

STUK - A177

Tammikuu 2001



# Puun tuhkan radioaktiivisuus

**A. Rantavaara, M. Moring**

**32 / 17**



FI0100003

STUK-A177

Tammikuu 2001

# **Puun tuhkan radioaktiivisuus**

**A. Rantavaara, M. Moring**

STUKin raporttisarjoissa esitetyt johtopäätökset ovat tekijöiden johtopäätöksiä eivätkä ne välttämättä edusta Säteilyturvakeskuksen virallista kantaa.

ISBN 951-712-401-5

ISSN 0781-1705

Oy Edita Ab, Helsinki 2001

**Myynti:**

STUK • Säteilyturvakeskus

PL 14 00881 HELSINKI Finland

Puh. (09) 759 881

## ALKUSANAT

Tätä tutkimusta varten Säteilyturvakeskus (STUK) hankki tuhkanäytteet yhteistyössä puuenergiaa tuottavan teollisuuden kanssa vuosina 1996 - 1997. Yhteyshenkilöitä ja näytteenoton suorittaneita henkilöitä oli kaikkiaan 22 laitoksessa eri puolilla Suomea. Suunnitteluvaiheessa geologi Anu Karessuo Metsäteollisuus ry:stä antoi hyödyllistä taustatietoa. Tähänastisia Metsäteho Oy:n tuhkatutkimuksia koordinoineet DI Paula Anttila ja erikoistutkija Antti Korpilahti olivat kiinnostuneita myös STUKin hankkeesta ja antoivat hyviä käytännön neuvoja. Tutkimusaseman johtaja Hannu Raitio, professori Seppo Kaunisto, tutkija Lasse Aro ja metsätalousinsinööri Teuvo Levula Metsäntutkimuslaitoksen Parkanon tutkimusasemalta selvensivät metsien radioekologiaa koskevien yhteishankkeiden aikana tekijöille tuhkalannoituksen vaikutusta metsiin. Imatran Voiman säätio myönsi apurahan hankkeen toteuttamiseen. Kiitämme kaikkia mainittuja henkilöitä ja tahoja arvokkaasta tuesta.

RANTAVAARA, Aino, MORING, Mikael. *Puun tuhkan radioaktiivisuus. (STUK-A177). Helsinki 2001, 41 s.*

ISBN 951-712-401-5

ISSN 0781-1705

**Avainsanat** bioenergia, polttoaine, puu, radionuklidit, säteilyaltistus, säteilyturvallisuus, tuhka, tuhkalannoitus, turvallisuustavoite,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$

## TIIVISTELMÄ

Puuenergian tuotannossa syntyvän tuhkan keinotekoisien ja luonnollisen radioaktiivisuuden aiheuttamaa säteilyaltistusta ja sen rajoittamistarvetta alettiin tutkia Säteilyturvakeskuksessa (STUK) vuonna 1996. Tavoitteena oli arvioida säteilytilanne sekä tuhkan käsittelyssä että käytettäessä tuhkaa hyödyksi eri tavoin. Näytteenotto kohdistui 22 joko kokonaan tai osittain puuenergiaa tuottavaan laitokseen. Suurin osa näytteistä otettiin kemiallisen metsäteollisuuden polttokattiloista, sahoilta tai kaukolämpölaitoksista, joissa sovellettiin useimmiten leijukerros polttoa. Näytteitä hankittiin sekä pohjattä lentotuhkasta vuosina 1996 - 1997 yhteensä 87 kpl.

Radionuklidien aktiivisuuspitoisuudet määritettiin muun muassa kuivassa lentotuhkassa, joka oli saatu yli 80 % puuta sisältävistä polttoaineista. Pitoisuuksien keskiarvot pienenevät seuraavassa järjestyksessä:  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{235}\text{U}$ , ja vaihtelivat välillä 2000 - 50 Bq kg<sup>-1</sup>. Pohjatuhkassa suuruusjärjestys oli tuskin havaittavaa  $^{210}\text{Pb}$ :tä lukuunottamatta sama, mutta pitoisuudet olivat pienemmät kuin lentotuhkassa. Alkalimetallien (K, Cs) isotopit liukenivat NH<sub>4</sub>Ac-uurossa arinatuhkasta vähemmän kuin lentotuhkasta. Raskaampien luonnon nuklidien liukoisuus oli vähäistä. – Kaikilla tutkituilla laitoksilla saavutettiin tuhkan käsittelyn turvallisuustavoitteet, jotka on asetettu turvetuhkalle Säteilyturvakeskuksen ST-ohjeessa 12.2. Tuhkan käyttö maarakentamiseen oli vähäistä. Sen lisääminen olisi edellyttänyt usein lisäselvityksiä, kuten kuvausta tuhkan ohella maahan lisättävien säteilyä vaimentavien aineiden käyttötavasta. Metsänlannoitus puun tuhalla lisää vähän ulkoista säteilyä metsässä, mutta pienentää useimmiten puutavarasta, marjoista, sienistä ja riistanlihasta saatavia annoksia.

