör insamlingsgeometrin. Eventuellt kan denna utrustning placeras på taket av stationen vilket dock kräver en större ombyggnad. Stationsoperatören kommer regelbundet behöva tillträde till utrustningen för att ta hand om insamlade prover, vilket också gör en takplacering mindre lämplig. Depositionsytorna kan, men behöver inte, vara identiska och även här finns möjligheten att använda glasfiberfilter som torrdepositionsyta. Ingen extra rengöring av våtdepositionsytan behövs eftersom ytan är täckt vid torrt väder.

Fördelar:

- Möjlighet till fullständig separation av torr och våt deposition.
- Samma metod för insamling av den torra och våta depositionen (identiska depositionsytor, såvida inte filter används som torrdepositionsyta).
- Kommersiella utrustningar finns tillgängliga.

⁷ Om ett filter av den typ som idag används för insamling av partiklar i luft nyttjas som torrdepositionsyta fås en total yta av 0,314 m², dvs. ungefär en tiondel av trattytan.

Nackdelar:

- Utrustningen blir fristående och kan inte lätt integreras i dagens design av stationerna.
- Helt ny insamlingsmetod jämfört med dagens metod ger svårigheter att få kontinuitet i mätdata.

5.2 Modifiering av insamlingsmatrix

Som tidigare nämnts kan ett glasfiberfilter användas som torrdepositionsyta, detta medför en enkel hantering eftersom hela filtret tas tillvara. I annat fall behöver ytan antingen torkas av med trasa eller sköljas ur med lämplig vätska för att samla upp torrdepositionen. I det senare fallet kan vätskan passera en jonbytarkolonn. För våtdepositionen innebär användandet av jonbytarkolonner att stora vattenmängder inte behöver hanteras, jonbytarkolonner är därför att föredra framför analys av hela vattenmängder.

Jonbytarmassan i befintliga kolonner består av separata anjon- och katjonbytare samt en filterdel, ingen separat analys av dessa delar sker dock. Det kan därför övervägas att istället övergå till en blandad anjon/katjonbytarmassa, eventuellt behövs fortfarande filterdelen för att fånga upp icke vattenlösliga nuklider. Ett byte av jonbytarmassa skulle underlätta hanteringen i flera steg, både vid preparation av jonbytarkolonnerna och vid homogenisering av provet. Om en ny jonbytarmassa införs bör dess effektivitet för intressanta nuklider utredas.

För att reducera provets storlek före analys och på så sätt få en högre mäteffektivitet inaskas idag hela kolonnens innehåll innan mätning. Eventuella förluster vid inaskningen har inte utretts ordentligt men preliminära studier visar att förlusterna är små för ^7Be och ^{137}Cs , men kan vara större för t.ex. jod (se bilaga 3). Det faktum att jod är en mycket viktig nuklid ur depositionssynpunkt med hänsyn till dess höga dosbidrag samt att jod är relativt lättflyktigt gör att inaskningens påverkan på insamlat jod speciellt bör utredas.

6 Diskussion

Inför ett eventuellt införande av en ny metod för insamling av deposition av radionuklider i Sverige har några olika faktorer studerats.

Några närliggande länder har tillfrågats om vilka metoder som används för insamling och mätning av deposition inom den nationella strålskyddsberedskapen. Svar har erhållits från totalt sex nationer. Tillvägagångssättet skiljer sig relativt mycket och av de tillfrågade länderna är det endast två som idag har möjlighet att skilja på torr- och våtdeposition, övriga samlar endast den totala depositionen. Fyra länder använder sig, helt eller delvis, av jonbytarmassa för utvinning och analys av deponerade nuklider. Övriga länder använder sig av den insamlade vattenmängden för analys.

Mekanismen för torrdeposition är komplex och en viktig parameter att ta hänsyn till vid införande av en ny insamlingsmetod hur en representativ torrdeposition kan erhållas. Utöver detta bör hänsyn tas till i vilken mån förmågan att separera torr- och våtdeposition kan integreras med dagens utformning av insamlingsstationerna samt på vilket sätt deponerade radionuklider ska utvinnas inför mätning.

