



Migration och vegetationsupptag av radiocesium i åkermark – en långtidsserie av mätdata samt en långsiktig simuleringsmodell

Anna Strömqvist

Handledare: Klas Rosén
Nicholas Jarvis

EXAMENSARBETE, 20 p, D-nivå

Institutionen för markvetenskap
Avdelningen för markkemi och jordmånslära
Examens- och seminariearbeten Nr 67

Uppsala 2005
ISSN 1102-1381
ISRN SLU-MLE-EXS--67--SE

Abstract

The accident in 1986 at the nuclear power station in Chernobyl, Ukraine, dispersed radioactive cesium over large areas of Europe. The half life of ^{137}Cs is 30 years and this radionuclide also behaves like potassium, which means that it can easily be taken up by the vegetation or be adsorbed in to the structure of clays, principally illitic clays. When radiocesium decays ionizing radiation is emitted, which is harmful to humans that are exposed, either directly or indirectly through food intake. It is therefore important to know what happens to the cesium that is dispersed into the environment.

In this project a simulation model was constructed to simulate the adsorption and transport of radiocesium in the soil and plant uptake. The model was parameterized from literature values, measured values, calibration and evaluated using measured data from a field site called Skogsvallen 50 km northwest of Uppsala, where measurements have been taken five times (1987, 1992, 1994, 2000, 2004) since the accidental release of radiocesium 1986. The results regarding transport show that the model works best 1 year after deposition (Model efficiency, EF, 0.77).

The parameters regarding vegetation uptake were more difficult to explain (EF 0.46 as the best). One year after deposition the uptake in reality was large, but it was not possible to include that fact in the model without a large overestimation later on. Some of the measured activity in the upper cm should be classified as activity in the vegetation instead of the soil, because of the root mat, but it is very difficult to separate the many fine roots from the soil. The dense roots at the soil surface could also contribute to less adsorption during the first few years after deposition.

For the whole model, EF was calculated as 0.56. To improve the simulation model, more detailed information about the relation between K_d , clay content and organic matter in the soil profile is desirable.

The investigation of the cesium activity in the soil profile at Skogsvallen 2004 shows that 18 years after the accident, 80% of the total activity still remains in the upper 5 cm of the soil. This means that adsorption to clay minerals is strong. Even if this limits vegetation uptake, it is still important to consider how strongly contaminated soils should be used in the future.

Sammanfattning

Till följd av kärnkraftsolyckan i Tjernobyl, Ukraina våren 1986 spreds stora mängder radiocesium över Europa. På grund av den långa halveringstiden på 30 år för ^{137}Cs , så kommer den isotopen finnas kvar i marken under lång tid. När radiocesium sönderfaller till en stabil slutprodukt sänds joniserande strålning ut, som kan ge upphov till cancerskador hos människor som utsätts för höga stråldoser. Detta kan ske på olika sätt, antingen genom extern bestrålning på kroppen, eller internt genom intag av förorenade livsmedel. Cesium liknar kalium, vilket gör att det lätt kan tas upp av vegetationen och följer med vidare uppåt i livsmedelskedjan. Därför är det viktigt att ta reda på vad som händer med det radiocesium som sprids efter en kärnkraftsolycka.

I detta projekt har en simuleringsmodell konstruerats för att simulera adsorption av radiocesium i lermineral, transport i mark, samt upptag av radiocesium i vegetation. Modellen parameteriserades utifrån litteraturvärden, uppmätta data samt kalibrering. De simulerade värdena från modellen de tjugo närmaste åren efter nedfallet utvärderades mot uppmätta data från fem olika tidpunkter (1987, 1992, 1994, 2000 och 2004). Provtagningsplatsen heter Skogsvallen och ligger fem mil nordväst om Uppsala.

Resultaten visar att modellen fungerar som bäst med avseende på cesiums fördelning i markprofilen ett år efter nedfallet (EF 0,77). Men 8 år efteråt (1994) och 14 år efteråt (2000) var EF-värdena nästan lika höga (EF 0,76 samt 0,75). Vegetationsupptaget av radiocesium i modellen var svårare att beskriva. Det verkliga upptaget var stort året efter depositionen, vilket inte gick att få med i modellen utan en stor överskattning längre fram. Detta kan bero på att aktiviteten i det översta jordskiktet, 0–1 cm räknas till jorden, medan det egentligen till stor del består av aktivitet i rötterna från den täta rotmattan. Det är dock svårt att särskilja rötterna från jorden, vilket vore önskvärt för en förbättring av modellen. EF-värdet var som bäst 0,46 med avseende på vegetationsupptaget.

Det totala EF-värdet för hela modellen är 0,54. För att resultatet ska kunna bli ännu bättre krävs mer detaljerade adsorptionsförsök för att ta hänsyn till varierade lerhalt, mullhalt och Kd-värde i jordprofilen.

Den vegetation som växte på Skogsvallen 1986 finns nu som förna i marken. Aktiviteten i det växtmaterialet har omfördelats i jorden genom biologisk aktivitet, tex genom daggmarskars förflyttning av jord i marken. Även svampmycel har del i translokeringen av cesium i marken. På detta sätt kan man tänka sig en ”biologisk diffusion”, som inte tas hänsyn till i arbetet. Naturen är ett mycket komplext system, som är svårt att beskriva i sin helhet.

2004 års undersökning av cesiumaktiviteten i jordprofilen vid Skogsvallen visar att ca 80 % av den totala aktiviteten i marken finns kvar i den översta horsisonten 0-5 cm. Detta påvisar att adsorption av cesium till lermineral påverkar migrationen i marken starkt. Genom adsorption fastläggs radiocesium i marken så att det inte längre är växttillgängligt. Men eftersom det fortfarande finns kvar i marken är det viktigt att tänka på hur starkt förorenad mark används i framtiden.

1. INLEDNING	5
2. BAKGRUND	6
2.1 FYSIKALISKA EGENSKAPER OCH BEGREPP	6
2.2 STRÅLNING FRÅN RADIOAKTIVA ÄMNEN I MÄNNISKANS OMGIVNING	7
2.3 ARTIFICIELLA KÄLLOR TILL CESIUM I NATUREN	8
2.3.1 Provsprängningar av kärnvapen.....	8
2.3.2 Utsläpp vid kärnkraftverk	8
2.3.3 Utsläppet vid olyckan i Tjernobyl	8
2.4 KONSEKVENSER AV TJERNOBYLOLYCKAN I SVERIGE	9
2.5 VEGETATIONSUPPTAG AV RADIOCESIUM	11
2.6 ADSORPTION AV RADIOCESIUM	12
2.7 MARKFYSIKALISKA MÅTT	14
3. MATERIAL OCH METOD	15
3.1 PLATSBESKRIVNING	15
3.2 FÄLTARBETE	16
3.2.1 Vegetationsprovtagning	16
3.2.2 Jordprovtagning.....	16
3.2.3 Provtagning av jord för adsorptionsförsök.....	17
3.3 LABORATIVT ARBETE	17
3.3.1 Vegetationsprov	17
3.3.2 Jordprov.....	17
3.3.3 Uppställning av adsorptionsförsök	18
3.3.4 Analys av cesiumaktiviteten	19
3.4 BERÄKNINGAR.....	19
3.4.1 Beräkning av adsorptionsvärdet, K_d	19
3.4.2 Beräkning av det viktade mediandjupet och migrationshastigheten.....	20
3.4.3 Beräkning av överföringsfaktorn	20
4. SIMULERINGSMODELLEN	21
4.1 PROGRAMBESKRIVNING	21
4.2 MODELLBESKRIVNING.....	21
4.2.1 Del 1: Huvuddelen av modellen.....	22
4.2.2 Del 2: Diffusion och dispersion.....	23
4.2.3 Del 3: Fastläggning	23
4.2.4 Del 4: Marklösningen och jämviktsadsorption	24
4.2.5 Del 5: Utdata: total aktivitet i jorden.....	24
4.2.6 Del 6: Utdata: växtupptag	24
4.3 MODELLPARAMETERISERING	25
4.3.1 Kända konstanter.....	25
4.3.2 Kalibrering av okända konstanter	26
4.4 MODELLUTVÄRDERING	26
5. RESULTAT OCH DISKUSSION.....	27
5.1 DEPOSITION OCH FÖRDELNING AV RADIOCESIUM I MARKPROFILEN	27
5.2 SORPTIONSFÖRSÖK	28
5.3 SIMULERINGSMODELLEN	29
5.3.1 EF beräkningar.....	29
5.3.2 Adsorption av radiocesium	30
5.3.3 Vegetationsupptag av radiocesium	33
5.3.4 Simulering över 50 år av möjliga scenarier.....	35
6. SLUTSATSER	36
7. REFERENSER	37

1. Inledning

Till följd av kärnkraftsolyckan våren 1986 i Tjernobyl, Ukraina, spreds stora mängder radiocesium över Europa. På grund av den långa halveringstiden på 30 år för ^{137}Cs , så kommer den isotopen finnas kvar i marken under lång tid. När radiocesium sönderfaller till en stabil slutprodukt sänds joniserande strålning ut, som kan ge upphov till cancerskador hos människor som utsätts för höga stråldoser. Händelsen i Tjernobyl är bara en av flera som gett förödande effekter. På flera platser på och omkring Kolahalvön finns flera militärbaser där utbränt kärnbränsle från kärnkraftverk och atomubåtar och annat radioaktivt avfall förvaras under oacceptabla säkerhetsförhållanden, t.ex. i rostiga containrar, fallfärdiga byggnader eller under bar himmel. Svensk kärnbränslehantering International Consultants AB som genom ett avtal med det ryska atomenergiministeriet fått i uppdrag att hjälpa till med saneringen tror att röjningsarbetet kommer att ta flera år.

När radioaktiva ämnen sprids i naturen kan effekterna bli mycket långvariga. Cesium liknar kalium, vilket gör att det lätt kan tas upp av vegetationen. Därför är det viktigt att ta reda på vad som händer med det radiocesium som finns i marken efter depositionen. Åtgärdsplaner bör tas fram för att minimera innehållet i våra livsmedel. Mycket forskning har bedrivits inom området och man har funnit att lerrika jordar, framför allt illit, binder cesium i hög grad, så att det inte längre är växttillgängligt.

I detta projekt har en simuleringsmodell konstruerats för att simulera denna adsorption, samt upptaget av radiocesium i vegetationen vid olika tidpunkter efter ett nedfall. Målet med detta är att på ett enkelt och billigt sätt kunna förutse vad som händer med radiocesium i marken på lång sikt, samt att kunna testa olika scenarier på kort tid utan att det händer i verkligheten. För att göra detta användes jord från en obrukad åkermark (gammal betesvall) utanför Uppsala, (Skogsvallen i Östervåla, Västmanlands län) där mätningar av cesiumaktiviteten i jordprofilen gjorts flera gånger sedan 1987.

De specifika syftena med arbetet var att:

- beräkna migrationsdjupet och migrationshastigheten för ^{137}Cs i marken vid Skogsvallen för år 2004 samt att jämföra dessa uppgifter med resultaten från tidigare provtagningsår
- beräkna överföringsfaktorn för ^{137}Cs från marken till vegetationen vid Skogsvallen år 2004, samt att jämföra denna faktor med resultat från tidigare provtagningsår
- studera adsorptionsstyrkan för ^{134}Cs i lerjord från Skogsvallen, vid olika tidpunkter efter ett simulerat nedfall
- konstruera en simuleringsmodell för att simulera vegetationsupptag och adsorption av ^{137}Cs i lerrick åkermark samt att utvärdera modellen mot uppmätt data.

2. Bakgrund

2.1 Fysikaliska egenskaper och begrepp

Ett radioaktivt ämne är ett ämne vars atomer sönderfaller pga. att dess atomkärnor är instabila. I sönderfallet avges joniserande strålning, som innehåller så mycket energi att elektroner emitteras från molekylerna i det bestrålade materialet (Andersson et al, 2002). Om en vattenmolekyl i en cell i kroppen får energi överförd från joniserande strålning sönderdelas den till två radikaler (H_2O^+ och e^-), som i sin tur reagerar med närliggande molekyler som bryts sönder. Generellt sett är organ uppbyggda av celler som inte delar sig, t.ex. nervceller i det centrala nervsystemet strålningsresistenta, medan celler som kontinuerligt delar sig, tex. celler i benmärgen och tarmen är känsliga för strålning. Vid fosterutveckling är stråldosen som behövs för att påverka cellerna mycket lägre än när det gäller vuxna människor. DNA-molekyler utgör mindre än 1 % av cellens innehåll och är det de som träffas repareras skadan sällan, vilket i många fall leder till celldöd (Johanson, 1996). Skadan kan också omvandla cellen till en tumörcell (cancercell) eller ge upphov till ärftliga skador, om förändringen skett i en könscell (Andersson et al, 2002, ICRP, 1996).

Det finns tre typer av joniserande strålning, alfa-, beta- och gammastrålning. Alfastrålning är heliumkärnor som sänds ut när atomen sönderfaller, de når endast några få cm i luften. Betastrålningen är den vanligaste sortens joniserande strålning och består av elektroner, som når ett tiotal meter i luft och några cm i vävnad. Gammastrålning är, till skillnad från alfa och beta, en elektromagnetisk vågrörelse. Den når flera hundra meter i luft och stoppas endast av ett tjockt skikt betong eller vatten, alternativt 5-10 cm bly. Radiocesium utsänder både beta och gammastrålning (Lederer & Shirley, 1978).

Vid kärnklyvning av uran (^{235}U) och plutonium (^{239}Pu) vid användning av kärnvapen och vid kärnkraftverk är ^{137}Cs en av restprodukterna. Genom att sända ut energirik strålning förändras atomerna till stabila slutprodukter. I 94,6 % av fallen utsänds betastrålning så att en instabil isotop av barium (^{137}Ba) bildas. Den sänder i sin tur ut gammastrålning så att stabilt barium (^{127}Ba) bildas. 5,4 % av fallen utsänder ^{137}Cs betastrålning så att den stabila slutprodukten bildas direkt (se fig 1).

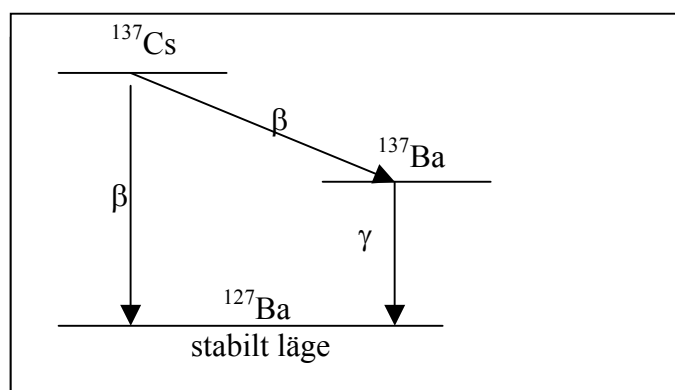


Fig 1. Sönderfallsschema för ^{137}Cs (Modifierad efter Lederer & Shirley, 1978).

Sannolikheten för en kärna att sönderfalla varierar mellan olika ämnen, vilket gör att det tar olika lång tid för olika ämnen att halveras i mängd. Denna tid kallas fysikalisk halveringstid ($t_{1/2}$). För ^{137}Cs är $t_{1/2}$ 30 år och för ^{134}Cs 2,1 år.

Människan kan bli utsatt för strålning på två sätt, det ena är externt, där strålningen kommer från marken utanpå kroppen. I detta fall är alfa och beta strålningen inte så farlig eftersom kläder och skor ger ett bra skydd mot partikelstrålning. Det andra sättet är intern bestrålning där människan fått in radioaktiva ämnen i kroppen, antingen genom att andas in partiklar eller genom intag av förorenade livsmedel. Vid intern bestrålning är framför allt alfa- och betastrålning skadlig eftersom det inte längre finns något som hindrar den joniserande partikelstrålningen från att tränga in i cellerna (Andersson et al, 2002). Därför är det viktigt att ta reda på hur det radioaktiva ämnet, i detta fall ^{137}Cs kommer in i näringskedjan genom växternas ämnesupptag i marken.

Aktiviteten hos ett radioaktivt ämne mäts i Becquerel (Bq), vilket innebär sönderfall per sekund. Stråldos mäts i sievert (Sv) och oftast används mSv. 1 Sv motsvarar 1 Joule/kg kroppsvikt. Förhållandet mellan aktivitet och stråldos är att 80000 Bq av ^{137}Cs motsvarar 1 mSv. Beroende på syftet används olika definitioner på stråldos. Ekvivalent stråldos används som gränsvärden i organ och tar hänsyn till mängden strålningsenergi, samt att olika strålningslag har olika biologisk verkan. Effektiv dos tar dessutom hänsyn till att olika organ är olika strålkänsliga. Den effektiva dosen är inte mätbar, utan kan endast räknas fram (Andersson et al, 2002). Svenska strålskyddsinsitutet, SSI, har satt upp gränsvärden för hur mycket strålning varje individ får utsättas för varje år. För människor som arbetar med strålkällor, som tex inom sjukvården eller på kärnkraftverk är gränsvärdet 50 mSv per person under ett enskilt år, med tillägget att dosen totalt inte får överstiga 100 mSv under fem år i rad. Gränsvärdet för hur mycket strålning kärnkraften får ge övriga befolkningen per år är 1 mSv per person (SSI, 2004).