RANTAVAARA, Aino, MORING, Mikael. *Radioactivity of wood ash. (STUK-A177). Helsinki 2001, 41 p.*

ISBN 951-712-401-5

ISSN 0781-1705

**Keywords** Ash, bioenergy, fertilisation, fuel wood, fluidised bed combustion, radiation exposure, radiation protection, radionuclides, safety requirement,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$

## ABSTRACT

STUK has investigated natural and artificial radioactivity in wood ash and radiation exposure from radionuclides in ash since 1996. The aim was to consider both handling of ash and different ways of using ash. In all 87 ash samples were collected from 22 plants using entirely or partially wood for their energy production in 1996 - 1997. The sites studied represented mostly chemical forest industry, sawmills or district heat production. Most plants used fluidised bed combustion technique. Samples of both fly ash and bottom ash were studied.

The activity concentrations of radionuclides in samples of, e.g., dried fly ash from fuel containing more than 80% wood were determined. The means ranged from 2000 to less than 50 Bq kg<sup>-1</sup>, in decreasing order:  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{235}\text{U}$ . In bottom ash the radionuclide contents decreased in the same order as in fly ash, but were smaller, and  $^{210}\text{Pb}$  was hardly detectable. The NH<sub>4</sub>Ac extractable fractions of activities for isotopes of alkaline elements (K, Cs) in bottom ash were lower than in fly ash, whereas solubility of heavier isotopes was low. – Safety requirements defined by STUK in ST-guide 12.2 for handling of peat ash were fulfilled at each of the sites. Use of ash for land-filling and construction of streets was minimal during the sampling period. Increasing this type of ash use had often needed further investigations, as description of the use of additional materials that attenuate radiation. Fertilisation of forests with wood ash adds slightly to the external irradiation in forests, but will mostly decrease doses received through use of timber, berries, mushrooms and game meat.

# SISÄLLYSLUETTELO

sivu

ALKUSANAT	3
TIIVISTELMÄ	4
ABSTRACT	5
1 JOHDANTO	7
1.1 Tutkimuksen tausta	7
1.2 Tutkimuksen tavoite	10
2 AINEISTO JA MENETELMÄT	11
2.1 Näytteet	11
2.2 Näyteanalyysit	11
2.3 Tulosten käsittely	14
3 TULOKSET JA NIIDEN TARKASTELU	15
3.1 Radionuklidien aktiivisuuspitoisuudet tuhkassa	15
3.2 <sup>137</sup> Cs:n aktiivisuuspitoisuuksien vaihtelu	22
3.3 Radionuklidien liukoisuus	23
4 SÄTEILYALTISTUS	26
4.1 Tuhkan käsittely, varastointi ja käyttö maarakentamiseen tai betonin lisäaineena	26
4.2 Tuhkan käyttö metsien lannoitteena	30
4.2.1 Ulkoinen säteily tuhkan radionuklideista	30
4.2.2 Sisäinen säteily tuhkan radionuklideista	32
4.2.3 Metsäkasvillisuuden <sup>137</sup> Cs-pitoisuudet lannoituksen jälkeen	33
4.2.4 Tuhkalannoitus ja säteilyaltistuksen rajoittamistarve	34
5 JOHTOPÄÄTÖKSET	36
KIRJALLISUUSVIITTEET	38

# 1 JOHDANTO

## 1.1 Tutkimuksen tausta

Puuston ja muun metsäkasvillisuuden cesium  $^{137}$  -sisältöön vaikuttaa edelleen Tshernobylin ydinvoimalaitosonnettomuuden seurauksena keväällä 1986 maahamme levinnyt radioaktiivinen laskeuma (kuva 1). Raakapuun käytön kannalta kontaminaatio on lievä. Puun tuhkan radioaktiivisuus voi kuitenkin edellyttää lisäselvityksiä, jos energiantuotantoon käytetään massapuun kuorta tai haketta sellaisista metsistä, joissa  $^{137}$ Cs:n määrä ja kertyminen puustoon on oloissamme huomattavan suuri. Myös maaperän luonnolliset radionuklidit joutuvat osittain kasveihin ja edelleen tuhkaan.

Puun tai muun eloperäisen aineen palaessa sen sisältämät radioaktiiviset isotoopit konsentroituvat suureksi osaksi tuhkaan. Savukaasupäästöjen mukana niitä leviää jonkin verran ympäristöön. Puun palaessa tulipesän lämpötila on 800 - 900 °C. Osa radioaktiivisista aineista höyrystyy, mutta kiinnittyy tuhkahiukkasiin savukaasun jäähtyessä. Ilmakehään vapautuu polton aikana radioaktiivisia aineita yleensä vain pieniä määriä, ja ympäristön asukkaat saavat hengityksen kautta hyvin vähän säteilyä. Esimerkiksi Ruotsissa tehdyn tutkimuksen mukaan annokset ovat alle 0,001 mSv vuodessa (Hedvall 1997). Suomessa uusimpien suurten polttolaitosten hiukkaserottimien erotusaste on yli 99,9 %, mutta pienissä, esimerkiksi sahojen polttokattiloissa hiukkaserotus voi olla selvästi pienempi (Leskelä 1997). Hengitysansios ympäristön asukkaille on tällöinkin pieni.