För separation av torr och våt deposition krävs en regnsensor och en mekanisk lösning som kan reglera om depositionen under en viss tidsperiod ska samlas in som torr eller våt deposition. Insamlingseffektiviteten för den torra depositionen behöver utredas och det bör även undersökas om glasfiberfilter kan användas som torrdepositionsyta.

Sammanfattningsvis kan följande alternativ till insamlingsutrustning övervägas:

1. Befintlig insamlingstratt används för insamling av den totala depositionen och kompletteras med en ny konstruktion för separat insamling av torrdepositionen.
2. Ett nytt system som fullständigt separerar torr- och våtdeposition införs. Systemet placeras lämpligen i direkt anslutning till stationen, men inte i den byggnad som finns idag. Kommersiella system för detta finns, men ett eget system kan även konstrueras.

Alternativ 1 ovan är enklare att integrera med dagens stationer, här erhålls dock inte en total separation av torr och våt deposition. En nackdel är också att de olika depositionsytorna inte blir identiska. Torrdepositionsytan kommer att vara mindre än ytan för totaldeposition vilket medför högre detektionsgränser för torrdepositionen. En fördel är dock att insamlingsmetoden för totaldeposition inte förändras och en kontinuerlig mätserie erhålls därför.

Alternativ 2 är inte integrerbar men här erhålls å andra sidan en fullständig separation av torr och våt deposition och de båda depositionsytorna kan vara identiska. Depositionsytornas storlek kommer att vara mindre än idag vilket medför högre detektionsgränser för båda depositionstyperna. Om fullständig separation är prioriterat är alternativ 2 ändock att föredra, detta också eftersom kommersiella system finns tillgängliga. Alternativet innebär emellertid en helt ny insamlingsmetod vilket kan försvåra jämförelser med tidigare data.

Det skulle vara fördelaktigt att utvärdera både alternativ 1 och 2. Detta kan göras genom att under en period driva insamling med dessa två system parallellt vid en station, förslagsvis i Kista. Oavsett vilket av alternativen ovan som slutligen väljs bör skillnaden mellan nytt och befintligt system klargöras så att nya och gamla mätningar blir jämförbara.

För att ha ett enkelt system för insamling av deposition rekommenderas att systemet med jonbytarkolonner används även fortsättningsvis. Då anjoner och katjoner redan idag analyseras tillsammans bör ett byte av jonbytarmassa från dagens separata jonbytarmassor för an- och katjoner till en blandad an/katjonbytarmassa övervägas. Ett sådant byte skulle underlätta hanteringen i flera steg, både vid preparation av jonbytarkolonner och vid homogenisering av provet. Förluster vid inaskning av jonbytarmassan bör utredas. Då snabb analys behövs, eller om koncentrationen av jod måste bestämmas med hög noggrannhet, kan analys av jonbytarmassan ske utan inaskning.

7 Slutsats

Om fullständig separation av torr och våt deposition är prioriterat behöver en ny insamlingsutrustning införskaffas eller utvecklas då en sådan inte kan integreras i befintlig stationsutformning. Ett byte av insamlingsutrustning innebär även att en helt ny insamlingsmetod införs vilket kan försvåra jämförelser med tidigare data.

Alternativt kan befintlig insamlingstratt behållas för insamling av totaldeposition och kompletteras med en yta för torrdeposition. Denna lösning ger dock inte en fullständig separation av torr och våt deposition, men för totaldepositionen används samma metod som idag vilket ger en kontinuitet i mätdata.

Oavsett val måste tester och pilotstudier utföras vid en station före implementering vid övriga stationer. Under en övergångsperiod kan ett nytt system införas i Kista och när effektivitet och funktion av systemet har utretts konstrueras likadana system för övriga stationer. Val av system är slutligen beroende av i vilken mån total separation av torr och våt deposition efterfrågas.