Livsmedelsverket har i samråd med SSI tagit fram gränsvärden för hur stor aktiviteten av ^{137}Cs får vara i svenska livsmedel. För kött av ren och vilt, insjöfisk, vilda bär, svamp och nötter gäller maximalt 1500 Bq/kg och för övriga livsmedel är gränsvärdet 300 Bq/kg. Det är det totala intaget av radiocesium under en längre tid som avgör vilken stråldos man får. Det är alltså möjligt att någon gång äta mat med hög koncentration radiocesium om intaget annars brukar vara lågt.

2.2 Strålning från radioaktiva ämnen i människans omgivning

Varje år får människan i Sverige i genomsnitt en stråldos på ca 1 mSv, kallad naturlig bakgrundsstrålning. Ungefär hälften av denna kommer från radionuklider i marken, och den andra halvan är kosmisk strålning och strålning från radionuklider i kroppen, främst ^{40}K och ^{14}C (Andersson et al, 2002, Johanson, 1996). Den naturliga bakgrundsstrålningen är en lägre dos än den som förväntats ge en observerbar effekt hos varje enskild människa. Ur strålskyddssynpunkt ger dock även en årlig stråldos på 1 mSv effekt. Statistiskt beräknat ger den stråldosen ca 450 extra cancerdödsfall i Sverige per år. Men, eftersom andelen människor som får cancer varierar stort mellan olika grupper av befolkningen (t.ex. yrkesgrupper, geografiska grupper) så är det dock svårt att påvisa en förhöjning av cancerfall p.g.a exponering av ett visst radioaktivt ämne. (Abramsson-Zetterberg, 2001). Radongas i hus ger i medeltal 2 mSv per person och år och medicinska undersökningar i genomsnitt 0,7 mSv per person och år. Det är dock viktigt att komma ihåg att flertalet människor inte utsätts för någon strålbehandling alls, men att ett mindre antal människor får betydligt mer. (SSI, 2004, Andersson et al, 2002). Den totala genomsnittsdosen av joniserade strålning för svenska befolkningen är 4 mSv per person och år. Av all den strålning från radioaktiva ämnen som befolkningen i Sve-

rige utsätts för så utgör utsläppen från Tjernobyl en liten del, se figur 2 där Tjernobylolyckan ingår i övriga strålkällor.

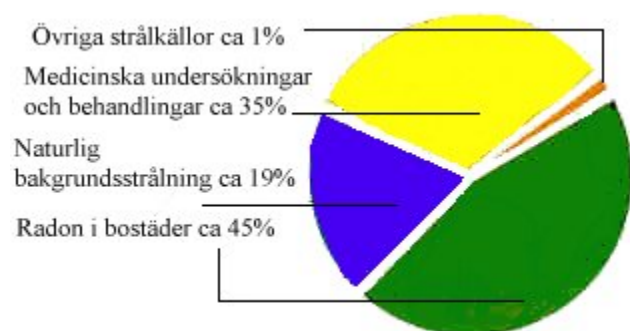


Fig 2. Procentuell fördelning av den årliga stråldosen från olika källor (SSI, 2004).

2.3 Artificiella källor till Cesium i naturen

^{137}Cs är en restprodukt vid kärnklyvningen av uran (^{235}U) och plutonium (^{239}Pu) vid användningen av kärnvapen och i kärnkraftverk. Genom provsprängningar av kärnvapen, olyckor och kontrollerade utsläpp vid kärnkraftverken har det spridits ut i naturen (Forsberg, 2000).

2.3.1 Provsprängningar av kärnvapen

1945 sprängdes de första kärnvapnen på prov i New Mexico, USA. Samma år sprängdes atombomberna över Nagasaki och Hiroshima. Fram till 1963, då depositionen var som störst, genomförde USA, Storbritannien och dåvarande Sovjetunionen 455 bombtest i atmosfären. Frankrike och Kina fortsatte med sina provsprängningar till 1980, då den sista genomfördes av Kina. Sammanlagt sprängdes 528 atombomber, varav 90% i den norra hemisfären (Wright et al, 1999). Totalt spreds 890 PBq ^{137}Cs ut, där depositionen i Sverige var ca 3 kBq/m² som mest (Mattson & Moberg, 1991).

2.3.2 Utsläpp vid kärnkraftverk

I dagens moderna kärnkraftverk är utsläppen av radioaktiva ämnen väldigt små och noggrant kontrollerade (SSI, 2004). Så var det dock inte i början av kärnkraftens historia. Som exempel på det släpptes det ut stora mängder radioaktivt avfall i flytande form från Mayak Production Association till en närliggande flod i södra Sovjetunionen mellan 1949 – 1958. År 1967 spreds radioaktiva ämnen med vinden genom resuspension av partiklar från upptorkade strandkanter i samma område, där sjön använts som lagringsplats för radioaktivt avfall i flytande form (Christenssen et al, 1997).

2.3.3 Utsläppet vid olyckan i Tjernobyl

Fram till idag är olyckan i Tjernobyl 26 april 1986 den största kärnkraftsolyckan i världen. Mycket har dokumenterats om den och dess effekter, både i Sverige och övriga Europa (Johanson, 1996, Moberg, 1991) En härdsmälta och explosion i en reaktor vid kärnkraftverket i Tjernobyl gjorde att en stor del flyktiga radionuklider så som ädelgaser, jod, strontium och

cesium frisläpptes till atmosfären. De höga temperaturerna gjorde att dessa ämnen steg upp till över 1000 m höjd. Moln av radioaktiva ämnen drev sedan med vinden mot nordväst och spreds över västra Sovjetunionen och Europa. Släckningsarbetet var svårt och reaktorn fortsatte läcka ut betydande mängder radioaktiva ämnen fram till den 10 maj. Det första molnet med radioaktivt material nådde Sverige efter två dagar och i vissa områden i Sverige tvättades molnen ur p.g.a att det började regna (Johanson, 1996). Totalt spreds 89 PBq ^{137}Cs och depositionen i Sverige var i medeltal över hela landet 10 kBq/m² (Mattson & Moberg, 1991). I södra Sverige var depositionen endast upp till 5 kBq/m² (Johanson, 1996).

Det finns två olika former av nedfall av radioaktivt material, torrdeposition och våtdeposition. Torrdeposition innebär att radioaktiva partiklar faller till marken på grund av gravitationen eller att de kommer i kontakt med växter och mark och fastnar där. Torrdepositionens storlek beror därför på vilken typ av yta molnet med radioaktiva partiklar passerar. Beroende på växtens form och ytstruktur fångas olika mycket av depositionen upp direkt från luften av växten. Eftersom lavar och mossor har en stor yta ovan jord drabbades rennärningen särskilt av Tjernobylyolyckan (se nedan). Våtdeposition sker när regndroppar tar med sig partiklar från luften till marken. Regnvattnet sköljer även av bladen vilket gör att fler radioaktiva partiklar transporteras direkt ner i marken (Andersson et al, 2002).

2.4 Konsekvenser av Tjernobylyolyckan i Sverige

De områden i Sverige som drabbades värst var stora delar av södra och mellersta Norrland, från norra Uppland och Västmanland upp till och med Västerbotten. Vid områden runt Gävle, Sundvall och Härnösand uppmättes de största nedfallen (se fig 3). Det var den varierande nederbörden som avgjorde hur mycket som deponerades, då vattendropparna tvättade ur molnen med radioaktiva partiklar som föll ned som våtdeposition. I norra Sverige, där de radioaktiva ämnena deponerades på snötäckt mark fick den lokala spridningen större variationer. Koncentrationen ^{137}Cs i svamp, bär och fisk kan variera stort mellan mycket närbelägna platser p.g.a. detta (Sandberg et al, 1996).

Eftersom cesium tas upp av växter på samma sätt som kalium så innebar det att vilda bär, framför allt hjortron, som växer på näringsfattiga marker uppvisade högre koncentrationer av ^{137}Cs än övriga växter. Med samma förklaring hade får och getter, som ofta får beta på näringsfattigare platser, en högre cesiumaktivitet i kroppen jämfört med annan tamboskap. Vidare visade fisk i näringsfattiga sjöar samma resultat, samtidigt som många näringsfattiga sjöar låg i de värst drabbade områdena. Höga koncentrationer uppmättes också i vissa svamparter (Sandberg et al, 1996).

Rennäringen drabbades hårt av olyckan i Tjernobyl. Lav, framför allt renlav, som utgör basfödan för renarna under höst och vinter kan ta upp radiocesium direkt ur luften, vilket gjorde att renarnas intag av radiocesium blev extra stort. Det är främst under hösten och vintern som cesiumhalterna fortfarande är höga. Genom stickprovsmätningar av cesiumaktiviteten med ett handinstrument på levande djur, kan renar med höga koncentrationer radiocesium i kroppen sorteras bort före slakt. Detta gör att andelen kasserade kroppar har minskat. Andra möjligheter är att utfodra med rent foder eller att senarelägga slakten (Åhman, 1994). Det första året efter olyckan utbetalade svenska staten 117 miljoner kr i ersättning till rennäringen. Motsvarande siffra för lantbruket var 210 miljoner kr (Sandberg et al, 1996).

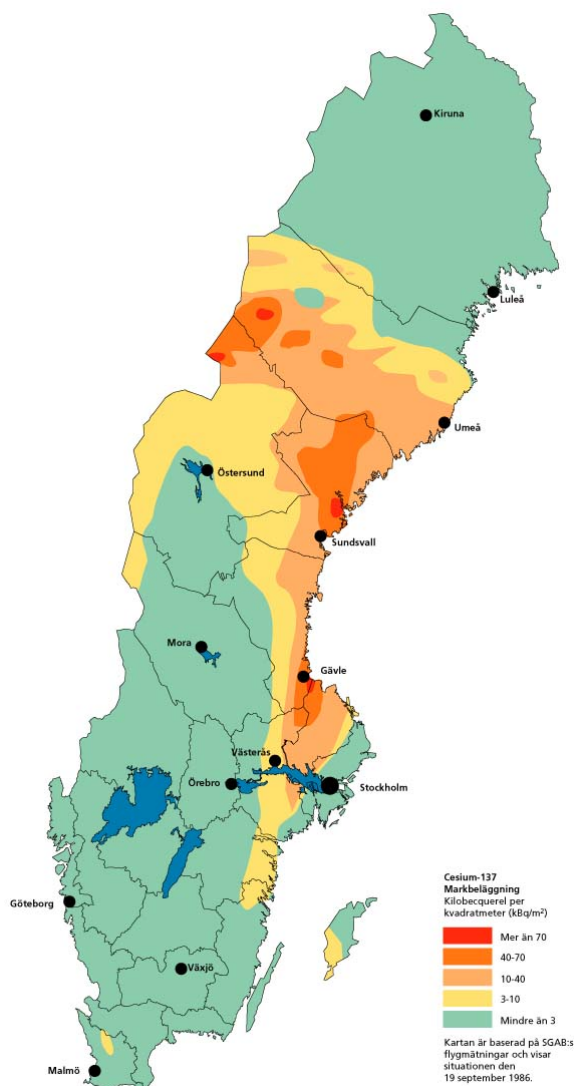


Fig 3. Depositionen av ^{137}Cs i Sverige 1986. Kartan är baserad på SGAB's flygmätningar och visar situationen den 19 september 1986 (Sandberg et al, 1996).

Efter Tjernobylolyckan genomförde SSI och Livsmedelsverket flera så kallade matkorgsundersökningar på olika platser i Sverige, för att se hur stort radiocesium intaget är från livsmedel i handeln. Den senaste gjordes 1994, då var genomsnittsintaget för hela svenska befolkningen 274 Bq per person och år, det högsta intaget var i Vihelmina med 815 Bq per person och år. (Brugård Konde & Becker, 1996) Dessa värden kan jämföras med att 80000 Bq motsvarar 1 mSv.

2.5 Vegetationsupptag av radiocesium

För att förstå radionuklidens rörelse från marken till upptaget av organismer är det viktigt att förstå den kemiska formen av nukliden, dels i vilken form ämnet deponerades och dels hur den binds till det fasta materialet i marken. Bindnings sättet till mineraler påverkar mängden av ämnet i marklösningen. Radionuklider kan ha olika kemiska former i markvätskan, vilket i sin tur påverkar organismens upptagningsförmåga. Cesium finns alltid i jonformen Cs^+ i marklösningen (Hilton & Comans, 2001).

På grund av att alla grundämnen i samma grupp i periodiska systemet har liknande kemiska egenskaper kommer de radioaktiva ämnena in i olika näringskejdor och kretslopp. Eftersom cesiumjonen har samma laddning som kaliumjonen (K^+) följer radiocesium samma kretslopp i jordbruksmiljön som kalium gör. Strontium har ungefär samma egenskaper som kalcium (Andersson et al, 2002).

Om aktiviteten av ^{137}Cs i spannmålskärnor är 1600 Bq/kg kan stråldosen för människan beräknas till 0,02 mSv/kg bröd (effektiv helkroppsdos). Samma stråldos är beräknat att erhållas vid överföring av radiocesium från betesgräs via nötkötts-produktion till människan om depositionen i gräset är 500 Bq/m². Vid båda dessa exempel skulle aktiviteten i brödet/köttet vara 1250 Bq/kg (Andersson et al, 2002).

Det är främst under det första året efter nedfallet som problemen är stora i jordbruket, pga. direktupptaget av radioaktiva partiklar via grödans överjordiska delar. Vid rotupptag blir aktiviteten i växter lägre eftersom radionuklider med kort halveringstid har hunnit sönderfalla i större grad innan rotupptaget sker.

Storleken på upptaget beror även på vid vilken årstid nedfallet sker. Om det är under växtsäsongen kommer en större del av depositionen att tas upp direkt genom bladen. Om nedfallet istället kommer före vegetationsperioden sker störst upptag via rötterna i jorden (Andersson et al, 2002).

Cesium liknar kalium och därför påverkar kaliumhalten i jorden cesiumupptaget (se fig 4) (Coughtrey & Thorne, 1983; Rosén, 1991). En hög kaliumhalt i jorden minskar cesiumupptaget eftersom de båda katjonerna konkurrerar med varandra. Även markens pH påverkar till viss del, ett lågt pH ökar upptaget av radiocesium. Orsaken är att i sura jordar attraheras vätejoner och aluminiumhydroxidjoner starkt av de negativa kolloiderna, så att cesiumjonerna förhindras att komma nära kolloidytorna där adsorptionen kan ske (Brady & Weil, 2002). Halten av organiskt material i jorden har också betydelse. Upptaget av radiocesium är högre på mulljordar eftersom adsorptionen till mullpartiklar är lägre än till lermineral (Johanson, 1996).

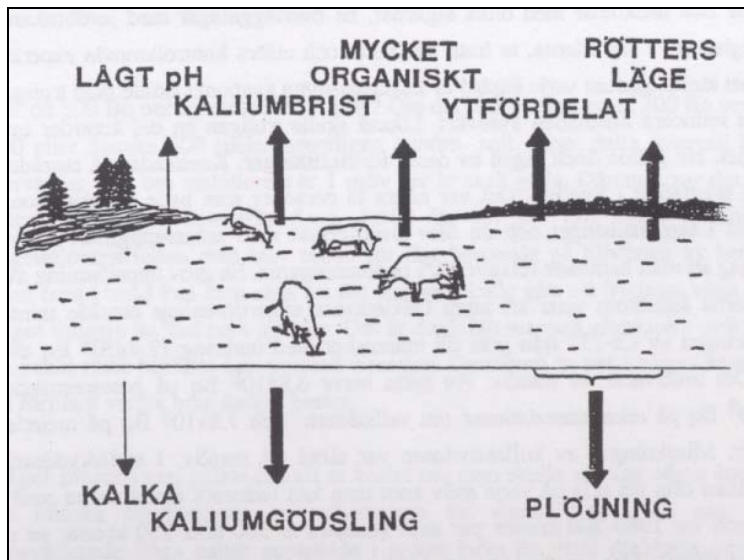


Fig 4. Faktorer som påverkar vegetationsupptaget av radiocesium (Johanson, 1996).

För att kunna få en bra uppfattning av hur mycket radiocesium som tagits upp av vegetationen måste hänsyn tas till storleken på depositionen. Detta är viktigt när olika studier jämförs, eftersom mängden radiocesium som spreds ut varierade mellan olika platser. För att göra detta används en så kallad överföringsfaktor, TF_g (m^2/kg ts) (Eriksson, 1976) som visar förhållandet mellan den uppmätta aktiviteten i vegetationen och den totala depositionen vid nedfallet.