Ravinnepitoisuutensa takia puun tuhkaa arvostetaan ja sen käyttö on usein erilaista kuin turvetuhkan käyttö. Puun tuhka soveltuu hyvin esimerkiksi suometsien lannoitukseen. Tuhkalannoituksella voi olla joko suoraa tai välillistä vaikutusta metsistä ja metsätalouden lopputuotteista saataviin säteilyannoksiin. Puun tuhka sisältää konsentroituneena samoja radionuklideja, joita polttoaineessa on laimeina pitoisuuksina. Ulkoinen säteily maan pintakerroksessa voi siten lisääntyä tuhkalannoituksen jälkeen. Lisäys riippuu tuhkan gammasäteilyä lähettävien radionuklidien ominaisuuksista ja aktiivisuuslisäyksestä pinta-alaa kohti.

Ravinteiden ohella tuhkasta vapautuu liukoisia radioaktiivisia aineita maaperään, ja ihminen voi saada sisäistä säteilyä ravintoketjujen kautta. Sisäi-

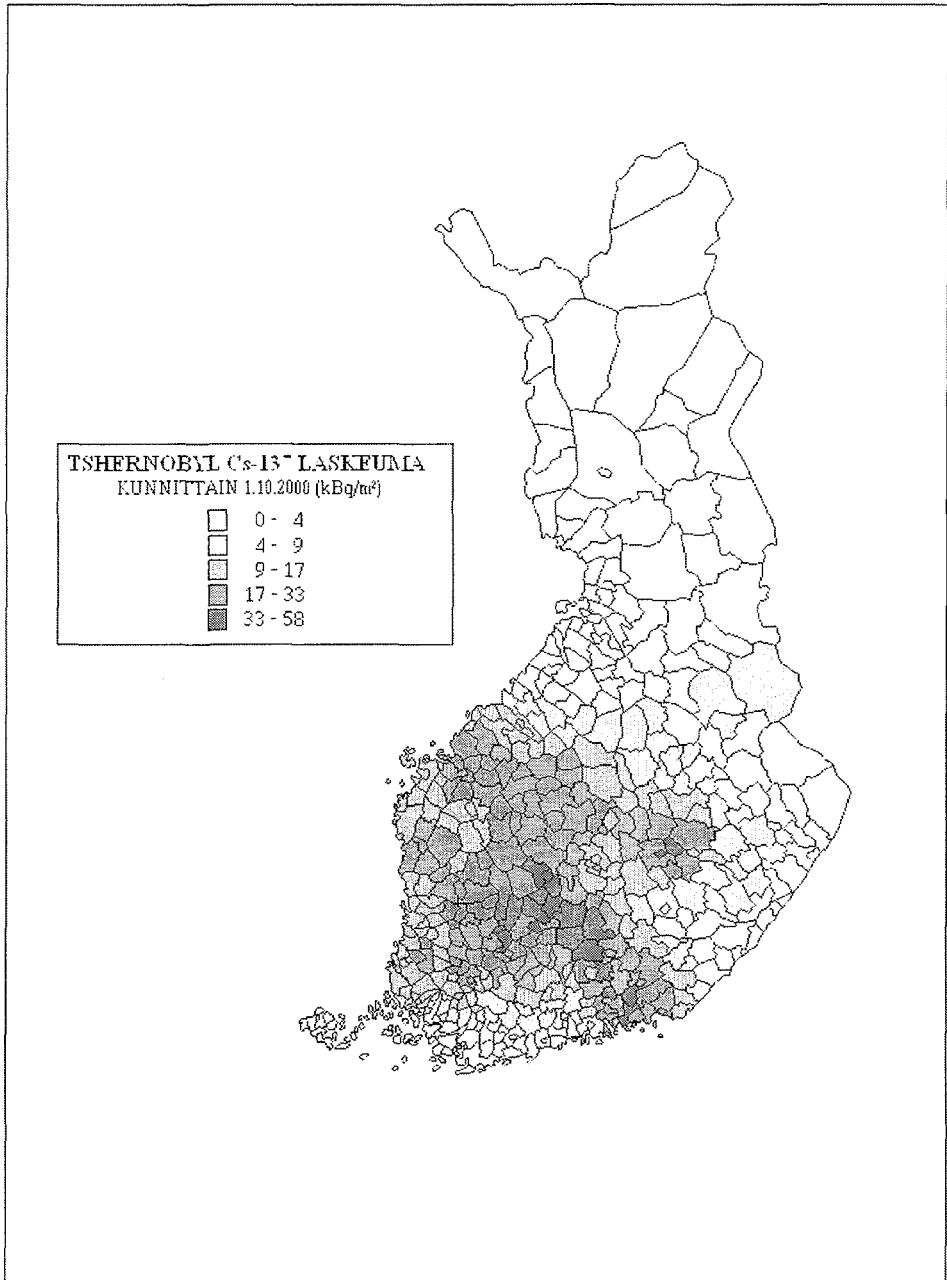


nen altistus kuitenkin vähenee usein siitä, mikä se olisi ilman lannoitusta, koska ravinnelisyys vähentää sekä lisättyjen että maassa ennestään olevien radioaktiivisten aineiden kulkeutumista metsämaasta kasveihin. Näin tapahtuu varsinkin niukkaravinteisilla kasvupaikoilla. Lannoituksen vaikutus on metsikkökohtainen. Maaperän luonnolliset ja keinotekoiset radionuklidit, tuhkan mukana lisätyt radioaktiiviset aineet, tuhkan ominaisuudet lannoitteena sekä metsikön kasvuolosuhteet vaikuttavat siihen, millaiset tuhkaannokset aiheuttavat puuston ja muun kasvillisuuden lisäsaastumista tai aktiivisuuspitoisuuksien vähenemistä (Kaunisto ym. 2000; Levula ym. 2000, Moberg ym. 1999).