FOI rekommenderar att systemet med jonbytarkolonner för utvinning av deponerade radionuklider används även fortsättningsvis. Jonbytarkolonnernas sammansättning kan dock förenklas så att an- och katjoner inte separeras. Effektiviteten för jonbytarmassan och eventuella förluster vid inaskning bör utredas.

8 Referenser

- [1] Iisa Outola och Ritva Saxén ”Radionuclide deposition in Finland 1961–2006” STUK rapport, STUK/A253, 2012.
- [2] Raimo Mustonen ”Strålningsövervakning av miljön i Finland, Årsrapport 2012” STUK rapport, STUK/B159, 2013.
- [3] M. Jungck et al., “Determination of radionuclide levels in rainwater using ion exchange resin and γ -spectrometry”, *Journal of Environmental Radioactivity*, vol. 100, pp. 361–365, 2009.
- [4] L. Mitchell “Monitor of radioactivity in air and rainwater in the UK, Annual results report 2009”, HPA/MR/4/6602, Department of Energy and Climate Change, 2009.
- [5] C. Söderström et al., ”Radioaktiva utsläpp från kärnkraftsolyckan i Fukushima Daiichi” FOI rapport, FOI-R-3458-SE, 2012.
- [6] U. Gerstmann et al., ”Überwachung der Radioaktivität des Niederschlags”, LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU, Blatt: LB 3.1.6, augusti 2010.
- [7] K. Edvarson, “A Method for Monthly Collection of Radioactive Fallout”, *Appendix to a report for UN Scientific Committee on the effects of atomic fallout*, UN Document A/AC82/G/R149, 1957.
- [8] K.M. Miller och R. J. Larsen, “The Development of Field-based Measurement Methods for Radioactive Fallout Assessment”, *Health Physics*, vol. 82, no. 5, pp. 609-625, 2002.
- [9] R. S. Cambray et al., “Methods of Collection and Analysis of Radioactivity from Distant Nuclear Test Explosions”, United Kingdom Atomic Energy Authority, Report, AERE – R 5898, 1970.
- [10] G. Rosner och R. Winkler, ”Nuclide-dependent local and collector surface effects in sampling of radioactive deposition to ground”, *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 55, pp. 823-829, 2001.
- [11] C. Dueñas et al., “Effects of collector types in sampling of atmospheric depositional fluxes”, *Journal of Environmental Radioactivity*, vol. 100, pp. 198–202, 2009.
- [12] C. Söderström et al., “Deposition of ^7Be and ^{137}Cs in Sweden 2001 - 2008. With Radionuclides in ground level air in Sweden. Yearly report 2008.”, FOI rapport, FOI-R-2835-SE, 2009.
- [13] G. Rosner et al., ”Continuous Wet-only and Dry-only Deposition Measurements of ^{137}Cs and ^7Be : an Indicator of Their Origin”, *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 47, pp. 1135-1139, 1996.
- [14] L. Moberg, “The Chernobyl Fallout in Sweden”, Swedish Radiation Protection Institute, ISBN 91-630-0721-5, 1991.
- [15] F. R. Livens et al., ”Wet and Dry Deposition of ^{131}I , ^{134}Cs and ^{137}Cs at an Upland Site in Northern England”, *Journal of Environmental Radioactivity*, vol. 16, pp. 243–254, 1992.

- [16] "Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Annex D", UNSCEAR, General Assembly Official Records: Thirteenth session Supplement No. 17 (A/3838), 1958.
- [17] J. Lehto och X. Hou, "Chemistry and Analysis of Radionuclides: Laboratory Techniques and Methodology", Wiley-VCH Verlag & Co., Tyskland, ISBN 3527326588, 2011.
- [18] L.-E. De Geer et al., "Tables and figures from FOA Report C 20629-9.1, Radioactive Particulates in Air and Precipitation in Sweden, Second Quarter 1986" Intern FOA rapport, 1986.
- [19] U. Andersson et al., "Beräkning av utsläpp och stråldoser vid reaktorhaveri" Kompendium för strålskyddsledare, Kärnkraftsäkerhet och Utbildning AB, 1990.