2.6 Adsorption av radiocesium

Att cesium liknar kalium har delvis betydelse för adsorptionen av cesium i marken (Hilton & Comans, 2001).

Illit är en av de dominerande lermineralen i västra Europa (Cremers et al, 1988). Det är ett 2:1 mineral vilket innebär att det består av ett oktaedriskt aluminium-syreskikt insprängt mellan två tetraedriska kisel-syreskikt. I glimmer är 20% av kiseljonerna (Si^{4+}) i de tetraedriska skikten ersatta av aluminiumjoner (Al^{3+}), vilket ger upphov till ett nettoöverskott av negativa laddningar (se fig 5) (Brady & Weil, 2002).

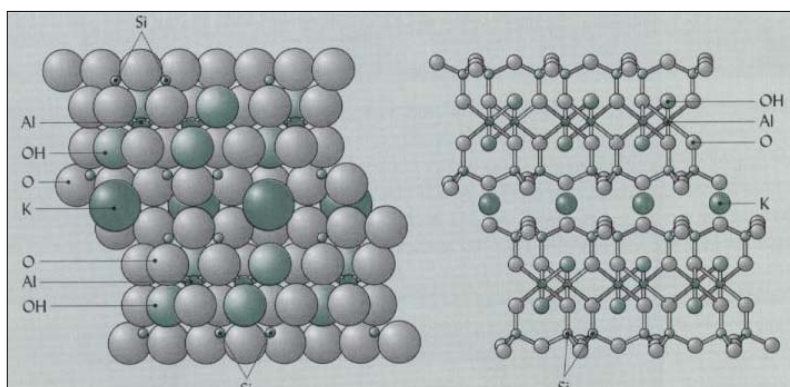


Fig 5. Modell över 2:1 icke expanderande mineral, illit (Brady & Weil, 2002).

Enligt Brouwer et al (1983) finns det tre typer av bindningsplatser för cesium i illit. Den första kallas "Regular Exchange Sites" och är utbytbara bindningsplatser på ytorna av mineralpartiklarna. Där finns även "Frayed Edge Sites", (FES) som är mer specifika bindningsplatser och binder cesium hårdare. "Interlayers" är de plana ytorna inne i illitstrukturen, där cesium vandrar in mellan skikten och fastläggs som starkast. De har hög bindningskapacitet och där tävlar Cs^+ med andra monovalenta joner som t.ex. K^+ , Na^+ och NH_4^+ om bindningsplatserna. Den kemiska sammansättningen av illit ger små kilformade, så kallade hexagonala hål i strukturen, där K^+ har precis rätt storlek för att passa in. Då kommer K^+ riktigt nära minerallets negativa laddningar och jonen neutraliserar mineralet. Sedan sitter kaliumjonen fast där tills den frigörs genom vittring (se fig 6) (Brady & Weil, 2002). Laddade joner är ofta hydratiserade och därmed för stora för att kunna komma in i det lilla utrymmet, t.ex. Ca^{2+} , Mg^{2+} , Sr^{2+} . Cesiumjonen har låg hydrationsenergi vilket innebär att den kan göra sig av med vattenskiktet och binda in i lermineralet, vid FES (Hilton & Comans, 2001). Försök har gjorts för att mäta hur stor andel Cs^+ som adsorberas till de olika bindningsplatserna separat (Cremers et al, 1988).

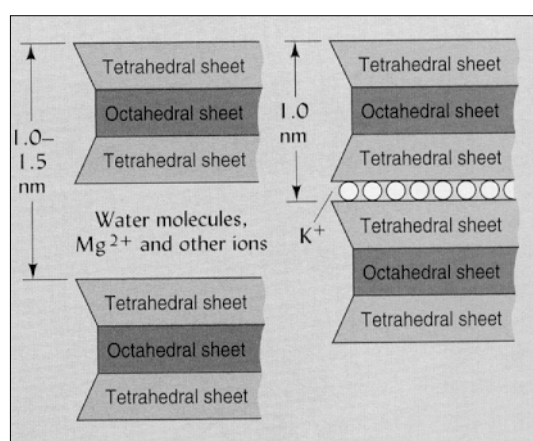


Fig 6. Strukturen hos 2:1 mineral, t.v expanderande vermiculit, t.h icke expanderande illit (Brady & Weil, 2002).

Redan under 1960 och 70-talen när forskning bedrevs i samband med kärnvapen provsprängningarna föddes tanken på att illit fastlägger cesium i marken (Sawhney, 1972). Sedan dess har mycket forskning bedrivits inom det ämnet (Evans et al, 1983, Francis & Brinkley, 1976). Evans et al visar att adsorptionen till partikelytorna sker snabbt. Dock påpekas att förflyttningen av cesium in i lerets mellanlager sker sakta, med tidsordningen dagar, månader och år. I jämförelse med halveringstiden på 30 år och markvattnets rörelse kan fixeringen trots det anses som en ganska snabb process. Comans & Hockley (1992) utvecklade en konceptuell modell kring migrationskinetiken (se fig 7). Konoplev et al (1996) gjorde ett försök till att förbättra deras modell.

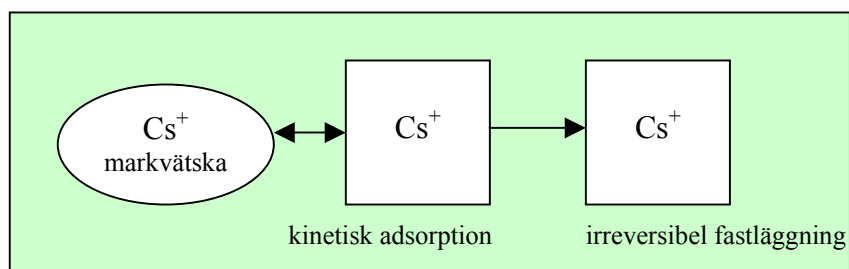


Fig 7. Konceptuell modell av olika pooler i marken för fastläggning av cesium i lermineral (modifierad efter Comans & Hockley, 1992).

Adsorptionsvärdet, K_d (l/kg) är ett mått på förhållandet mellan koncentrationen av ett ämne som jorden adsorberat, s (Bq/kg jord) och koncentrationen av samma ämne i markvätskan, c (Bq/l) (Hilton & Comans, 2001). Låga K_d -värden indikerar att ämnet är svagt bundet i marken och höga värden att mycket adsorberats i jorden:

$$K_d = \frac{s}{c} \quad (1)$$

Detta är den enklaste tillgängliga sorptionsmodellen, som gäller under förutsättningen att alla radionuklider är i jämvikt mellan det fasta materialet och markvätskan. Denna K_d modell är enkel att använda eftersom mekanismerna bakom sorptionen inte behöver vara kända. Ekvation 1 innehåller inte heller någon term för att kvantifiera kapaciteten av tillgängliga adsorptionsplatser. En brist i funktionen är dock att det är fel att anta att K_d -värdet är konstant. K_d för Cesium varierar mellan 100 – 1 000 000 l/kg (Hilton & Comans, 2001). Det är många forskare som observerat att K_d -värdet för cesium ökar med tiden. Detta sker eftersom nukliden rör sig in i mineralet där det inte längre är utbytbar (Evans et al, 1983, Comans et al, 1991). Det är även viktigt att komma ihåg att K_d -värdet för en given jord varierar med förhållandet fast material/vätska. K_d blir lägre vid höga jord/sediment koncentrationer i försöken, men ännu finns ingen accepterad teoretisk orsak till det (Hilton & Comans, 2001).

2.7 Markfysikaliska mått

För att kunna jämföra rörelsen av olika ämnen nedåt i marken mellan olika jordarter används några kvantitativa mått. Ett sådant mått är migrationshastigheten (cm/år), som visar med vilket hastighet det studerade ämnet rör sig nedåt i marken. (Forsberg, 2001, Rosén et al, 1999) Migrationshastigheten kan beräknas genom att använda det viktade medeldjupet och antalet år som gått sedan depositionen. Det viktade medeldjupet är det djup i markprofilen där summan av produkterna av avstånd och aktivitet är lika både närmare markytan och djupare ner i profilen.

3. Material och Metod

3.1 Platsbeskrivning

Provplatsen Skogsvallen ligger i Östervåla, fem mil nordväst om Uppsala i Västmanlands län (60°10'N, 17°11'E). Skogsvallen är en gammal betesvall, som inte jordbearbetats eller gödslats sedan 60- talet. Det är en smal remsa öppen mark som ligger insprängd mellan en skogsbeklädd ås och en moränskog (se fig 8). Under de senaste åren har dock området fått börja växa igen. Ett dike i längsgående riktning delade vallen på mitten. Jorden har tidigare klassificerats som Typic Dystrocrept enligt Soil Survey Staff 1992 och enligt FAO:s system 1988 är det en Dystric Cambisol (Rosén et al, 1999). Den närmaste klimatstationen som SMHI har i området är Tärnsjö och där var årsmedelnederbörden 566 mm under perioden 1961 – 1990 (Alexandersson et al, 1991). Några av jordens egenskaper finns beskrivna i tabell 1 och 2.



Fig 8. Skogsvallen.

Tabell 1. Egenskaper för jorden vid Skogsvallen (Rosén et al, 1999)

horisont	djup (cm)	volymvikt (g/cm ³)	C %	N %	S %	pH (H ₂ O)
Ah1	0-3	0,72	12,70	1,04	0,015	5,2
Ah2	3-5	1,40	3,40	0,33	0,002	5,3
Bw1	5-20	1,32	1,90	0,18	<0,001	4,7
Bw2	20-35	1,37	1,30	0,13	<0,001	6,2
BC1	35-50	1,39	1,30	0,13	<0,001	6,5
BC2	50-75	1,35	0,70	0,09	<0,001	7,4

Tabell 2. Kornstorleksfördelningen (%) i jorden vid Skogsvallen (Rosén et al, 1999)

horisont	djup (cm)	sand 0.06-2 mm	silt 0.002-0.06 mm	lera <0.002 mm
Ah1	0-5	15	43	42
Bw1	5-20	15	42	42
Bw2	20-35	13	40	46
BC1	35-50	12	40	48
BC2	50-75	6	42	52

upp jordprover från 10 till 60 cm djup användes en ultunaborr med diametern 22 mm. De jordpropparna snittades direkt i fält till 2,5 cm långa bitar och de fem från samma huvudområde poolades ihop till ett huvudprov i en uppmärkt plastpåse.

3.2.3 Provtagning av jord för adsorptionsförsök

För att genomföra adsorptionsförsöket togs ytterligare jordprov, från plats A₃. Från en yta av 0,25 m² togs all jord upp mellan 0-5 cm med hjälp av en vass kniv och murarslev och packterades i stora plastpåsar. På samma plats grävdes sedan även jorden upp från 5 till 20 cm djup från en yta av 0,125 m² på samma sätt (se fig 11a och 11b). Vid 20 cm djup urskiljdes horisontgränsen tydligt.



Fig 11a. Jorden från 0 – 5 cm tas upp.



Fig 11b. Jorden från 5 – 20 cm tas upp.

3.3 Laborativt arbete

Växt- och jordproverna togs in till laboratoriet vid institutionen för markvetenskap för fortsatt bearbetning och analyser av ¹³⁷Cs.

3.3.1 Vegetationsprov

Växtproverna torkades i torkskåp vid 50 °C i 84 timmar. Sedan vägdes proverna för att få fram totalvikten torrsubstans. Efter det maldes växtmaterialet i gräskvarn med 2 mm diameter och vägdes upp igen i burkar för mätning av ¹³⁷Cs-aktiviteten.

3.3.2 Jordprov

På laboratoriet förvarades jorden i kylrum vid +2°C för att bevara den naturliga vattenhalten, fram tills den skulle bearbetas. De fem propparna A1, A2, A3, A4 och A5 från det översta jordlagret, 0-10 cm, snittades till 1 cm tjocka skivor som skiktvis poolades ihop till ett huvudprov, A. Dvs. de fem skivorna 0-1 cm från A1, A2, A3, A4 och A5 blev ett huvudprov, A osv. Samma sak upprepades för proverna från plats B och C. Sedan torkades dessa huvudprover i 50°C under minst 67 timmar innan de vägdes och homogeniserades i mortel för hand. Proverna från 10 – 60 cm som snittats och poolats ihop redan i fält, torkades och homogeniserades på samma sätt. Slutligen vägdes alla proverna upp var för sig i burkar för aktivitetsmätning. Totalvikten för varje skikt bestämdes för beräkning av den totala depositionen.

3.3.3 Uppställning av adsorptionsförsök

Jorden för adsorptionsförsöket förvarades med övrig jord i kylrum vid +2°C fram tills bearbetning. På laboratoriet siktades jorden från de två horisonterna i 8 mm såll, där grässvålen, dagmaskar och stenar sorterades bort. Vid behov krossades jordklumparna för hand för att komma igenom sållen. På detta sätt blandades all jord från samma skikt till ett homogent prov. Därifrån vägdes 1500 g upp i en plastback med lock, som förvarades vid +2 °C för att bevara den naturliga vattenhalten. Jorden från de två horisonterna hölls separat för att kunna parameterisera modellen, eftersom adsorptionen förväntades vara olika i de två horisonterna.

I försöket användes isotopen ^{134}Cs , då denna har en kortare halveringstid, $t_{1/2} = 2$ år, jämfört med ^{137}Cs . Detta gör att det inte finns något kvar av det som spreds ut vid Tjernobylyolyckan, d.v.s. bakgrundsvärdet för ^{134}Cs är nära noll. I övrigt beter sig de två isotoperna likadant i jorden (pers komm, Rosén, 2004). ^{134}Cs tillsattes till jorden i de två plastbackarna i en koncentration av 50500 Bq/kg jord utspädd i 70 ml dubbeldestillerat vatten. Detta är 2.5 gånger så mycket ^{137}Cs som deponerades vid Skogsvallen efter Tjernobylyolyckan. Cesiumlösningen tillsattes droppvis och jorden blandades om under tiden. Den kontaminerade jorden förvarades i plastbackar med lock i rumstemperatur. Vid tidpunkterna $t_1 = 1$ dag, $t_2 = 1$ vecka, $t_3 = 4$ veckor, $t_4 = 8$ veckor togs det ut åtta prover á 10 g jord från varje back och i fyra av dem tillsattes 20 ml 0.01 M $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ respektive 1.0 M ammoniumacetat (se fig 12). Jordprover från 0-5 cm djup med tillsats av kalciumnitrat togs även vid $t_5 = \text{nio veckor}$ och $t_6 = 10$ veckor.

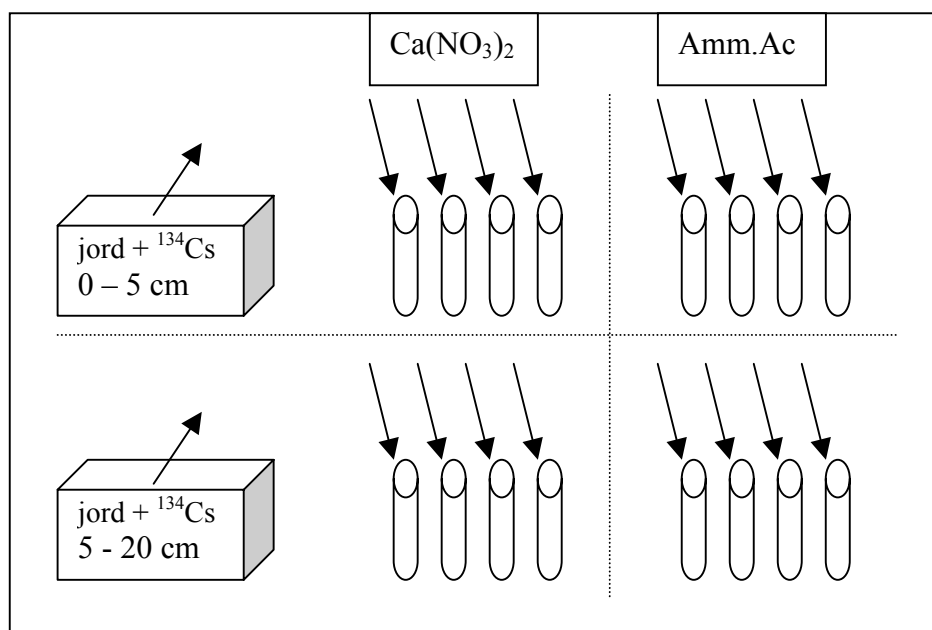


Fig 12. Schematisk skiss över adsorptionsförsökets uppställning.

Kalciumnitrat valdes eftersom det efterliknar marklösningen (Holm et al, 1998). Ammoniumacetat är ett starkare extraktionsmedel som löser ut cesium från Frayed Edge Sites, eftersom NH_4^+ ökar konkurrensen om sorptionsplatser. Koncentrationen av ammoniumacetat som används är vanligen mellan 0.1 M och 1.0 M. Ammonium acetat valdes till adsorptionsförsöket eftersom det ofta har använts som extraktionsmedel i cesiumförsök (Forsberg, 2000).