Puihin kertyy edelleen hitaasti radioaktiivista cesiumia, ja  $^{137}\text{Cs}$ -aktiivisuus on samanlaisissa metsissä likimain suoraan verrannollinen paikalliseen laskeumaan. Puuston  $^{137}\text{Cs}$ -pitoisuudet ovat keskimäärin suurimmat nuorissa metsissä. Kotimaisten puulajien  $^{137}\text{Cs}$ :n otossa ei ole suurtakaan eroa. Sen sijaan puun eri osien aktiivisuuspitoisuudet vaihtelevat. Puhtainta on kuorittu runkopuu. Aktiivisimpia ovat vuosikasvaimet ja neulaset (Moberg ym. 1999, Raitio ja Rantavaara 1994). Kuorten aktiivisuuspitoisuudet ovat edelleen monikertaiset puuainekseen verrattuna (STUK-A133, Rantavaara 1996). Tyvestä latvaan siirryttäessä kaikkien puun osien aktiivisuudet kasvavat jonkin verran (Moberg ym. 1999).

Radioaktiivisen laskeuman tai tuhkalannoituksen mukana metsiin joutunut  $^{137}\text{Cs}$  pysyy kauan metsien ravinnekierrossa, mistä se poistuu lähinnä radioaktiivisen hajoamisen kautta 30 vuoden puoliintumisajalla. Vain muutama prosentti metsikön radioaktiivisesta cesiumista poistuu runkopuun mukana päätehakkuun yhteydessä (STUK-A133, Rantavaara 1996).

Suuria tuhkamääriä syntyy sekä metsäteollisuuden kuorikattiloissa että muualla lämpöä ja sähköä tuottavissa voimalaitoksissa. Puupolttoaineilla tuotettiin Suomessa 19 % energian kokonaiskulutuksesta vuonna 1998 (Peltonen 1999). Puun poltosta syntyi energiateollisuudessa tuhkaa vuosina 1995 - 1996 noin 100 000 tonnia vuodessa (Anttila 1998, Karessuo 1996). Huomattavin puuenergian ja siten tuhkan tuottaja on kemiallinen metsäteollisuus, missä massapuun kuoret sekä jätevesien puhdistuksessa syntyvät lietteet poltetaan. Myös sahoilla syntyy jätepuuta, joka poltetaan laitosalueen kattiloissa tai viedään muualle energiantuotantoon käytettäväksi.



**Kuva 1.** Suomen kuntien jako viiteen ryhmään Tshernobyl-laskeuman <sup>137</sup>Cs:n mukaan (Arvela ym. 1990).

Biopolttoaineen osuus energiantuotannosta on Suomessa teollisuusmaiden suurin. Puun, etenkin metsähakkeen käyttöä tullaan ilmeisesti edelleen lisäämään. Huomattavana syynä tähän on Euroopan unionin tavoite lisätä bioenergian osuutta energiantuotannosta, mikä on ilmaistu EU:n valkoisessa kirjassa uusiutuvista energianlähteistä (EU:n komissio 1997). Suomessa lisäys on mahdollinen kasvattamalla lähinnä puun osuutta. Puuta poltetaan usein yhdessä turpeen, hiilen tai metsäteollisuuden sivutuotteiden kanssa.

Tuhkan sisältämät gamma-säteilyä lähettävät isotoopit aiheuttavat ulkoista säteilyä siellä missä tuhkaa on suurina määrinä, esimerkiksi läjitysalueilla ja siirrettäessä tuhkaa laitospaikoilta. Työpaikkojen turvallisuustavoitteet on annettu laitosten työntekijöiden suojelemiseksi. Tuhkan käytölle maantäyttöön, maisemointiin ja kadun- tai tienrakennukseen on erilliset, väestön säteilyaltistusta koskevat ohjeet. Metsien tuhkalannoituksesta yleisölle ja työntekijöille aiheutuvaa säteilyaltistusta tulee rajoittaa samoin periaattein kuin muustakin tuhkan käytöstä aiheutuvaa altistusta.

## 1.2 Tutkimuksen tavoite

Tutkimuksen tavoitteena oli saada kokonaiskuva puuenergian tuotannossa syntyvän tuhkan radioaktiivisuudesta ja sen aiheuttamasta säteilyaltistuksesta. Eri osissa maata sijaitsevien erityyppisten laitosten tuhkanäytteistä analysoitiin sekä luonnon radionuklideja että ydinlaitosonnettomuuksien ja ydinasekokeiden laskeuman radionuklideja. Liukoisuuskokein selvitettiin eri radionuklidien todennäköisyyttä joutua nopeasti ravinnekiertoon käytettäessä tuhkaa maanparannusaineena.