Bilaga 1

Utskickat frågeformulär

Nedan i kursivt återfinns det frågeformulär som skickats ut några närliggande länder. De från respektive nation som besvarat frågorna är: Sven Poul Nielsen (DTU Risø, Danmark), Aleks Mattila och Kaisa Vaaramaa (STUK, Finland), Olivier Masson (IRSN, Frankrike), Finn Ugletveit och Bredo Møller (Statens Strålevern, Norge), Sybille Estier (FOPH, Schweiz), Christoph Wirz (Spiez Laboratory, Federal Office for Civil Protection, Schweiz) samt Axel Dalheimer (DWD, Tyskland) till vilka författarna härmed också vill rikta ett stort tack.

We are considering an upgrade of the Swedish network's method for routine deposition sampling and are therefore interested in the different methods used in other countries for deposition sampling and measurements thereof.

We would thus very much appreciate if you could answer the following questions concerning the methods you currently use for routine deposition sampling:

- *Please describe the sampling method you use for wet deposition sampling (sampler size, material, ion exchange system, etc.)*
- *Please describe the sampling method you use for dry deposition sampling.*
- *How are samples prepared for measurements (drying, ashing, chemical pretreatment, etc.)*
- *How are samples measured?*
- *Which isotopes are analyzed? (Is it primarily gamma-emitters or do you also include pure beta-decaying nuclides such as ^3H , ^{14}C and ^{90}Sr ?)*
- *Are there specific methods to be used for an emergency situation where there can be fresh fall-out?*
- *Are there publications available describing your sampling system and/or results from sampling?*

Regarding question 1 and 2 above we would also like to know whether your system/technique is commercial available or if you constructed the system yourself.

Bilaga 2

Tabell 1: Sammanställning av provtagningsförfarandet för respektive land. En tom ruta innebär att uppgiften inte utförs. Ett streck betyder att informationen saknas.

| | Danmark (Risø) | Finland (STUK) | Frankrike (IRSN) | Norge (Strålevernet) | Schweiz (FOPH) | Storbritannien (HPA) | Sverige (FOI) | Tyskland (DWD) |
|--|--|--|--|--------------------------------------|--|--|---------------------------------------|--|
| Antal stationer | 10 +1 | 9 + 1 | - | 1 | 9 | 7 | 4 | ~ 40 |
| Vågrät insamlingsyta (m²) | 0,42, 10 | 0,07, 0,5 | 1 | 0,07 | 1 | - | 3,14 | 0,64 |
| Separerar torr- våtdeposition | | x | x | | | | | |
| Använder jonbytarmassa | 1 station, blandad anjon- och katjonmassa | | | blandad anjon- och katjonmassa | katjonmassa | | tvådelad anjon- och katjonmassa | |
| Analys av jonbytarmassan | efter inaskning | | | direkt | direkt | | efter inaskning | |
| Analys av vattnet direkt | | | | x | | | | |
| Analys av indunstat vatten | | x | x | | | x | | x |
| Nuklidspecifika analyser utöver högupplösande gammaspectrometri | ⁹⁰ Sr | ⁹⁰ Sr, tritium | tritium | | alfasönderfallande på vissa årsprover | ⁹⁰ Sr, ^{239,240} Pu, ²⁴¹ Am, tritium, totalalfa, totalbeta | | ^{89,90} Sr, ^{234,235,238} U, ^{238,239,240} Pu, ²⁴¹ Am, totalbeta |
| Beredskaps- situation | analys av specifika nuklider kan utföras vid behov | analys av nederbörden direkt utan indunstning | analys av nederbörden direkt utan indunstning | - | - | - | analysfrekvensen kan ökas | analys av nederbörden direkt utan indunstning |

Bilaga 3

Regnprov vid FOI/FOA – kort historik

Inför arbetet med denna rapport har en genomgång av tidigare arbeten och rapporter för insamling och mätning av deposition vid FOA/FOI utförts. Resultatet av denna genomgång redovisas nedan.