Proverna skakades 24 timmar innan de centrifugerades för att skilja ut extraktet. Detta sögs upp med engångsspruta och filtrerades sedan genom Acrodisc PF Syringe Filter 0,8/0,2 μm ner i en burk för mätning av ^{134}Cs aktivitet. Den exakta volymen av varje prov togs reda på genom vägning. I fallet med kalciumnitrat antogs den uppmätta aktiviteten i extraktet motsvara mängden cesium i markvätskan (Bq/l), c i ekvation 1. Resterande ^{134}Cs antogs vara kvar fixerat i jorden, motsvarande s , (Bq/kg) i ekvation 1. Varje prov genomfördes med fyra upprepningar för statistiska analyser. Kvarvarande jord lämnades så att ytterligare mätningar kan göras vid senare tillfällen efter projektets slut. Kd-värdet kunde sedan räknas ut med formel 1 och 2.

3.3.4 Analys av cesiumaktiviteten

Aktiviteten av ^{137}Cs samt ^{134}Cs uppmättes med germaniumdetektorer i ett laboratorium med låg bakgrundsaktivitet. Mättiden varierade beroende på hur hög aktiviteten var, med ett minimum på 30 min. Mätfel upp till 10 % accepterades, alternativt mätningar som överskred 12 timmar.

3.4 Beräkningar

3.4.1 Beräkning av adsorptionsvärdet, K_d

För att beräkna adsorptionsvärdet K_d används ekvation 1. För det krävs att både aktiviteten i markvätskan, c , och den adsorberade andelen cesium till jorden, s , är kända. I detta projekt användes uppmätta värden av c från adsorptionsförsöket och uträknade värden för s .

När den adsorberade andelen cesium i jorden är okänd kan den räknas ut enligt:

$$s = A_{tot} - \left(\left(\frac{V_l}{M_j} \right) c \right) \quad (2)$$

där A_{tot} (Bq/kg) är den totala aktiviteten i jorden, V_l (l) är volymen lösning, M_j (kg) är massan jord och c (Bq/l) är aktiviteten i lösningen. För att få fram den exakta volymen av varje prov vägdes de, och massan jord var 10,0 g. För att beräkna s med ekvation 2 användes vid t_1 ett uppmätt referensvärde på A_{tot} , som var medelvärdet av fyra upprepningar. Vid övriga provtagningsstidpunkter beräknades A_{tot} enligt:

$$A_{tot} = A_0 e^{(-\mu t)} \quad (3)$$

där A_{tot} (Bq/kg) är den totala aktiviteten vid en bestämd tidpunkt, A_0 (Bq/kg) är aktiviteten vid t_0 , μ (1/år) är hastighetskoefficienten och t (dygn) är tidsdifferensen mellan t_0 och den bestämda tidpunkten för A_{tot} . Hastighetskoefficienten μ är ett uttryck för halveringstiden:

$$\mu = \frac{\ln 2}{t_{1/2}} \quad (4)$$

där $t_{1/2}$ (år) är den fysikaliska halveringstiden av radiocesium, vilken varierar mellan olika isotoper.

4.3.2 Beräkning av det viktade mediandjupet och migrationshastigheten

Migrationshastigheten räknas ut genom att dividera det viktade mediandjupet med antalet år som har gått sedan depositionen. Det viktade mediandjupet, X (cm) definieras enligt Arapis et al (1997):

$$\sum_{i=1}^n (X - X_i) q_i = 0 \quad (5)$$

där X_i (cm) är avståndet från markytan till mitten av skikt i och q_i är den relativa andelen nuklider i det skiktet. q_i tas fram genom:

$$q_i = \frac{A_i}{A_{dep}} \quad (6)$$

där A_i är aktiviteten (Bq/m²) i skikt i vid provtagningstidpunkten och A_{dep} (Bq/m²) den totala aktiviteten i jorden vid provtagningstidpunkten (Forsberg, 2000) A_{dep} beräknades genom att summera den uppmätta aktiviteten i varje skikt vid de tre provplatserna A, B och C, dividera med provytan och beräkna medelvärdet.

4.3.3 Beräkning av överföringsfaktorn

Överföringsfaktorn TFg (m²/kg ts) (Eriksson, 1976) definieras:

$$TFg = \frac{A_{veg}}{A_{dep}^0} \quad (7)$$

där A_{veg} (Bq/kg ts) är den uppmätta aktiviteten i växtmaterialet och A_{dep}^0 (Bq/m²) den totala depositionen justerad tillbaka till nedfallsdagen, med hänsyn tagen till det fysikaliska sönderfallet. För att beräkna A_{dep}^0 användes

$$A_{tot}^0 = A_{okorr} e^{(-\mu dt)} \quad (8)$$

där A_{tot}^0 (Bq/kg) är aktiviteten vid nedfallsdagen, A_{okorr} (Bq/kg) är uppmätt okorrigerad aktivitet, μ (1/år) är hastighetskoefficienten (se ekvation 4) och dt (dygn) är tidsdifferensen mellan mät datumet och nedfallsdagen. Förhållandet mellan A_{dep}^0 och A_{tot}^0 är:

$$A_{dep}^0 = \frac{A_{tot}^0 m_{prov}}{Y} \quad (9)$$

där m_{prov} (kg) är jordprovets torra totalvikt och Y (m^2) är provytan. I detta projekt beräknades TFg med ett medelvärde av A_{dep}^0 från samtliga års provtagningsresultat.

I simuleringsmodellen relateras aktiviteten i vegetationen till hur mycket radiocesium som är kvar i marken, inte till hur mycket som deponerades vid en viss tidpunkt. Därför beräknas TFg i arbetet, men används inte i simuleringsmodellen.

4. Simuleringsmodellen

4.1 Programbeskrivning

Powersim constructor är ett datorprogram där användaren själv konstruerar sin simuleringsmodell. Detta gör att personen får använda sina egna kunskaper, vilket ger snabb inläring och ökad förståelse för olika händelseförlopp. Programmet simulerar flöden, vilket innebär att det kan användas inom många olika områden, såväl som beslutsunderlag i ekonomiska frågor, som naturvetenskap. Simuleringsmodeller är ett enkelt och billigt sätt att förutsäga följderna av ett visst händelseförlopp. Det ger också möjligheter att enkelt testa olika scenarier på kort tid (Powersim, 2004).

4.2 Modellbeskrivning

Modellens syfte är att simulera vad som händer med radiocesium i marken efter deposition under en lång tid. Med modellens hjälp kan användaren få en ökad förståelse för processer i marken så som växtupptag av radiocesium och adsorption i lermineral. Modellen är en förenkling av verkligheten (se fig 13), men målet var att konstruera den så pass lik naturliga förhållanden att den är användbar (se bilaga 2 och 3 för fullständig modell). Med modellen kan olika händelseförlopp simuleras vilket ger ökade möjligheter att förutsäga händelseförloppet vid eventuella framtida spridningstillfällen för radiocesium.

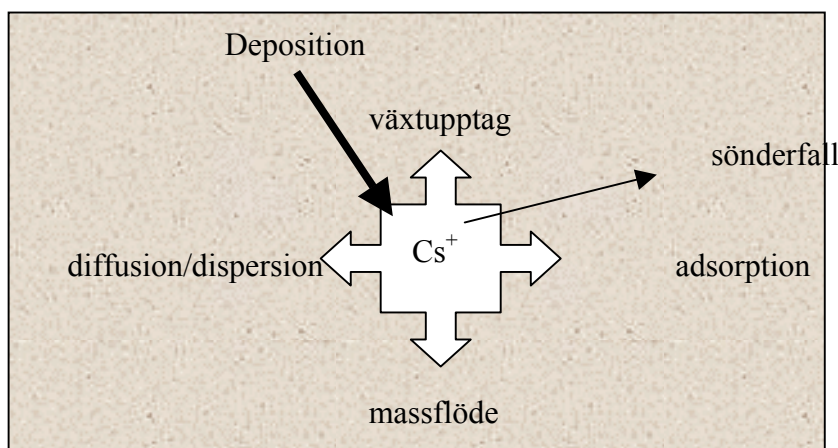


Fig 13. Översiktspild av simuleringsmodellens olika flöden av radiocesium i marken.

Simuleringsmodellen för radiocesium i marken är endimensionell, vilket innebär att den inte tar hänsyn till horisontella transporter av vatten eller radiocesium i marken. Vidare är den konstruerad med ett konstant nedåtriktat vattenflöde, eftersom simuleringarna görs för en lång tid. I följande avsnitt redogörs alla matematiska funktioner som modellen är uppbyggd av, varje del för sig. Samma parameter kan förekomma på flera ställen och då förklaras den enbart första gången. (För en sammanställning av modellens parameterar, dess beteckningar och enheter, se bilaga 4).

4.2.1 Del 1: Huvuddelen av modellen

Transport av radiocesium beräknas med konvektions- dispersionens ekvationen:

$$\frac{\partial(c\theta + f_a\gamma s)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(D\theta \frac{\partial c}{\partial z} \right) - \frac{\partial qc}{\partial z} - \frac{\partial A_{kin}}{\partial t} - S \quad (10)$$

där c (Bq/cm³) är aktiviteten radiocesium i markvätskan, θ är volymetrisk vattenhalt (m³/m³), f_a (enhetslös) är andelen bindningsplatser i jämvikt med lösningskoncentrationen, γ är torra skrymdensiteten (g/cm³), s (Bq/g) är aktiviteten radiocesium adsorberat till jorden. Dessa fem parametrar tillsammans är aktiviteten av det radiocesium som finns i jämviktspoolen, A_{Cs} (Bq/cm²). D (cm²/h) i ekvation 10 är dispersionskoefficienten, t (h) är tiden, z (cm) är skiktjockleken, q (cm/h) är det konstanta vattenflödet nedåt i marken, A_{kin} (Bq/cm²) är en icke-jämviktspool av radiocesium adsorberat till jorden och S (Bq/cm²*h) är det fysikaliska sönderfallet.

Det fysikaliska sönderfallet av radiocesium (nedbrytningen) S , (Bq/cm²*h) definieras:

$$S = (A_{Cs} + A_{kin})\mu \quad (11)$$

där A_{Cs} (Bq/cm²) är aktiviteten av det radiocesium som finns i jämviktspoolen och A_{kin} (Bq/cm²) är aktiviteten av det radiocesium som är adsorberat till jorden.

Hastighetskoefficienten μ (1/år) är definierad i ekvation 4.

4.2.2 Del 2: Diffusion och dispersion

Diffusionen och dispersionen uttrycks av den första delen på högra sidan av ekvation 11.

Dispersionskoefficienten (cm²/h) definieras:

$$D = (\lambda v + D_{diff}) - D_{num} \quad (12)$$

där λ (cm) är dispersiviteten, v (cm/h) är porvattnets medelflödes hastighet, D_{diff} (cm²/h) är diffusionskoefficienten (konstant) och D_{num} (cm²/h) är den numeriska dispersionen, som definieras enligt följande:

$$D_{num} = \frac{v}{2} [dz - vdt] \quad (13)$$

där dz (cm) är skiktjockleken och dt (h) är ett tidssteg i modellen.

Porvattnets medelflödes hastighet, v (cm/h) fås ur sambandet:

$$v = \frac{q}{\theta} \quad (14)$$

4.2.3 Del 3: Fastläggning

Massbalansen för kinetisk fastläggning (Bq/cm³*h) i marken följer Altfelder et al, (2000) och den konceptuella modellen som visas i figur 6, med undantaget att adsorptionen i denna modell inte är irreversibel.

$$\frac{\partial A_{kin}}{\partial t} = \alpha \left((\gamma K d c \partial z) - \frac{A_{kin}}{1 - f_a} \right) \quad (15)$$

där α (1/år) är en transfer-koefficient som visar hur snabbt cesiumaktiviteten når jämvikten mellan den kinetiskt adsorberade poolen A_{kin} (Bq/cm³) och den jämviktsadsorberade poolen (A_{Cs}) (Bq/cm³).

4.2.4 Del 4: Marklösningen och jämviktsadsorption

I jämviktspoolen antas en linjär adsorptionsisoterm så att

$$s = Kdf_{ac} \quad (16)$$

där Kd (cm^3/g) är adsorptionskonstanten och c (Bq/cm^3) är aktiviteten i markvätskan, vilken definieras som:

$$c = \frac{AC_s}{R\theta} \quad (17)$$

där R (enhetslös) är en retardationskoefficient, som visar hur många gånger saktare cesiummolekylerna rör sig jämfört med vattnet. Funktionen för R definieras:

$$R = 1 + \left(\frac{\gamma Kdf_a}{\theta} \right) \quad (18)$$

4.2.5 Del 5: Utdata: total aktivitet i jorden

Den totala aktiviteten radiocesium A_{tot}^{sim} (Bq/kg) är en av de två utdataparametrarna i simuleringsmodellen. Definitionen är:

$$A_{tot}^{sim} = \frac{(AC_s + A_{kin})1000}{\gamma} \quad (19)$$

där enheten omvandlas från Bq/g till Bq/kg med faktor 1000 för att kunna jämföras mot uppmätt data.

4.2.6 Del 6: Utdata: växtupptag

Den andra utdataparametern är växtupptaget, som byggs upp av några andra funktioner.

Det antas i modellen att rotfördelningen $r(z)$ (enhetslös) är logaritmiskt avtagande med djupet:

$$r(z) = \beta \left(\frac{dz}{z_r} \right) e^{-\beta \left(\frac{z_{med}}{z_r} \right)} \quad (20)$$

där β (enhetslös) är en rotfördelningsfaktor, z_{med} (cm) är medeldjupet av varje skikt och z_r (cm) är rotdjupet.

Aktiviteten i vegetationen, A_{veg}^{tot} (Bq/kg) i modellen definieras som:

$$A_{\text{veg}}^{\text{tot}} = \int_0^{z_r} cr(z)R_u \quad (21)$$

där R_u är konstant rotupptag (cm^3 vatten/kg vegetation). Detta gäller under antagandet att inget radiocesium transporteras bort från platsen på någon sätt, som tex skörd av vegetation eller bete av mjölkkor. Eftersom Skogsvallen är en orörd vall antas antagandet vara uppfyllt för provplatsen.

4.3 Uppmätta data för kalibrering och test av modellen

Modellen har kalibrerats och testats mot uppmätta data från tidigare provtagningar av jord (se bilaga 2) och vegetation (se tabell 6) från Skogsvallen. Provtagningar har gjorts 1987, 1992, 1994 (Rosen et al, 1999) och 2000 (Hermansson, 2001). Utöver det har prover tagits 2004 i detta projekt. Cs deponerades på provplatsen i maj 1986 som en följd av reaktorolyckan i Tjernobyli.

4.4 Modellparameterisering

I detta avsnitt presenteras värden för alla konstanta parametrar i simuleringsmodellen.

4.4.1 Kända konstanter

I modellen används den fysikaliska halveringstiden ($t_{1/2}$) för ^{137}Cs som är 30,1 år. Årsmedelnederbörden vid den av SMHI's klimatstationer som ligger närmast Skogs-vallen (Tärnsjö) är 566 mm (Alexandersson 1991). Avdunstningen uppskattades till 400 mm/år vilket ger ett nettoöverskott av 166 mm vatten, som antas infiltrera i marken, som ett konstant nedåtriktat flöde (q). Den totala depositionen av ^{137}Cs i modellen är $90,1 \text{ kBq/m}^2$, vilket är ett medelvärde av summan av den uppmätta aktiviteten i en jordprofil från samtliga års undersökningar. Skiktjockleken (dz) i modellen följer den skiktning av jorden som gjordes vid provtagningarna, dvs de översta 10 skikten är 1 cm tjocka och resterande skikt är 2,5 cm. Eftersom modellen beräknar cesiumaktiviteten för varje skikt krävs även indata därefter. Skrymdensiteten i modellen har därför beräknats per cm (0-10 cm) och sedan för varje 2,5 cm skikt (se bilaga 2) till skillnad från de värden som redovisas i tabell 1.

Modellen beräknar ett värde för varje timme i simuleringen, därför är tidssteget (dt) 1 h. Att vattenhalten (θ) i marken varierar påverkar inte transport eller fastläggning av cesium så mycket, (pers.komm, Jarvis, 2004) därför är den satt till konstant 30 % i modellen. Dispersiviteten (λ) antas vara 3 cm och diffusionskoefficienten (D_{diff}) $0.015 \text{ cm}^2/\text{h}$. Rotdjupet (z_r) vid Skogsvallen är 75 cm (Rosén et al, 1999), men eftersom mätningarna går ner till 60 cm sattes rotdjupet i modellen till 60 cm. Rotfördelningsfaktorn (β) är 5.