Tutkimus kohdistui sekä metsäteollisuuden kuorikattiloihin ja sahoihin että yksittäisiin sähkö- ja kaukolämpölaitoksiin. Raportissa esitellään puun tuhkan radioaktiivisuustilanne ja arvioidaan sen pohjalta säteilyaltistusta. Tuhkan käsittelyyn ja sijoittamiseen sovelletaan Suomessa alunperin polttoturpeen tuhkalalle määritellyjä turvallisuustavoitteita (Säteilyturvallisuusohje ST 12.2.). Lisäksi arvioidaan metsien tuhkalannoituksen säteilyvaikutuksia soveltaen uusimman metsänhoitoon liittyvän radioekologisen tutkimuksen tuloksia. Raportti on tarkoitettu palvelemaan puuenergia-alaa siten, että säteilyongelmien tunnistaminen ja niihin hyvien ratkaisujen löytäminen olisi mahdollisimman selväpiirteistä. Tietoa tarvitsevat erityisesti tuhkan käsittelyn ja käytön säteilyturvallisuudesta vastaavat toiminnan harjoittajat.

## 2 AINEISTO JA MENETELMÄT

### 2.1 Näytteet

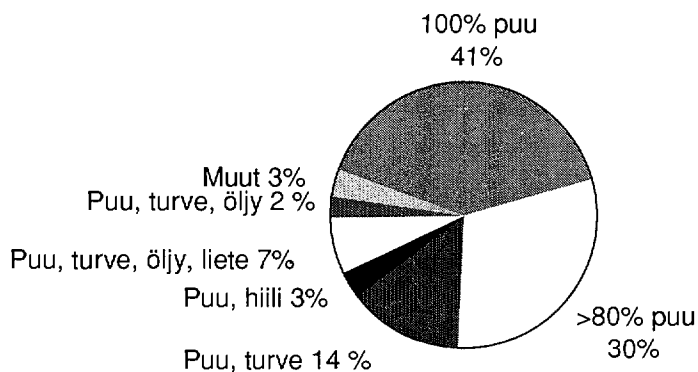
Tutkimukseen osallistui kymmenen selluloosatehdasta, kahdeksan sahaa ja neljä kaukolämpölaitosta. Näytteitä otettiin maaliskuun 1996 ja elokuun 1997 välisenä aikana massateollisuuden kuorikattiloista 27 kpl, sahoilta 39 kpl ja kaukolämpölaitoksista 21 kpl. Näytteitä otettiin sekä lentotuhkasta (51 kpl) että pohjatuhkasta (29 kpl). Lisäksi kerättiin seitsemän muuta tuhkanäytettä. Lentotuhkanäytteet otettiin sähkösuodattimilta tai syklonista. Pohjatuhkanäytteet otettiin pian tulipesästä poiston jälkeen.

Näytteentoimittaja ilmoitti yleensä polttoaineen koostumuksen, laitoksessa sovelletun polttotekniikan ja tuhkan sijoitus- tai käyttötavan. Yleisin polttotekniikka oli leijukerros poltto, ja lisäksi esiintyi arinapoltto ym. tekniikkaa. Tieto vuosittain kertyvästä tuhkamäärästä ja polttoaineen hankinta-alueesta saatiin suuresta osasta laitoksia. Kaikkiaan polttoaineen (puu tai turve) hankinta-alueet kattoivat huomattavan osan maamme metsäalasta, ja eri laskeumavyöhykkeet (kuva 1) olivat edustettuina. Tuhkanäytteet ryhmiteltiin analyysejä varten polttoaineen tyyppin mukaan (kuva 2).

Tuhkanäytteistä voitiin erottaa 19 paria, jotka edustivat samoilta laitoksilta samanaikaisesti otettua lento- ja pohjatuhkaa. Näitä näytepareja käytettiin pohja- ja lentotuhkan välisten erojen tutkimiseen. Laitoskohtaisesti näytteenottoväli vaihteli viikosta noin kuukauteen. Näytteiden lukumäärä vaihteli laitoksittain yhdestä yhdeksään. Lentotuhkan aktiivisuuspitoisuuksien laitoskohtaista hajontaa tarkasteltiin vähintään neljä näytteenottokertaa suorittaneiden 12 laitoksen näytteistä.

### 2.2 Näyteanalyysit

Tuhkasta määritettiin gammaspektrometrisesti keinotekoisia ja luonnon hajoamissarjoihin kuuluvia radionuklideja ( $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ) sekä kaliumin isotooppi  $^{40}\text{K}$ , jota on vakio-osuus, 0,0117 % kaliumista. Radiokemiallisesti analysoitiin beetasäteilyä lähettävä  $^{90}\text{Sr}$ , alfa-aktiivinen  $^{226}\text{Ra}$  (jos sen



**Kuva 2.** Tutkittujen tuhkanäytteiden jako polttoainelajin mukaan. Puu tarkoittaa tässä kuorta, purua tai haketta.

pitoisuus oli liian pieni gammaspektrometrilla määritettäväksi), sekä beetasäteilyyn perustuen  $^{210}\text{Pb}$ , jonka pienienerginen gammasäteily ei soveltunut kvantitatiiviseen määrittämiseen. Lisäksi tutkittiin eri isotooppien liukoisuutta. Näytteiden kuiva-ainepitoisuus määritettiin  $105\text{ }^{\circ}\text{C}$ :ssa.