Det äldsta dokumentet [1] om regninsamling är från 1956 och redovisar data för deposition i Sverige under perioden 1953-04-15 – 1956-03-01 och torde vara de första mätningarna som görs efter Sieverts mätningar under 1952-53. Insamlingsmetoden är inte beskriven mer än att mätningar av insamlade snö- och regnvattenprover gjorts.

Nästa dokument [2] är också från 1956 och beskriver relativt ingående metoden som används för insamling av radioaktivitet i nederbörd, här används nu en tratt med samma utseende som den som används idag. Fram till januari 1956 samlades vattnet in och avdunstades, återstoden askades in (300-400°C) och mättes. I januari 1956 byttes tekniken till den jonbyttarteknik som används idag. Jonbyttarkolonnen är av samma konstruktion som idag med pappersfiltermassa, anjonbytare och katjonbytare. De olika delarna askas sedan in separat och mäts. Prover tas efter varje regn- eller snöfall. Effektiviteten hos jonbyttarkolonnen har kontrollerats genom att mäta restvattnet och endast några procent av aktiviteten finns kvar i vattnet, sålunda är effektiviteten ca 95 %, inga siffror ges dock. Fördelningen av nuklider i restvattnet är likadan som i provet. För de olika delarna av provet har ⁹⁵Zr/Nb uppmäts i pappersfiltret och anjonbyttaren i ungefär samma mängd, ¹⁴¹Ce och ¹⁴⁴Ce uppmäts nästan endast i pappersfiltret, ¹⁰³Ru i anjonbyttaren och någon mindre del i katjonbyttaren, ¹³⁷Cs huvudsakligen i katjonbyttaren. Detta indikerar att de flesta nukliderna är vattenlösliga.

Ett dokument från 1957 [3] beskriver metoden med filter, anjon- och katjonbytare, dock med en mindre tratt (30 cm diameter) som ska användas för månadsprover, men även 2-meters tratten nämns. Jonbyttarna inaskas vid 600°C, askan urlakas med HNO₃ och halterna av ¹³⁷Cs och ⁹⁰Sr bestäms med ”ordinary radiochemical methods”. Metoden har då använts ett kortare tag och jämförs till en viss del med insamling i stora kärl där vattnet avdunstas och resterna mäts. Preliminära resultat ger att jonfiltrering fungerar lika bra, men inga siffror ges. Det sägs att metoden inte är färdigutvecklad.

Från 1958 finns en amerikansk rapport (HASL) [4] där effektiviteten hos FOA-metoden har undersökts. Aktiviteten i restvattnet var för alla prov < 5 % av den totala aktiviteten och ingen diskriminering av nuklider kunde påvisas. Jämförelse med insamling av hela vattenmängden ger likvärdiga resultat. De olika fraktionerna har också mätts och cerium och andra sällsynta jordartsmetaller återfinns i pappersfiltret, zirkonium, niob och rutenium i anjonbyttaren och cesium, barium och strontium i katjonbyttaren.

Från 1959 finns en sammanställning [5] av de metoder som används för insamling och analys av radioaktivitet i nederbörd, luft, jord och mjölk. Nederbördsinsamling sker enligt detta både med stor och liten tratt och jonbyttarkolonner. Preparation av prover har hittills skett genom inaskning men proverna kommer framöver endast delas upp i de tre fraktionerna och sedan torkas och läggas i plastburkar för mätning.