4.4.2 Kalibrering av okända konstanter

Kd-värdet antogs till 7000 l/kg utifrån resultaten av mätningarna av aktiviteten i 0-5 cm skiktet med CaNO₃. Genom att kalibrera modellen mot mätningarna av Kd-värdet vid olika tidpunkter togs α och f_a fram, till 0,1/dygn respektive 0,6. Dessa värden stämde dåligt överens med uppmätta värden av cesiumaktiviteten i marken. När ett mindre värde på α valdes istället så blev modellen mer rättvisande, då är Kd-värdet 7000 l/kg inte längre jämviktsläget utan en punkt i en långsam ökning uppåt.

Eftersom utdata-parametern ”total aktivitet Cs i jorden” inte påverkas av den okända parametern rotupptag var det ändå möjligt att ta fram bästa möjliga α och f_a . Genom ett antal simuleringar med α och f_a i olika kombinationer och beräkning av modellens effektivitet (se följande stycke) vid utdata-parametern ”total aktivitet Cs i jorden”, kunde α och f_a istället bestämmas till 0,000005/dygn respektive 0,05.

Parametern som styr rotupptaget av radiocesium saknade direkta mätningar, så rotupptaget fick kalibreras fram genom att jämföra simuleringsresultat med den uppmätta aktiviteten ¹³⁷Cs i vegetationen (se tabell 6). Även här beräknades modellens effektivitet och på så sätt kunde konstanten för rotupptag bestämmas till 35000 cm³ vatten/kg vegetation.

4.5 Modellutvärdering

För att få en uppfattning om hur nära verkligheten simuleringsmodellen ligger, behöver den jämföras med uppmätta värden på ett statistiskt sätt. För att göra det användes EF-metoden. EF är förkortningen för ”model efficiency”, vilket är ett mått på modellens effektivitet och definieras:

$$EF = \frac{\sum_{i=1}^n (O_i - \bar{O})^2 - \sum_{i=1}^n (P_i - O_i)^2}{\sum_{i=1}^n (O_i - \bar{O})^2} \quad (22)$$

där O_i är observerade värden, \bar{O} är medelvärdet av observationerna, P_i är simulerade värden och n är antalet observationstillfällen. Det maximala värdet på EF är ett. Ett bra värde är så nära ett som möjligt, men i praktiken blir det aldrig exakt ett, eftersom modellen då skulle vara perfekt. Om EF-värdet är negativt betyder det att modellen är sämre än att använda medelvärdet av de uppmätta värdena (Loague & Green, 1991). De utdata i simuleringsmodellen som jämfördes med uppmätta värden var växtupptag (Bq/kg) samt total mängd cesium i jorden (Bq/kg). EF beräknades med logaritmen av dessa värden för att alla punkter skulle väga lika. EF-värden beräknades för växtupptaget och den totala aktiviteten i marken separat, sedan beräknades medelvärdet av dessa, som ett totalt mått på modellens effektivitet.

5. Resultat och diskussion

5.1 Deposition och fördelning av radiocesium i markprofilen

Den totala depositionen ^{137}Cs vid Skogsvallen 2004 räknades ut till 81 kBq/m^2 . Det viktade mediandjupet är 6 cm. Migrationshastigheten beräknas för det avstånd som det viktade mediandjupet har förskjutits nedåt sedan förra provtagningstillfället år 2000, vilket ger hastigheten $0,73 \text{ cm/år}$ (se tabell 3). För aktivitetsfördelningen i jordprofilen över djupet med tiden, se figur 14.

Tabell 3. Sammanställning över den totala depositionen, viktat mediandjup samt migrationshastigheten för Cs vid Skogsvallen för samtliga provtagningsår

år	tot Dep ^c (Bq/m ²)	viktat mediandjup (cm)	Migrationshastighet (cm/år)	antal prov
1987 ^a	91 300	0,6	0,6	15
1992 ^a	94 780	0,9	0,06	15
1994 ^a	92 570	2,3	0,7	15
2000 ^b	90 760	3,1	0,13	15
2004	80 989	6,0	0,73	15
medel	90 080			

^a uppgifterna är hämtade från Rosén et al 1999. ^b uppgifterna är hämtade från Hermansson 2001. ^c den totala depositionen är tillbakaräknad till nedfallsdagen 1 maj 1986 med hänsyn till det fysikaliska sönderfallet.

Den totala depositionen angivet för varje provtagningsår, borde teoretiskt vara lika, eftersom alla provtagningar gjorts ungefär på samma plats på fältet. I denna studie 2004 fick provtagningsmetodiken ändras, vilket gjorde att plats C hamnade längre norrut jämfört med tidigare provtagningar. Detta är en orsak till att den beräknade totala depositionen under 1986 varierar mellan provtagningsåren (se tabell 3).

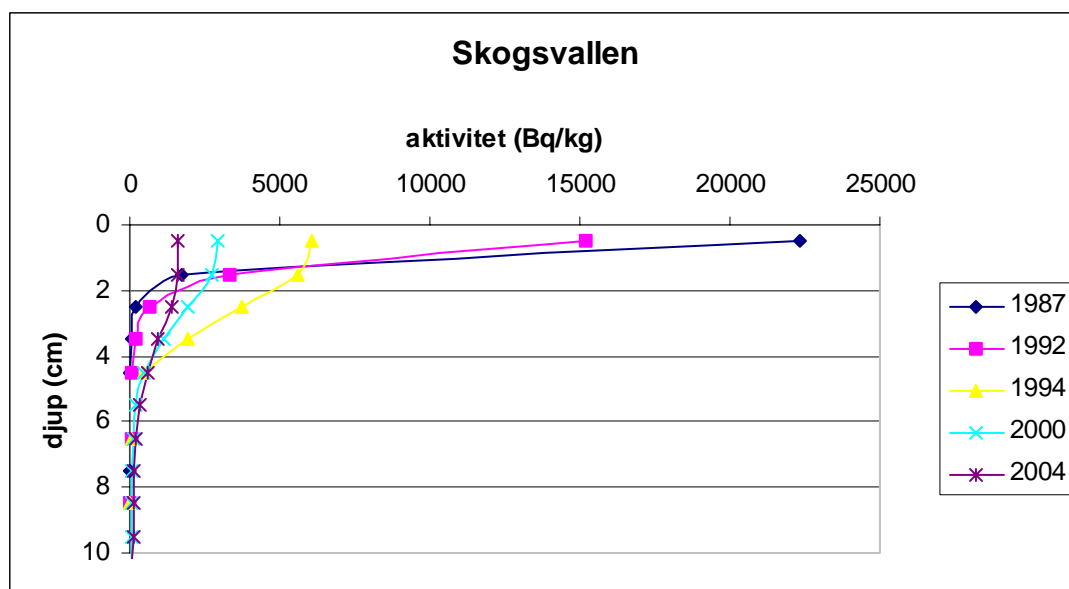


Fig 14. Aktivitetsfördelning av ^{137}Cs (Bq/kg) i jordprofilen vid Skogsvallen 1987-2004 (för mätvärden se bilaga 1).

Överföringsfaktorn, TF_g för vegetationen år 2004 var $0.05 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{kg ts}$ beräknat med medelvärdet av den totala depositionen från de fem undersökningsåren. Detta innebär en minskning jämfört med tidigare år, (se tabell 4) vilket är rimligt eftersom upptaget till vegetationen avtar med tiden.

Tabell 4. Sammanställning av överföringsfaktorn och aktiviteten i vegetationen vid Skogsvallen, samtliga provtagningsår

år	$TF_g \cdot 10^{-3} \text{ (m}^2/\text{kg)}$	aktivitet (Bq/kg ts)	antal prov
1987 ^a	20,5	1872	4
1992 ^a	1,6	152	2
1994 ^a	0,4	37	3
2000 ^b	0,2	19	13
2004	0,05	5	11

^a uppgifterna är hämtade från Rosén et al 1999. ^b uppgifterna är hämtade från Hermansson 2001.

5.2 Sorptionsförsök

Ökningen av K_d -värdet var inte så stor som det förväntades (se tabell 5). Vid 5-20 cm djup sjunker K_d -värdet vid t_2 och t_4 vilket kan förklaras med att omblandningen av jorden vid tillsatsen av cesium blev för dålig. Efter åtta veckors adsorption är K_d -värdet oförändrat jämfört med t_1 . Detta kan bero på att åtta veckor var för kort tid för att genomföra försöket. Resultaten från extraktionerna med ammoniumacetat är därför inte användbara vid detta djup. Vid 0-5 cm djup ökade K_d -värdena fram till tre veckor efter kontamineringen.

Tabell 5. K_d -värden uträknade från uppmätta värden vid olika tidpunkter med ammoniumacetat som extraktionsmedel

Tillfälle	Tidslängd	0-5 cm			5-20 cm		
		K_d^a	st.avvikelse	C.V (%)	K_d^a	st.avvikelse	C.V (%)
t = 1	24 timmar	26,3	1,6	6,16	92,6	5,9	6,33
t = 2	1 v	28,7	2,7	9,47	85,2	18,3	21,5
t = 3	4 v	31,3	5,3	16,98	113,1	25,9	22,9
t = 4	8 v	31,1	3,9	12,56	80,0	12,9	16,2

^a angivna värden är medelvärden av fyra upprepningar

Även om lerhalten är lika i de båda horisonterna så skiljer sig fastläggningen av radiocesium åt mellan skikten (se tabell 5 och 6). Detta beror på högre mullhalt i det övre skiktet (se tabell 1). Detta bidrar till att cesiumjonerna inte kan fixeras lika mycket vid FES i den översta horisonten, eftersom de bindningsplatserna är täckta av organiskt material. Även inom 0-5 cm är det skillnader i mullhalt på djupet. Det ultimata för att ta hänsyn till förhållandet mellan organiskt material och lerhalt vore att ha ett K_d -värde för varje cm-skikt.

K_d -värdet som räknats fram med extraktionerna med $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ (se tabell 6) är mycket högre än resultatet med Ammoniumacetat. Detta beror på att $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ är ett svagare extraktionsmedel som löser ut mindre av det cesium som adsorberats i jorden. Det går dock inte heller här se någon trend i att K_d -värdet ökar med tiden som förväntat, detta på grund av att försöket genomfördes på för kort tid. För horisonten 5-20 cm beräknat med $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ är standard-

avvikelsen för stor för att det skall gå att dra några tydliga slutsatser. För det översta skiktet fick försöket fortgå till tio veckor, med $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$. Då återgick Kd-värdet till ungefär samma som vid t_2 . Detta värde antogs vara det Kd-värde för 0-5 cm skiktet med $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ där jämvikt uppnåtts och resultaten från extraktionerna med jord från 0-5 cm och $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ användes därför för att ta fram passande värden av α och f_a till simuleringsmodellen. Att Kd-värdet vid t_3 är över 9000 förklaras också med ojämn inblandning av radiocesium.

Tabell 6. Kd-värden uträknade från uppmätta värden vid olika tidpunkter med kalciumnitrat som extraktionsmedel

		0-5 cm			5-20 cm		
Tillfälle	Tidslängd	Kd ^a	st.avvikelse	C.V (%)	Kd ^a	st.avvikelse	C.V (%)
t = 1	24 timmar	4280	808	18,9	456000	468000	103
t = 2	1 v	6580	208	3,16	324000	505000	156
t = 3	4 v	9080	3700	40,8	807000	527000	65,3
t = 4	8 v	-	-	-	27900	21400	76,7
t = 5	9 v	6250	2510	40,2	-	-	-
t = 6	10 v	7280	1300	17,9	-	-	-

^a angivna värden är medelvärden av fyra upprepningar

Förhållandet mellan fast material och vätska i naturlig mark brukar vara 10-20:1. På lab kan mycket lägre förhållande användas, samt högre koncentration på saltlösningen. Det är viktigt att lägga stor omsorg på valet av förhållanden om resultaten ska bli pålitliga. Cesiumkoncentrationen ställer in sig i en ny jämvikt med markvätskan under extraktionen, vilket innebär att allt radiocesium inte lossnar vid första extraktionen. Detta betyder att multipla extraktioner, alltså att samma jordprov används flera gånger (vanligvis tre) ger bättre mått på cesiumtillgängligheten än enkla extraktioner (Hilton & Comans, 2001). Det är dock viktigt att komma ihåg att i naturliga förhållanden, dvs i marken, finns mycket jord i förhållande till vätska. Därför användes i detta projekt förhållandet 1:2.

5.3 Simuleringsmodellen

5.3.1 EF beräkningar

EF-värdet för modellen med α och f_a värden från adsorptionsförsöket var negativt, vilket innebär att simuleringsresultaten är sämre att använda än medelvärdena av uppmätt data. Detta innebär att resultaten från adsorptionsförsöket inte gick att använda i modellen. När α och f_a värden kalibrerades fram blev det totala EF-värdet för modellen med avseende på aktiviteten i jorden istället 0,61 (se tabell 7).

Den totala aktiviteten i jorden i modellen jämfördes med uppmätt data endast ner till 5 cm djup, eftersom det troligtvis är nära markytan den större delen av adsorptionen sker. Eftersom aktiviteten går mot noll med djupet både i verkligheten och i modellen skulle EF-värdet öka om djupare skikt togs med i beräkningen.

Tabell 7. EF-värden beräknade för modellens utdata total aktivitet i jorden

alfa	f_a	EF 1987	EF 1992	EF 1994	EF 2000	EF 2004	EF tot

0,000005	0,05	0,77	0,30	0,76	0,75	0,44	0,61
----------	------	------	------	------	------	------	------

När EF-värden beräknades separat för varje provtagningsår varierade resultatet mellan 0,44 och 0,77. Ett år efter depositionen (1987) var EF-värdet som högst, men även 8 år efteråt (1994) och 14 år efteråt (2000) var EF-värdet nästan lika högt. Detta gjorde att det inte var möjligt att säga vid vilken tidpunkt i simuleringen som modellen fungerade bäst med avseende på adsorptionen.

När α och f_a bestämts till 0,000005/dygn respektive 0,05 kunde rotupptaget parameteriseras fram genom att beräkna EF-värdet av olika simuleringar för ”utdataparametern” växtupptag, jämfört mot den uppmätta aktiviteten radiocesium i vegetationen. Med rotupptaget 80000cm^3 vatten/kg ts uppnåddes det högsta möjliga EF-värdet med avseende på aktiviteten i vegetationen, som var 0,46 för alla fem provtagningsåren tillsammans.

Vid sammanslagning av EF-värdet för aktiviteten i jorden och i vegetationen erhöles det totala EF-värdet för modellen, som var 0,54. För att resultatet ska kunna bli ännu bättre krävs färre antaganden och förenklingar i modellen. Om diffusionskoefficienten beräknats istället för antagits vara konstant kunde resultatet kanske blivit ett annat. En mer noggrann bestämning av K_d -värdet skulle också vara bra.

5.3.2 Adsorption av radiocesium

I figur 15 syns det att migrationen av radiocesium nedåt i marken är för snabb i simuleringsmodellen. Aktiviteten vid 0-1 cm 1987 underskattas till drygt hälften av det uppmätta värdet. Mellan 1-4 cm överskattar modellen aktiviteten i marken upp till 6,5 gånger mer än det uppmätta värdet (se tabell 8).

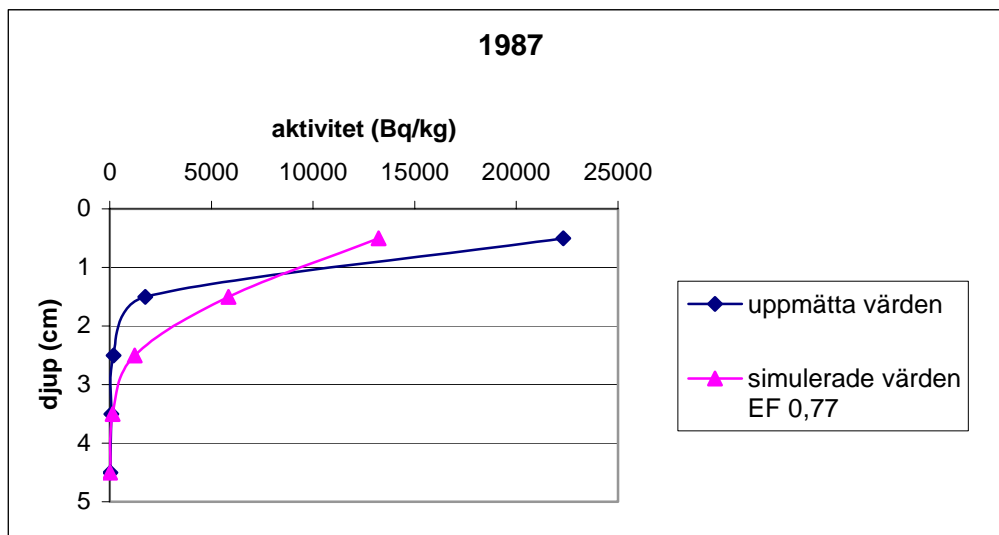


Fig 15. Simulerad aktivitet i jorden 0-5 cm jämfört mot uppmätt aktivitet 1987.