*Uuttokokeet.* Tuhkan radio-isotooppien liukoisuuseroja tutkittiin, jotta voidaan erottaa helppoliukoiset isotoopit muista ja verrata tuhkalaatuja keskenään. Uuttoliuoksena oli hapan ( $\text{pH} = 4,65$ ) ammonium-asetaatti, eli heikon hapon lievästi hapan puskuriliuos. Menetelmää on käytetty laajasti maan ravinteiden liukoisuustutkimuksissa (Vuorinen & Mäkitie 1955).

Yhteen litraan liuosta sekoitettiin 200 g tuhkaa (kuivapainoa vastaava määrä). Seosta uutettiin ravistelijassa huoneenlämpötilassa yhden tunnin ajan. Jos liuos muuttui emäksiseksi, uutto toistettiin siten, että  $\text{pH}$ :ta seurattiin uuton aikana ja se säädettiin tarvittaessa etikkahapolla lähtöarvoon. Tavoitteena oli pitää liuos happamana koko uuton ajan.

*Gamma-aktiivisuuden mittaukset.* Näytteet (86 kpl) mitattiin alhaistaustaisilla gammaspektrometreillä, joissa oli germanium-ilmaisimet (HPGe) (Kle-

mola & Leppänen 1997). Tuhkanäytteet mitattiin saapumiskosteudessa 0,5 litran Marinelli-astioissa, ja näytteitä seisotettiin mittaustastiaan pakattuina noin kuukauden ajan. Tällöin saavutettiin radioaktiivisuustasapaino radonin ja sen tytärnuklidien välillä, mikä on edellytys  $^{226}\text{Ra}$ -määritykselle (Markkanen 1988).  $^{226}\text{Ra}$ -pitoisuus mitattiin radonin tytärnuklidien  $^{214}\text{Pb}$ :n ja  $^{214}\text{Bi}$ :n avulla, ja tulosta pystyttiin usein varmentamaan  $^{226}\text{Ra}$ :n oman gammasiirtymän avulla.  $^{226}\text{Ra}$ :n gammahuippua häiritsee kuitenkin  $^{235}\text{U}$ , jolla on gamma-siirtymä melkein saman energian kohdalla.  $^{235}\text{U}$ :lle saadaan joissakin tapauksissa arvio toisen, intensiteetiltään pienemmän gammahuipun avulla. Näin tehdyissä tarkasteluissa statistiset mittausrvirheet kasvavat kuitenkin suureksi, joten ne palvelevat lähinnä aktiivisuuspitoisuuden suuruusluokan arviointia ( $^{235}\text{U}$ ) tai tukevat muita tuloksia ( $^{226}\text{Ra}$ ).

Uuttoliuokset mitattiin Marinelli-astiassa mahdollisimman nopeasti uuton jälkeen, jotta vältettäisiin suolojen kiteytymisen aiheuttama näytteen epähomogeenisuus. Tarkistuksen vuoksi uuton tuhka jäännös mitattiin 100 ml:n muovipurkissa sylinterigeometriassa. Mittausaika oli kiinteillä näytteillä 3 - 8 tuntia ja uuttoliuoksilla noin 16 tuntia. Gammasektrit analysoitiin Säteilyturvakeskuksessa ympäristönäytteiden tutkimiseen kehitetyllä Gammaohjelmistolla (Klemola ja Leppänen 1997). Tyypillinen  $^{137}\text{Cs}$ :n mittausepävarmuus (statistinen ja laitteiston kalibroinnin aiheuttama) oli Marinelli-mittauksilla 3 % ja 100 ml:n näytetilavuutta käytettäessä 4 - 6 %.

Gammamittauksin määritettiin  $^{40}\text{K}$ :n,  $^{134}\text{Cs}$ :n ja  $^{137}\text{Cs}$ :n pitoisuudet tuhkassa, uuttoliuoksessa ja uuton jälkeisessä tuhkassa. Lisäksi määritettiin  $^{226}\text{Ra}$  sekä saatiin arvio  $^{232}\text{Th}$ :lle ja  $^{235}\text{U}$ :lle tuhkassa. Joissakin tuhkanäytteissä pystyttiin havaitsemaan  $^{210}\text{Pb}$  ja määrittämään sen aktiivisuuden suuruusluokka.