En rapport från 1967 [6] beskriver också regnmätningssmetoden. Den enda tratt som nämns där är 2 meter i diameter, fortfarande används samma typ av jonbyttare, samt en mobil experimenttratt med namnet ”Johnnie Walker”. Filtren (jonbyttarna) mäts innan preparering i hålkammargeometri. I specialfall delas veckoregnprovet upp i de tre separata delarna och mäts separat. Sedan mäts hela månadens prov, uppdelat på de tre olika delarna och slutligen slås allt ihop och mäts. Ingen inaskning sker. De resultat som redovisas i rapporten är bara för de hela hopsplagna proven och det nämns inte heller något om vad de separata delarna kan ge.

I datarapporten från juli 1975 - juli 1977 [7] beskrivs också metoden. Insamlingsmetoden är densamma som innan men preparationen av jonbytarkolonnerna är annorlunda. Fyraveckorsprover mäts nu, inaskade i 300°C under några dagar. Det främsta skälet för en övergång till inaskning är att en bättre mätgeometri för proverna erhålls, detta sammanfall också med en övergång till HPGe-detektorer från NaI-detektorer. Inaskningen har visats kunna ge förluster av ^{131}I på upp till 30 % men för övriga nuklider är förlusterna < 10 %. Det finns några gamla anteckningar som redovisar mätningar av jonbytare före och efter inaskning, detta är endast studerat för några få prover. Jämförelsemätningarna har inte utförts helt konsekvent, bl.a. har olika detektorer och geometrier använts. Sammanfattningsvis är det bara fyra prover som mätts konsekvent och bara två av dessa innehåller jod, så det statistiska underlaget är dåligt.

Denna metod är i stort sett samma som den som används idag. Jonbytarmassan från fyra prover slås hop till ett månadsprov som inaskas vid 240°C i 48 timmar, askan finfördelas/mals, placeras i en 100 ml burk och mäts sedan under 3-4 dygn med HPGe-detektor.

Referenser

1. Björnerstedt R., Edvarson K., Johansson A., "Det radioaktiva nedfallet i Stockholmstrakten under tiden 15.4.1953 till 1.3.1956", FOA, Dnr. 2237-2092, 1956.
2. Aler B., Björnerstedt R., Edvarson K., Löw K., "Radioactive fall-out from atomic weapon tests", FOA, Dnr. 2582-2092, 1956.
3. Edvarson K., "A Method for Monthly Collection of Radioactive Fallout", Appendix to a report for UN Scientific Committee on the effects of atomic fallout, UN Document A/AC82/G/R149, 1957.
4. Welford G. A., Harley J. H., "A new method for collection of fallout material from nuclear detonations", HASL, 1958.
5. Lindblom G., "Summary of methods used at the Swedish Research Institute of National Defence for collection and analysis of radioactive substances in precipitation, air, soil and milk", FOA, 1959.
6. Lindblom G., "Insamling av radioaktivt stof i luft och nederbörd", FOA rapport D 4023-23, 1967.
7. De Geer L-E., Arntsing R., Vintersved I., Sisefsky J., Jakobsson S. och Engström J-Å., "Particulate Radioactivity, Mainly from nuclear explosions, in air and precipitation in Sweden mid-year 1975 to mid-year 1977", FOA rapport C 40089-T2(A1), 1978.

FOI är en huvudsakligen uppdragsfinansierad myndighet under Försvarsdepartementet. Kärnverksamheten är forskning, metod- och teknikutveckling till nytta för försvar och säkerhet. Organisationen har cirka 1000 anställda varav ungefär 800 är forskare. Detta gör organisationen till Sveriges största forskningsinstitut. FOI ger kunderna tillgång till ledande expertis inom ett stort antal tillämpningsområden såsom säkerhetspolitiska studier och analyser inom försvar och säkerhet, bedömning av olika typer av hot, system för ledning och hantering av kriser, skydd mot och hantering av farliga ämnen, IT-säkerhet och nya sensorers möjligheter.



FOI
Totalförsvarets forskningsinstitut
164 90 Stockholm

Tel: 08-55 50 30 00
Fax: 08-55 50 31 00

www.foi.se