Sex år efter depositionen underskattas aktiviteten i marken av simuleringsmodellen, mellan 0-1 cm djup (se fig 16). Det simulerade värdet är 30 % av det uppmätta (se tabell 8). Mellan 2-5 cm ökar överskattningen i modellen med djupet. Det simulerade värdet är upp till åtta gånger större än det uppmätta värdet, vilket bidrar till att EF-värdet för 1992 endast är 0,3.

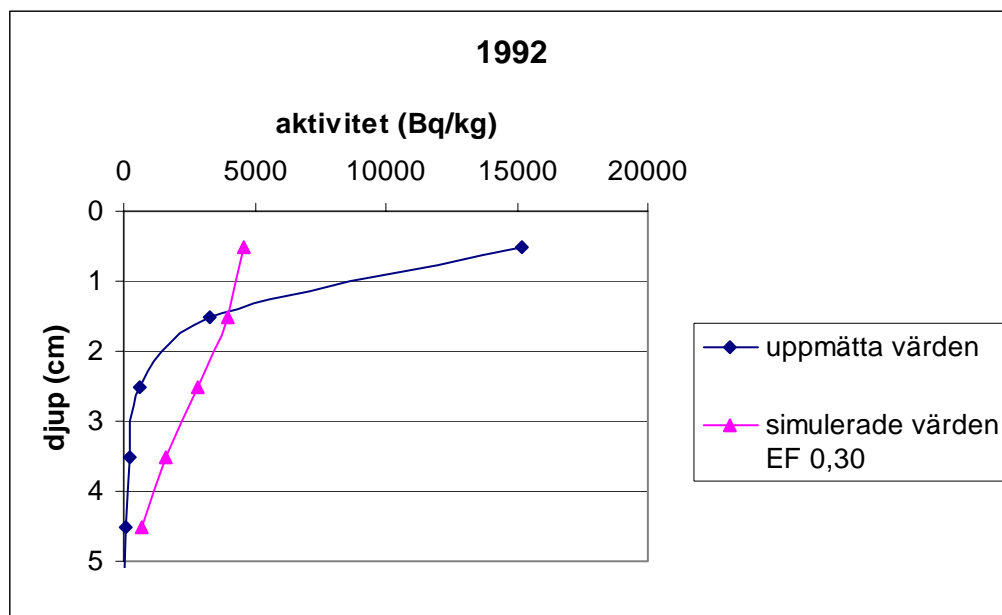


Fig 16. Simulerad aktivitet i jorden 0-5 cm jämfört mot uppmätt aktivitet 1992.

Tabell 8. Uppmätt och simulerad total aktivitet i jorden (Bq/kg) 1987 och 1992

djup (cm)	1987			1992		
	uppmätt	sim	sim/uppmätt	uppmätt	sim	sim/uppmätt
0 - 1	22306	13220	0,6	15170	4571	0,3
1 - 2	1750	5842	3,3	3313	3939	1,2
2 - 3	188	1222	6,5	643	2850	4,4
3 - 4	84	148	1,8	224	1624	7,2
4 - 5	31	12	0,4	88	710	8,0

Åtta år efter depositionen har situationen i modellen förändrats (se fig 17). Aktiviteten i marken underskattas nu ner till 4 cm djup. Det simulerade värdet utgör 60-90 % av det uppmätta. Endast vid 4-5 cm skiktet överskattas aktiviteten till det dubbla (se tabell 9).

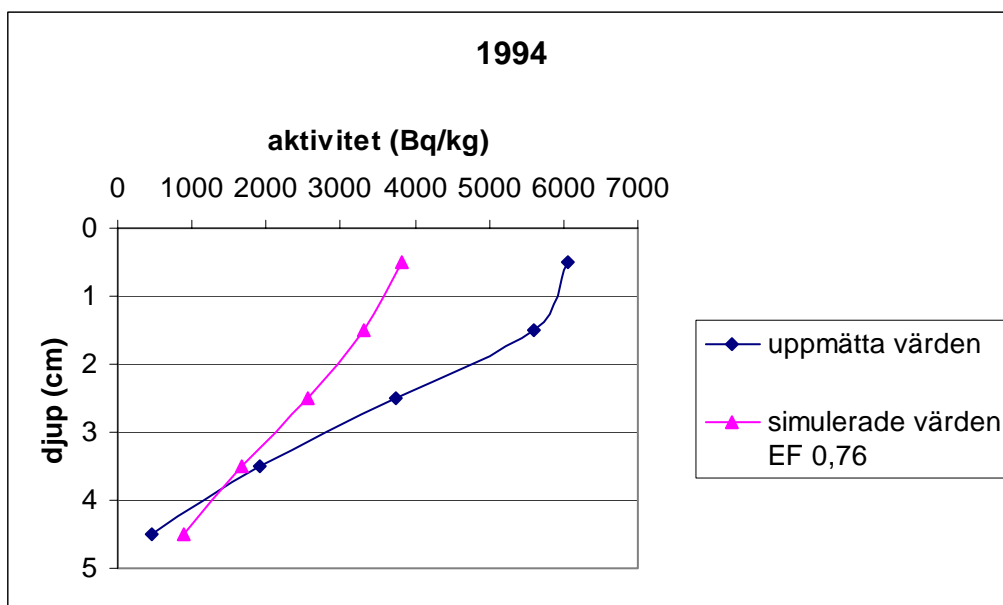


Fig 17. Simulerad aktivitet i jorden 0-5 cm jämfört mot uppmätt aktivitet 1994.

Även vid år 2000 är den simulerade aktivitetsfördelningen i jordprofilen ganska nära de uppmätta värdena (se fig 18). Underskattningen vid 0-2 cm djup är liten och endast mellan 4-5 cm överskattar modellen aktiviteten till dubbla mätvärdet (se tabell 9).

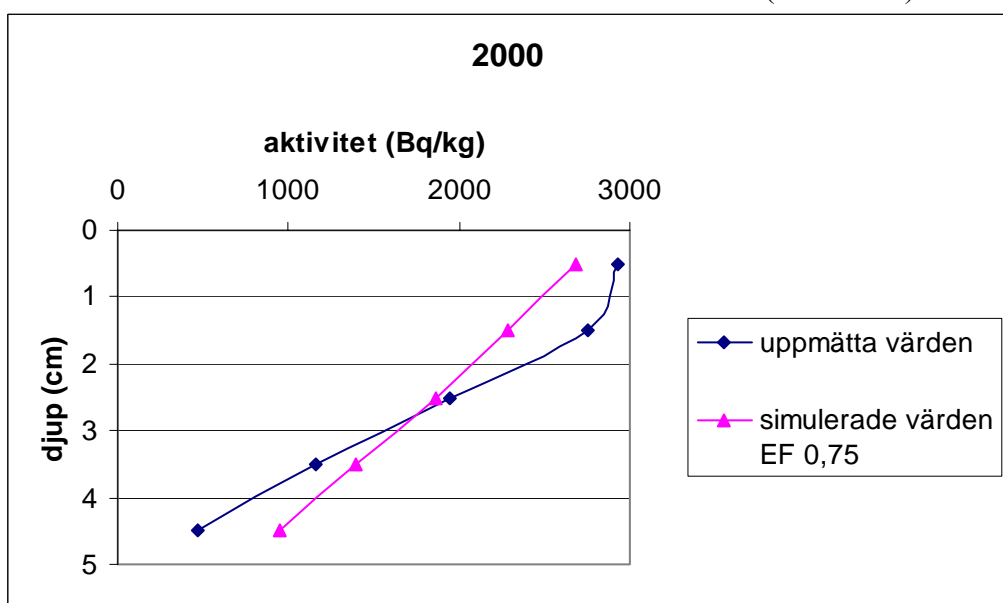


Fig 18. Simulerad aktivitet i jorden 0-5 cm jämfört mot uppmätt aktivitet 2000.

Tabell 9. Uppmätt och simulerad total aktivitet i jorden (Bq/kg) 1994 och 2000

	1994			2000		
djup (cm)	uppmätt	sim	sim/uppmätt	uppmätt	sim	sim/uppmätt
0 - 1	6063	3814	0,6	2930	2689	0,9
1 - 2	5613	3308	0,6	2749	2291	0,8
2 - 3	3744	2556	0,7	1946	1859	1,0
3 - 4	1924	1666	0,9	1155	1398	1,2
4 - 5	445	882	2,0	464	946	2,0

Efter 18 års simulering sker migrationen av radiocesium i marken saktare i modellen än i verkligheten (se fig 19). Modellen överskattar aktiviteten dock som mest med faktor 1,5 (se tabell 10). Även om överskattningen är begränsad vid varje djup, blir EF-värdet ändå under 0,5.

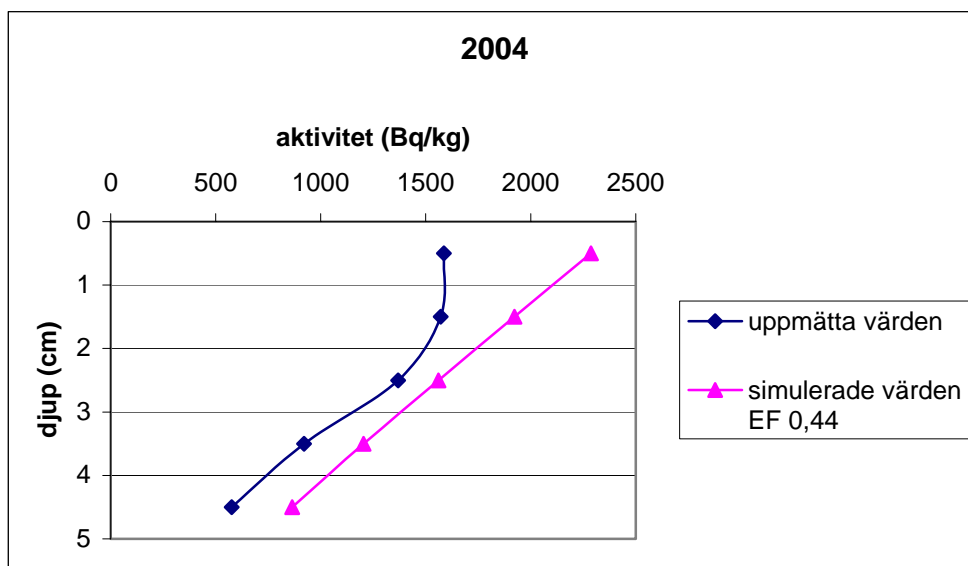


Fig 19. Simulerad aktivitet i jorden 0-5 cm jämfört mot uppmätt aktivitet 2004.

Tabell 10. Uppmätt och simulerad total aktivitet i jorden (Bq/kg) 2004

djup (cm)	2004		
	uppmätt	sim	sim/uppmätt
0 - 1	1586	2286	1,4
1 - 2	1572	1922	1,2
2 - 3	1369	1561	1,1
3 - 4	921	1204	1,3
4 - 5	577	864	1,5

5.3.3 Vegetationsupptag av radiocesium

Med rotupptaget 35000 cm^3 vatten/kg ts underskattas aktiviteten i vegetationen det första året efter depositionen (1987) nära 13 gånger. Det simulerade värdet utgör endast 10 % av det uppmätta, trots att EF-värdet är så högt som möjligt (0,46). Nio år efter depositionen (1994) överskattas istället aktiviteten med faktorn 1,8. Denna överskattning ökar med tiden och 18 år efter depositionen är den sex gånger större än den uppmätta aktiviteten (se tabell 11 och figur 20).

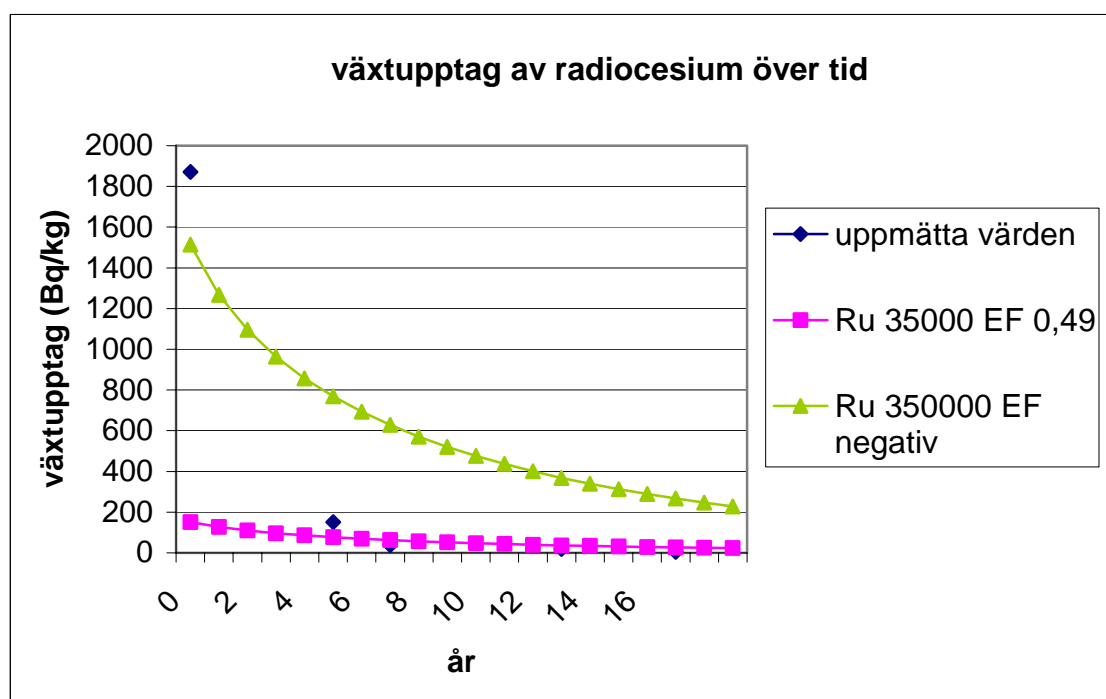
Att EF-värdet för vegetationsupptaget inte blev högre än 0,46 beror på att det var svårt att anpassa modellen till de uppmätta värdena efter nedfallet. Att upptaget är högt 1987 beror troligen på att 90 % av de radioaktiva partiklarna finns kvar i det översta skiktet, 0-1 cm och att det på orörda vallar ofta finns en tät grässvål med mycket rötter vid markytan. Detta ger ett stort upptag av radiocesium. Om det hade antagits en logaritmisk rotfördelning i jordprofilen istället för en linjär, hade modellen blivit mer rättvisande. Modellen tar inte hänsyn till

upptag via bladen, men eftersom upptaget via bladen är störst direkt efter nedfallet så är det ändå inte det som är den stora orsaken till den höga aktiviteten i vegetationen 1987.

Hur migrationen och vegetationsupptaget förändras under de närmaste fem åren finns inga mätvärden för, vilket gör det svårare att anpassa modellen. För att kunna få ett högre EF-värde för aktiviteten i vegetationen skulle det vara bra att ha någon mätpunkt mellan 1987 och 1992. Oavsett om aktiviteten avtar under den tiden eller inte, skulle fler provtagningstillfällena gett ett högre EF-värde, tillika större säkerhet för modellen.

Tabell 11. Jämförelse av aktivitet av radiocesium i vegetationen

år	Uppmätt (Bq/kg ts)	Simulerat (Bq/kg ts)	sim/uppmätt
1987	1872	147	0,1
1992	152	80	0,5
1994	37	66	1,8
2000	19	40	2,1
2004	5	30	6,0



Fig

20. Växtupptag av radiocesium över tid.

Att den uppmätta aktiviteten i vegetationen är nära 1900 Bq/kg ts 1987 var inte möjligt att få med i modellen. Om rotupptaget ökades till 1000000 så uppnåddes det värdet vid den tidpunkten, men vid senare tidpunkter överskattades aktiviteten så grovt att EF-värdet är negativt.

Naturen är ett komplext system som människan inte fullt ut kan förklara med matematiska formler. Adsorption och vegetationsupptag av radiocesium beror på många fler faktorer än vad som tagits med i detta arbete. Den vegetation som växte på Skogsvallen 1986 finns nu som förna i marken. Aktiviteten i det växtmaterialet har omfördelats i jorden genom biolo-

gisk aktivitet, tex genom dagmaskars förflyttning av jord i marken. Även svampmycel har del i translokeringen av cesium i marken. På detta sätt kan man tänka sig en ”biologisk diffusion”, som inte tas hänsyn till i arbetet. Aktiviteten i rotmattan räknas till jorden, medan det egentligen är ett rotupptag, vilket också är en felkälla. Det är också möjligt att upptaget första året efter deposition var mycket stort pga. att allt cesium fanns i rotmattan där adsorptionen antagligen är svagare.

5.3.4 Simulering över 50 år av möjliga scenarier

I figur 21 presenteras några simuleringar av cesiumaktiviteten i vegetationen och hur den avtar under 50 år. Modellen har kalibrerats för en deposition på 90 kBq/m^2 , vilket är depositionen av ^{137}Cs från Tjernobylolyckan. Vid en större övning i Uppsala län hösten 2004 för samordning och organisering mellan olika myndigheter vid en kärnkraftsolycka användes depositionen 1 MBq/m^2 . För ett så stort nedfall visar modellen en aktivitet på mer än 1600 Bq/kg ts i vegetationen året efter deposition. Detta är dock egentligen bara 10 % av det verkliga värdet.