*Radiokemialliset määritykset.*  $^{90}\text{Sr}$ -määritystä varten tuhkanäyte liuotettiin ensin suolahapolla ja liuotusjäännös natriumkarbonaattisulatteen avulla.  $^{90}\text{Sr}$  erotettiin alkuainekantajan mukana saostuskemialla soveltaen (Bryant ym. 1959). Näytteen beetaspektri mitattiin alhaistaustaisella nestetuikelaskurilla. Määrityksen mittaasepävarmuus oli kaikki työvaiheet huomioon ottaen enintään 10 %. Yhteensä analysoitiin 47 tuhkanäytettä ja niitä vastaavat uuttoliuokset.  $^{226}\text{Ra}$  (20 kpl) ja  $^{210}\text{Pb}$  (28 kpl) määritettiin molemmat samasta tuhkan  $\text{HCl}$ -liukoisesta fraktiosta.  $\text{NH}_4\text{Ac}$ -uuttoliuoksia analysoitiin 82 kappaletta  $\text{Ra}$ :n ja 71  $\text{Pb}$ :n suhteen. Radium erotettiin  $\text{Ba}$ -kantajaa käyttäen  $\text{BaSO}_4$ :n kemiaan perustuvalla erotusmenetelmällä. Alfa-aktiivisuus mitattiin alhaistaustaisella nestetuikespektrometrilla hienojakoisesta  $\text{Ba}(\text{Ra})$ -sakasta, joka

oli suspendoitu geelimäiseen tukeaineeseen.  $^{210}\text{Pb}$  erotettiin lyijykantajan mukana radiumin erotuksen yhteydessä saatavasta fraktiosta, ja sen beeta-aktiivisuus mitattiin nestetuikegeeliin sekoitetusta sakasta (Helariutta ym. 2000).

## 2.3 Tulosten käsittely

Radionuklidien aktiivisuuspitoisuudet ilmoitetaan tässä raportissa becquereleinä tuhkan kuiva-ainekiloa (105 °C) kohti ( $\text{Bq kg}^{-1}$  ka.). Aktiivisuudet on korjattu radioaktiivisen hajoamisen suhteen siten, että ne vastaavat näytteenottoajankohtaa.

Havaittujen aktiivisuuspitoisuuksien eroja testattiin järjestyslukuihin perustuvilla testeillä, esimerkiksi Wilcoxonin testillä. Korrelaatioita tarkasteltiin käyttäen Spearmanin järjestyslukukorrelaatiotestiä.

## 3 TULOKSET JA NIIDEN TARKASTELU

### 3.1 Radionuklidien aktiivisuuspitoisuudet tuhkassa

Kaikkien radionuklidien aktiivisuudet vaihtelivat 2 - 3 kertaluokan sisällä, ja esimerkiksi  $^{137}\text{Cs}$ :n vaihteluväli oli noin 20 - 7500 Bq kg<sup>-1</sup> (Taulukko I). Vähiten tuhkassa oli raskaita luonnon radionuklideja. Niiden aktiivisuuspitoisuudet olivat keskimäärin alle 100 Bq kg<sup>-1</sup>. Yli 80-prosenttisesti puuperäiset tuhkat ryhmiteltiin yhteen tarkasteltaessa nuklidien aktiivisuuspitoisuuksia kuivas- sa tuhkassa (kuva 3, taulukot II - IV).

*Cesium 137, kalium 40 ja strontium 90.* Lähinnä puuperäisten ja muiden lentotuhkien  $^{137}\text{Cs}$ -aktiivisuuksien välillä ei ollut merkitsevää eroa.  $^{40}\text{K}$ :tä ja  $^{90}\text{Sr}$ :tä oli eniten tuhkassa, joka syntyi poltettaessa pelkkää puuta.

Samoja laitoksia edustavia lento- ja pohjatuhkanäytteitä verrattaessa ainoastaan  $^{137}\text{Cs}$ :n aktiivisuustaso oli erilainen näillä tuhkalajeilla. Suhde lento- ja pohjatuhkan cesiumpitoisuuksien välillä oli 1,7. Tulos on johdonmukainen, kun tiedetään, että cesiumin isotoopit ovat poltossa helposti haihtuvia ja kiinnittyvät savukaasun jäähtyessä tuhkan hienojakoiseen osaan, lentotuhkaan (Jantunen ym. 1992). Alhainen  $^{137}\text{Cs}$ -pitoisuus alle 80 % puuta sisältäneen polttoaineen pohjatuhkassa selittyy sillä, että kaikki neljä näytettä olivat samalta alhaisen  $^{137}\text{Cs}$ -laskeuman alueella Lapissa toimivalta laitokselta, jossa poltettiin yli 70 % turvetta sisältävää polttoaineseosta. Strontium 90:llä mahdollisten tuhkatyyppistä johtuvien erojen havaitsemista rajoitti pohjatuhkien pieni analyysimäärä. (Samoja laitoksia edustavia lento- ja pohjatuhkapareja tutkittiin vain 4 kpl.). Strontium luokitellaan aineeksi, jonka kiinnittyminen korkeissa lämpötiloissa on helposti haihtuvien ja vähiten haihtuvien aineiden välillä (Jantunen ym. 1991). Siten ei ole yllättävää löytää sama  $^{90}\text{Sr}$ :n pitoisuustaso sekä pohja- että lentotuhkasta. Kaliumtulosten vertailua häirit- si pohjatuhkan mukana olleen petihiekan korkea kaliumpitoisuus verrattuna pitoisuuksiin polttoaineissa.