Modellen visar att det skulle ta 40 år innan aktiviteten i vegetationen har minskat till mindre än 500 Bq/kg ts vid en sådant stort utsläpp. Med tanke på att modellen överskattar aktiviteten med faktor 6 redan efter 18 år så är dessa resultat dock inte att lita på. Minskningen av aktivitet i vegetationen sker fortare än så i verkligheten.

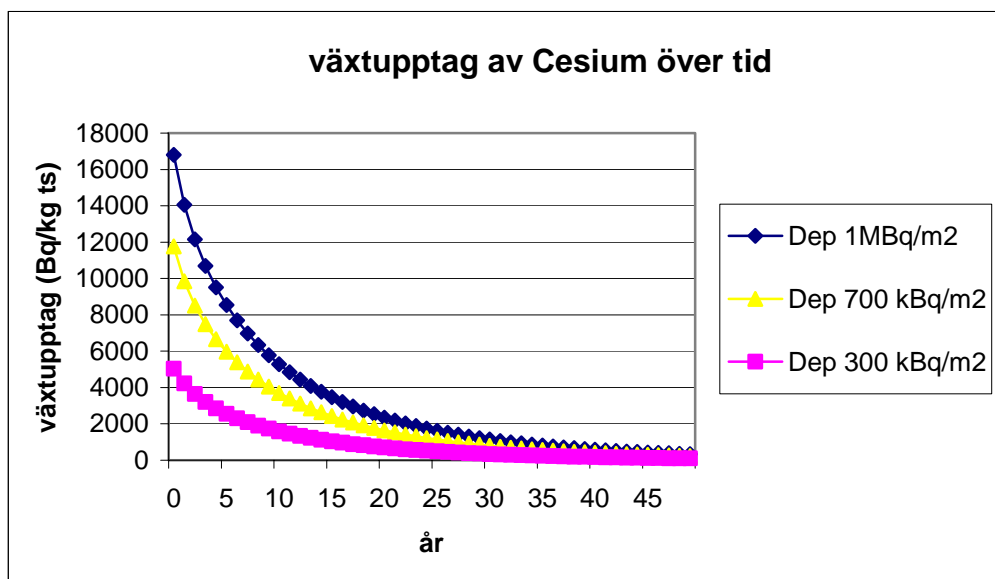


Fig. 21. Växtupptag av radiocesium över tid.

6. Slutsatser

Trots att aktiviteten i jordprofilen vid Skogsvallen har förskjutits nedåt med tiden, finns ca 80 % av den totala aktiviteten kvar i horisonten 0-5 cm. Detta påvisar att adsorption av cesium till lermineral påverkar migrationen i marken starkt.

Att vegetationsupptaget av radiocesium är litet beror på att det cesium som finns kvar i marken är adsorberat till lermineralen. Genom adsorption fastläggs radiocesium i marken så att det inte längre är växttillgängligt. Det betyder inte att det inte finns kvar i marken, bara att det inte kan komma in i näringskedjan. Därför är det viktigt att tänka på hur starkt förorenad mark används i framtiden.

I simuleringsmodellen var migrationen av radiocesium för snabb jämfört med uppmätta värden. Detta skulle kunna bero på för stor diffusion/dispersion. Modellen underskattar aktiviteten i vegetationen 0-6 år efter depositionen. Detta kan bero på att det är en hög biotillgänglighet i rotmattan vid markytan. Mycket organiskt material vid 0-1 cm djup kan bidra till att adsorptionen blir liten, vilket gör att mycket cesium är växttillgängligt i markvätskan den första tiden efter deposition. För att utreda denna hypotes krävs mer noggranna adsorptionsförsök, med fler skiktindelningar av jordprofilen. Metoder för att relatera cesiums K_d -värde till markens lerhalt och mullhalt skulle också vara värdefulla i den fortsatta utvecklingen av simuleringsmodellen.

7. Referenser

- Abramsson-Zetterberg, L. 2001. 15 år efter Tjernobyl. Vår föda 5/2001 15-16. Livsmedelsverket.
- Alexandersson, H., Karlström, C. & Larsson-McCann, S. 1991. *Temperaturen och nederbörden i Sverige 1961-1990: Referensnormaler*. SMHI, 1991 Meteorologi nr 81. SMHI, Norrköping.
- Altfelder, S., Streck, T. & Richter, J. 2000. Nonsingular Sorption of Organic Compounds in Soil: The Role of Slow Kinetics. *J. Environ. Qual*, 29 No3 917-925.
- Andersson, I., Bergman, R., Enander, A., Finck, R., Johansson, K-J., Nylén, T., Preuthun, J., Rosén, K., Sandström, B., Svensson, K. & Ulvsand, T. 2002. Livsmedelsproduktionen vid nedfall av radioaktiva ämnen. SLU, FOI, SSI, Livsmedelsverket, Jordbruksverket. Redaktörer Persson, K. & Preuthun, J. s. 16-56
- Arapis, G., Petrayev, E., Shagalova, E., Zhukova, O., Sokolik, G. & Ivanova, T. 1997. Effective Migration Velocity of ^{137}Cs and ^{90}Sr as a Function of the Type of Soils in Belarus. *J. Environ. Radioactivity* 34,171-185.
- Brady, N. C. & Weil, R. R. 2002. The Nature and Properties of Soils 13th ed. 321-329. New York.
- Brouwer, E., Baeyens, B., Maes, A. & Cremers, A. 1983. Cesium and Rubidium ion equilibria in illite clay. *J. Phys. Chem.* 87, 1213-1219
- Brugård Konde, Å. & Becker, W. 1996. Mindre cesium i den svenska maten. Vår föda 3/96 Livsmedelsverket.
- Christensen, G. C., Romanov, G. N., Strand, P., Salbu, B., Malyshev, S. V., Bergan, T. D., Oughton, D., Drozhko, E. G., Glagolenko, Y. V., Amundsen, I., Rudfjord, A. L., Bjerk, T. O. & Lind, B. 1997. Radioactive contamination in the environment of the nuclear enterprise 'Mayak' PA. Results from the joint Russian-Norwegian field work in 1994. *Sci. Tot. Environ.* 202, 237-248
- Cremers, A., Elsen, A., De Preter, P. & Maes, A. 1988. Quantitative analysis of radiocesium retention in soils. *Nature*, 335 247- 249.
- Comans, R. N. J., Haller, M & De Preter, P. 1991. Sorption of cesium on illite: Non-equilibrium behavior and reversibility. *Geochim. Cosmochim. Acta* 55, 433-440.
- Comans, R. N. J. & Hockley, D. E. 1992. Kinetics of cesium sorption in illite. *Geochim. Cosmochim. Acta* 56, 1157-1164.
- Coughtrey, P. J. & Thorne, M. C. 1983. Radionuclide Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystems: a critical review of data. Volume 1. Rotterdam : A.A. Balkema, 496 pp.

Eriksson, Å. 1976. Studies of the transport of fission products through food chains. IV. On the relationship between ^{137}Cs in fallout and ^{137}Cs in grass and milk. Rapport 33. Inst. För radiobiologi, Lantbrukshögskolan Uppsala.

Evans, D. W., Alberts, J. J. & Clark, R. A. 1983. Reversible ion-exchange fixation of cesium-137 leading to mobilization from reservoir sediments. *Geochim. Cosmochim. Acta* 47,1041-1049.

Forsberg, S. 2000. Behavior of ^{137}Cs and ^{90}Sr in Agricultural Soils: Influence of aging and soil type on availability, migration and plant uptake. Swedish University of Agricultural Sciences, Acta Universitatis Agriculturae Sueciae. Agraria 212 46 pp.

Forsberg, S., Rosén, K. & Bréchnignac, F. 2001. Chemical availability of ^{137}Cs and ^{90}Sr in undisturbed lysimeter soils maintained under controlled and close-to-real conditions. *J. Environ. Radioactivity*, 54, 253-265.

Francis, C. W. & Brinkley, F. S. 1976. Preferential adsorption of ^{137}Cs to micaceous minerals in contaminated freshwater sediment. *Nature* 260, 511-513.

Hermansson, I. 2001. Migration av radiocesium i sju olika markområden i Tjernobyldrabba- de områden i Sverige år 2000 – En jämförelse med tidigare studier 1987-1995. Sveriges Lantbruksuniversitet. Uppsala. Examens- och seminariearbeten Nr 44.

Hilton, J. & Comans, R. N. J. 2001. Chemical forms of radionuclides and their quantification in environmental samples. In: Radioecology Radioactivity & ecosystems. pp 99-111. Ed. Van der Stricht, E & Kirchmann, R.

Holm, P. E., Christensen, T. H., Lorenz, S. E., Hamon, R. E., Domingues, H. C., Sequeira, E. M. & Mcgrath, S. P. 1998. Measured soil water concentrations of cadmium and zinc in plant pots and estimated leaching outflows from contaminated soils. *Water, Air, and Soil Pollution* 102, 105-115. 1998. Kluwer academic publishers. Printed in the Netherlands.

ICRP (International Commission on Radiological Protection) publication 72, Age-dependent Doses to Members of the Public from intake of Radionuclides: Part 5 Compilation of Ingestion and Inhalation Dose Coefficients. *Annals of the ICRP Volume 26 No 1*. 1996 Printed in Great Britain.

Johanson, K-J. 1996. Strålning människan och miljön. Sveriges Lantbruksuniversitet, Uppsala. s. 4-15, 43-64

Konoplev, A., Bulgakov, A., Hilton, J., Comans, R. & Popov, V. 1996. Long term kinetics of radiocesium fixation by soils. In: *Freshwater and estuarine radioecology Studies in environmental Science* 68 pp173-182. Ed Desmet, G.

Loague, K. & Green, R. E., 1991. Statistical and graphical methods for evaluating solute transport models: Overview and application. *J. Contam. Hydrol.* 7, 51-73.

Lederer, C. M. & Shirley, V. S. 1978. Table of Isotopes, 7th ed. University of California, Berkeley. John Wiley & sons, INC. USA p. 711-712

Mattson, S. & Moberg, L. 1991. Fallout from Chernobyl and atmospheric nuclear weapons tests. Chernobyl in perspective. In: The Chernobyl fallout in Sweden. Svenska strålskyddsinstitutet.

Moberg, L. Ed 1991. The Chernobyl fallout in Sweden. Results from a research programme on environmental radioecology. Svenska strålskyddsinstitutet.

Rosén, K. (1991). Effects of potassium fertilization on caesium transfer to grass, barley and vegetables after Chernobyl. The Chernobyl fallout in Sweden. Results from a research programme on environmental radiology (Ed. L. Moberg). The Swedish Radiation Protection Institute, Stockholm, pp 305-322.

Rosén, K., Öborn, I. & Lönsjö, H. 1999. Migration of radiocaesium in Swedish soil profiles after the Chernobyl accident, 1987-1995. *J. Environ. Radioactivity*, 46, 45-66.

Sandberg, E., Moberg, L., Brasch, A., Bengtsson, Å., Johansson, J-Å. & Holmgren, S. 1996. Tio år efter Tjernobyl. Vår föda, 3/96. Livsmedelsverket.

Sawhney, B. L. 1972. *Clays clay miner.* 20, 93-100

Wright, S. M., Howard, B. J., Strand, P., Nylén, T. & Sickel, M. A. K. 1999. Prediction of ¹³⁷Cs deposition from atmospheric nuclear weapons tests within the arctic. *Environ. Pollut.* 104, 131-143.

Åhman, B. 1994. Radiocaesium in reindeer (*Rangifer tarandus tarandus*) after fallout from the Chernobyl accident. Swedish University of Agricultural Sciences, Department of Clinical Nutrition Uppsala. ISBN 91-576-4837-9

Muntliga källor

Jarvis, 2004. Nicholas Jarvis, inst för markvetenskap, SLU Uppsala, september 2004

Rosén, 2004. Klas Rosén, inst. för markvetenskap, SLU, Uppsala, september 2004

Internet

Powersim, 2004. www.powersim.com september 2004

SSI, 2004. Statens Strålskyddsinstitut, www.ssi.se/kaernkraft/uslaepp.html oktober 2004

Bilagor

- Bilaga 1. Den uppmätta aktiviteten i jorden (Bq/kg) vid Skogsvallen vid olika provtagningstillfällen
- Bilaga 2. Simuleringsmodellen
- Bilaga 3. Simuleringsmodellens ekvationer
- Bilaga 4. Översikt över modellens parametrar, förkortningar och enheter

BILAGA 1.

Tabell 1. Den uppmätta aktiviteten i jorden (Bq/kg) vid Skogsvallen vid olika provtagnings-tillfällen (beräknat med bruttovikten)

Djup (cm)	1987-08-21 ^a	1992-09-15 ^a	1994-11-28 ^a	2000-09-21 ^b	2004-06-09	Volymvikt ^c
0-1	22305,6	15169,6	6063,1	2930,1	1586,2	0,37
1-2	1749,7	3313,2	5613,1	2749,1	1571,8	0,51
2-3	188,2	643,2	3743,8	1946,0	1369,4	0,66
3-4	84,2	224,4	1924,1	1155,0	920,8	0,79
4-5	30,6	88,2	444,5	463,5	576,5	0,91
5-6				207,5	342,4	1,05
6-7		34,7	76,2	106,0	216,8	1,19
7-8	17,0			67,0	144,7	1,26
8-9		8,6	19,3	67,5	110,5	1,2
9-10				58,1	106,7	1,14
10 – 12,5	6,5	8,6	22,9	41,6	72	1,41
12,5 - 15				28,9	35,1	1,42
15 - 17,5		4,5	7,5	19,4	18,5	1,53
17,5 – 20				17,9	13,3	1,51
20 – 22,5		3,2	4,5		10,8	1,49
22,5 – 25				6,6	6,7	1,53
25 – 27,5					4,4	1,54
27,5 – 30				2,5	6,1	1,5
30 – 32,5					4	1,58
32,5 – 35				1,1	5,1	1,55
35 - 37,5					3,1	1,58
37,5 – 40				2,7	2,2	1,61
40 - 42,5					1,5	1,64
42,5 - 45				1,2	2,6	1,56
45 - 47,5					3,7	1,62
47,5 - 50				0,4	2,6	1,6
50 - 52,5					0,6	1,64
52,5 - 55				1,5	1,1	1,59
55 - 57,5					0,5	1,66
57,5 - 60				2,6	0,5	1,61

^a uppgifterna är hämtade från Rosén et al 1999.

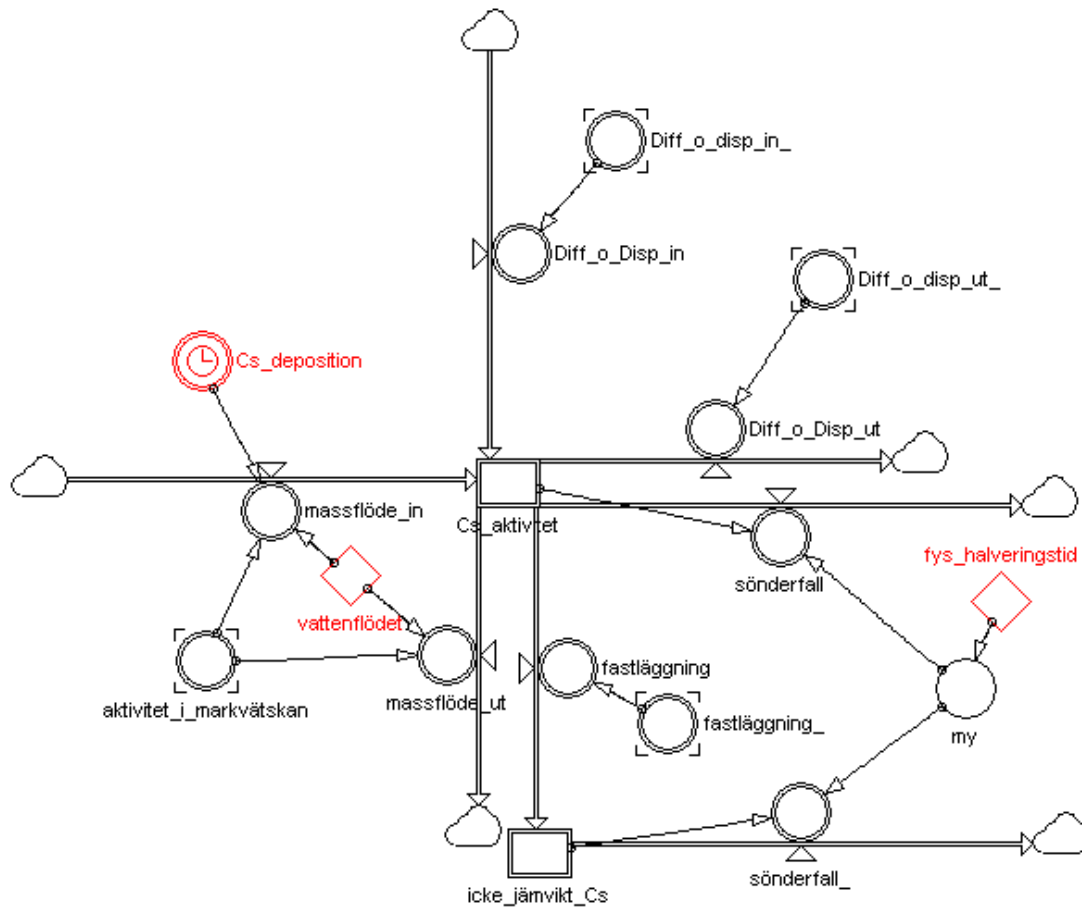
^b uppgifterna är hämtade från Hermansson 2001.

^c volymvikten är medelvärdet av provplats A, B och C vid 2004 års provtagning.

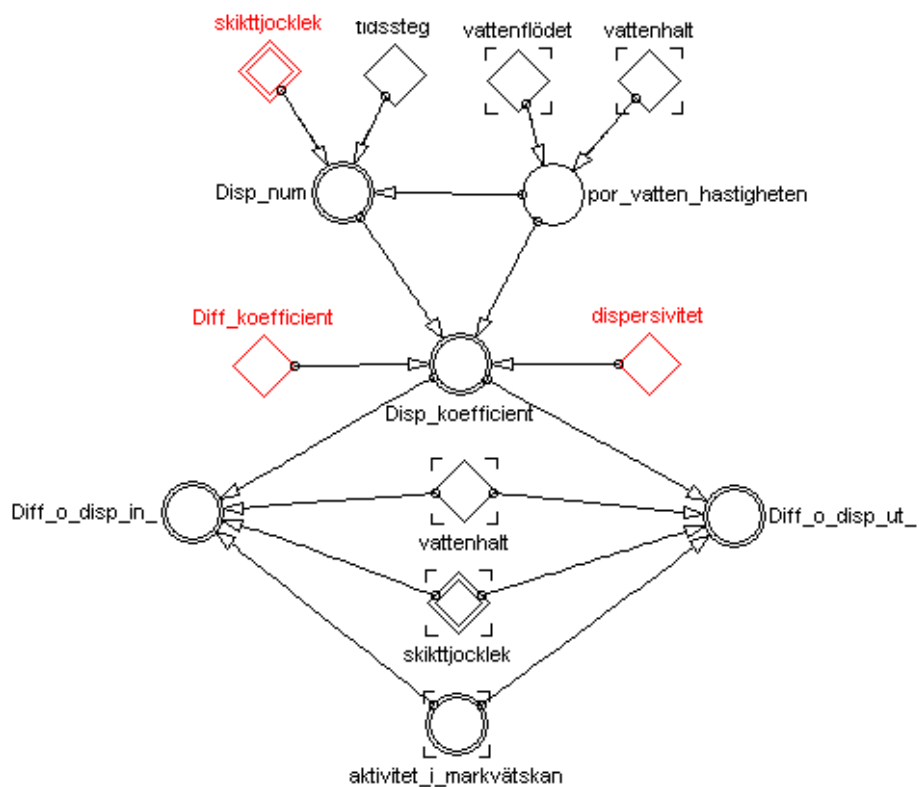
Observera att provtagningen 1987 bara sträckte sig ner till 15 cm djup och sedan med tiden succesivt ökat nedåt i profilen. Även skiktjockleken var annorlunda i början av mätningarna, vilket ger en del tomma fält i tabellen.

BILAGA 2. Simuleringsmodellen.

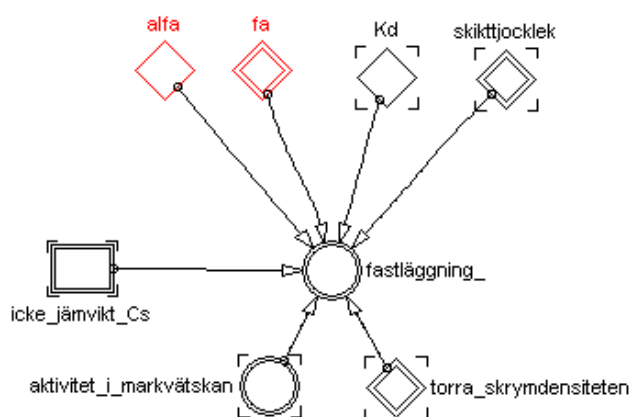
Del 1: Huvudmodellen

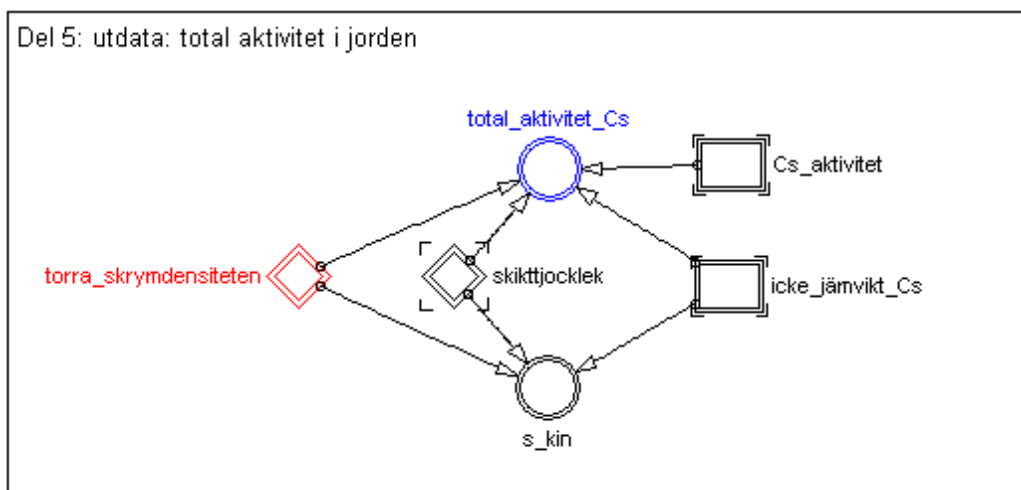
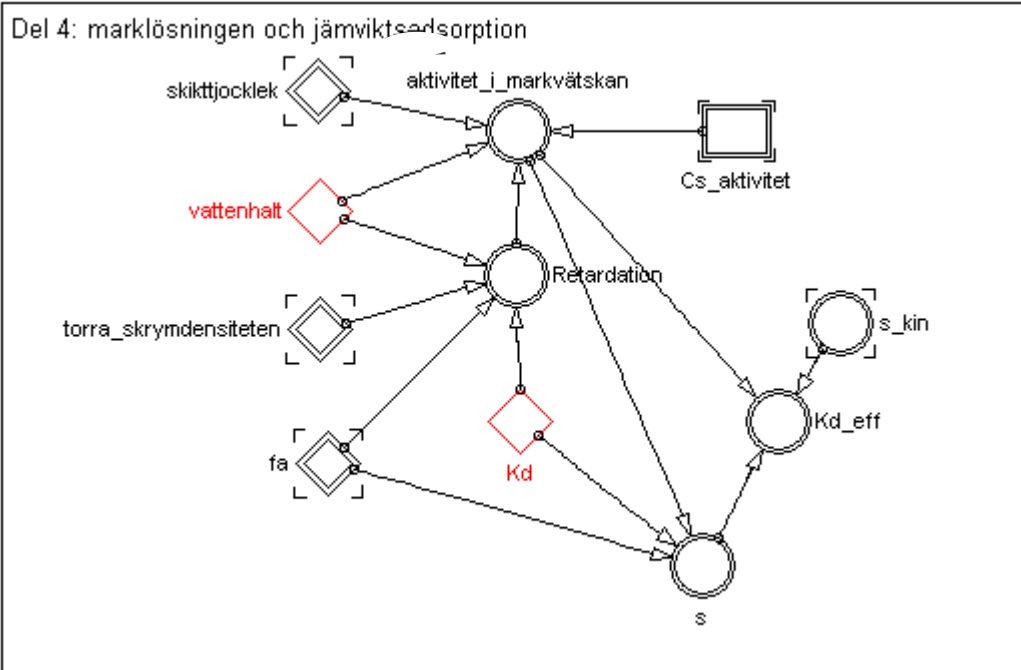


Del 2: Diffusion och Dispersion

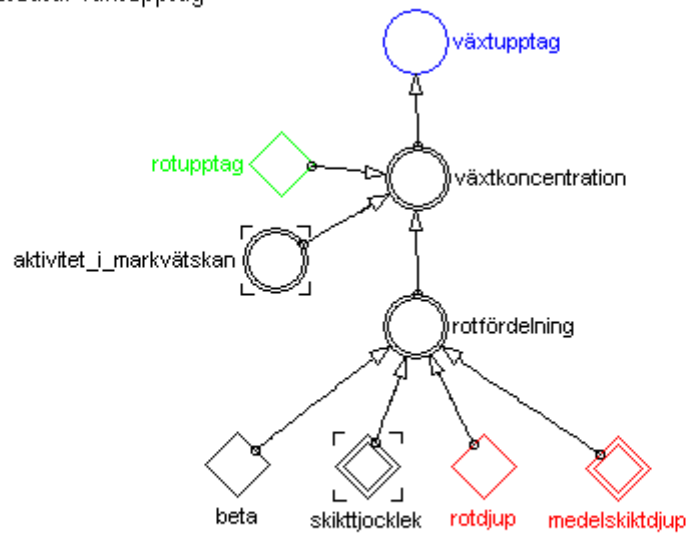


Del 3: fastläggning





Del 6: utdata: växtupptag



BILAGA 3. Simuleringsmodellens ekvationer.

- Cs aktivitet
 - skikt=1..30
 - INIT 0
 - dt*fastläggning
 - dt*sönderfall
 - dt*Diff_o_Disp_ut
 - +dt*Diff_o_Disp_in
 - dt*massflöde_ut
 - +dt*massflöde_in
- icke_jämvikt-Cs
 - skikt=1..30
 - INIT 0
 - dt*sönderfall_
 - +dt*fastläggning
- Diff_o_Disp_in
 - skikt=1..30
 - = Diff_o_disp_in_
- Diff_o_Disp_ut
 - skikt=1..30
 - = Diff_o_disp_ut_
- fastläggning
 - skikt=1..30
 - = fastläggning_
- massflöde_in
 - skikt=1..30
 - = Cs_deposition WHEN skikt=1 BUT aktivitet_i_markvätskan (skikt-1) *vattenflödet WHEN skikt=2..30
- massflöde_ut
 - skikt=1..30
 - = aktivitet_i_markvätskan*vattenflödet
- sönderfall
 - skikt=1..30
 - = Cs_aktivitet*my
- sönderfall_
 - skikt=1..30
 - = icke_jämvikt-Cs*my
- aktivitet_i_markvätskan
 - skikt=1..30
 - = Cs_aktivitet/(Retardation*vattenhalt*skiktjocklek)
- Cs_deposition
 - skikt=1..30
 - = IF (TIMEIS (0), 9.01 , 0) WHEN skikt=1 BUT 0
- Diff_o_disp_in_
 - skikt=1..30
 - = 0 WHEN skikt=1 BUT Disp_koefficient*vattenhalt*((aktivitet_i_markvätskan(skikt-1)-aktivitet_i_markvätskan(skikt))/skittjocklek)
- Diff_o_disp_ut_
 - skikt=1..30
 - = 0 WHEN skikt= 30 BUT Disp_koefficient*vattenhalt*((aktivitet_i_markvätskan(skikt)-aktivitet_i_markvätskan(skikt+1))/skittjocklek)
- Disp_koefficient
 - skikt=1..30
 - = (dispersivitet*por_vatten_hastigheten+Diff_koefficient)-Disp_num
- Disp_num
 - skikt=1..30
 - = (por_vatten_hastigheten/2)*(skittjocklek-por_vatten_hastigheten*tidssteg)
- fastläggning_
 - skikt=1..30
 - = IF (fa<1,alfa*((torra_skrymdensiteten*Kd*aktivitet_i_markvätskan*skittjocklek)-(icke_jämvikt-Cs/(1-fa))),0)
- Kd_eff
 - skikt=1..30
 - = (s+s_kin)/aktivitet_i_markvätskan
- my
 - = LN(2) / fys_halveringstid
- por_vatten_hastigheten
 - = vattenflödet/vattenhalt

BILAGA 4. Översikt över modellens parametrar, förkortningar och enheter

	ev förkortning	namn i modellen	enhet i modellen	beteckning	
Del 1. Huvudmodellen		Cs aktivitet	Bq/cm ²	A _{Cs}	
		massflöde in	Bq/cm ² *h	$\partial qc / \partial z$	
		Cs deposition	Bq/cm ²	-	
		vattenflödet	cm/h	q	
		aktivitet i markvätskan	Bq/cm ³ vatten	c	
		massflöde ut	Bq/cm ² *h	$\partial qc / \partial z$	
		Diff o Disp in	Diffusion och dispertion in	Bq/cm ² *h	$D\theta(\partial c / \partial z)$
		Diff o Disp ut	Diffusion och dispertion ut	Bq/cm ² *h	$D\theta(\partial c / \partial z)$
			Sönderfall	Bq/cm ² *h	S
			My	l/h	μ
		fys halveringstid	fysikalisk halveringstid	h	t _{1/2}
			icke jämvikt Cs	Bq/cm ² jord	A _{kin}
			fastläggning	Bq/cm ² *h	$\partial A_{kin} / \partial t$

Del 2. Diffusion och dispersion		aktivitet i markvätskan	Bq/cm ³ vatten	c	
		skiktjocklek	cm	dz	
		Vattenhalt	vatten/jord vikts%	θ	
		Disp koefficient	Dispertions koefficient	cm ² /h	D
		Diff o Disp in	Diffusion och dispersion in	Bq/cm ² *h	$D\theta(\partial c / \partial z)$
		Diff o Disp ut	Diffusion och dispersion ut	Bq/cm ² *h	$D\theta(\partial c / \partial z)$
		Diff koefficient	Diffusions koefficient	cm ² /h	D _{diff}
			dispersivitet	cm	λ
			porvattenhastigheten	cm/h	v
		Disp num	Numerisk dispersion	cm ² /h	D _{num}
			Tidssteg	h	dt
			vattenflödet	cm/h	q

Del 3. Fastläggning	ev förkortning	namn i modellen	enhet i modellen	beteckning
		alfa	l/h	α
	fa	andel bindingsplatser i jämvikt	enhetslös	fa
	Kd	Adsorptionsvärde	$\text{cm}^3/\text{g} = \text{l}/\text{kg}$	Kd
		torra skrymdensiteten	g/cm^3	γ
		skiktjocklek	cm	dz
		icke jämvikt Cs	Bq/cm^2 jord	A_{kin}
		fastläggning	$\text{Bq}/\text{cm}^2 \cdot \text{h}$	$\partial A_{\text{kin}}/\partial t$
		aktivitet i markvätskan	Bq/cm^3 vatten	c

Del 4. Marklösningen och jämviktsadsorption				
		skiktjocklek	cm	dz
		vattenhalt	m^3 vatten/ m^3 jord	θ
		torra skrymdensiteten	g/cm^3	γ
	fa	andel bindingsplatser i jämvikt	enhetslös	fa
		aktivitet i markvätskan	Bq/cm^3 vatten	c
	R	Retardationskoefficient	enhetslös	R
	Kd	Adsorptionsvärde	$\text{cm}^3/\text{g} = \text{l}/\text{kg}$	Kd
		Cs aktivitet	Bq/cm^2	A_{Cs}
	s _{kin}	konc kinetiskt ads. Cs i det fasta materialet	Bq/g	S_{kin}
	Kd _{eff}	effektivt adsorptionsvärde	l/kg	Kd_{eff}
	s	konc adsorberat Cs i det fasta materialet	Bq/g jord	s

Del 5. Utdata: total aktivitet i jorden				
		torra skrymdensiteten	g/cm^3	γ
		skiktjocklek	cm	dz
		total aktivitet Cs	Bq/kg	$A_{\text{tot sim}}$
	s _{kin}	konc kinetiskt ads. Cs i det fasta materialet	Bq/g	S_{kin}
		Cs aktivitet	Bq/cm^2	A_{Cs}
		icke jämvikt Cs	Bq/cm^2 jord	A_{kin}

Del 6. Utdata: växtupptag				
		växtupptag	Bq/kg ts växt	$A_{\text{veg tot}}$
		beta	enhetslös	β
		rotfördelning	enhetslös	r(z)
		rotupptag	cm^3 vatten/kg växt	R_u
		aktivitet i markvätskan	Bq/cm^3 vatten	c
		skiktjocklek	cm	dz
		rotdjup	cm	Z_r
		medelskikt djup	cm	z