Puuperäisissä pohjatuhkissa eri nuklidien välillä ei löytynyt selviä korrelaatioita. Lentotuhkissa sen sijaan kaikki nuklidit (Cs, Sr, K) korreloivat keskenään luottamustason ollessa yli 90 %, mutta alle 95 %. Yli 80 % puuta sisältäneen polttoaineen lentotuhkassa  $^{40}\text{K}$ :n ja  $^{137}\text{Cs}$ :n pitoisuudet olivat selvästi

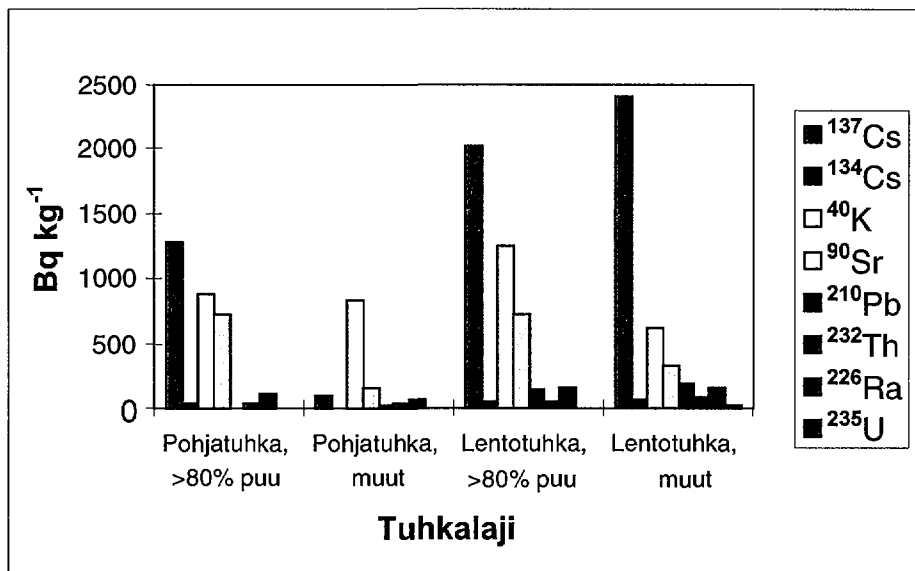


**Taulukko I.** Kaikkien tuhkanäytteiden radionuklidipitoisuudet ( $Bq\ kg^{-1}\ ka.$ ).

Tilastollinen suure	<sup>40</sup> K	<sup>90</sup> Sr	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>210</sup> Pb	<sup>226</sup> Ra	<sup>232</sup> Th	<sup>235</sup> U
Havaintojen lukumäärä	86	47	86	86	46	86	86	86
Aritmeettinen keskiarvo	911	570	36	1737	155	133	45	3
Standardi- poikkeama	513	373	39	1684	93	93	26	5
Minimi	38	12	0,4	22	16	5	2	0
Maksimi	3273	1655	186	7507	464	533	126	31

suurempia kuin vuoden 1994 tuotantoa edustavien turvenäytteiden aktiivisuuksista lasketut turvetuhkan pitoisuudet (Helariutta ym. 2000).

**Raskaat luonnonnuklidit.** Raskaat luonnonnuklidit (Th, Ra) tiivistyvät poltossa pääosin tuhkaan. <sup>210</sup>Pb:n ja <sup>226</sup>Ra:n pitoisuudet tuhkassa vaihtelivat muutamasta becquerelistä useaan sataan becquereliin kilossa kuiva-ainetta. Torium 232 havaittiin kaikissa tuhkanäytteissä, tuhkan kuiva-aineessa sitä oli keskimäärin  $45\ Bq\ kg^{-1}$  vaihteluvälin ollessa 2 -  $126\ Bq\ kg^{-1}$ . Uraani 235:ttä oli



**Kuva 3.** Radionuklidien aktiivisuuspitoisuuksien aritmeettiset keskiarvot tuhkan kuiva-aineessa.

puun tuhkassa vain muutamia becquerelejä kilossa. Suurin pitoisuus 31 Bq kg<sup>-1</sup> mitattiin puun ja turpeen seospoltossa syntyneessä tuhkassa.

**Taulukko II.** Lentotuhkanäytteiden radionuklidipitoisuudet (Bq kg<sup>-1</sup> ka.) polttoaineryhmittäin. *N* = havaintojen lukumäärä, *x* = aritmeettinen keskiarvo, *s* = standardipoikkeama, *Min* = havaintosarjan minimi, *Max* = havaintosarjan maksimi.

Tilastoll. suure	<sup>40</sup> K	<sup>90</sup> Sr	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>210</sup> Pb	<sup>226</sup> Ra	<sup>232</sup> Th	<sup>235</sup> U
<b>100 % puu</b>								
<i>N</i>	14	13	14	14	8	14	14	14
<i>x</i>	1455	816	46	2485	193	180	44	2
<i>s</i>	844	310	32	1727	136	74	14	2
Min	656	501	3	336	70	97	21	0
Max	3273	1340	99	5715	464	338	65	6
<b>&gt;80 % puuta</b>								
<i>N</i>	16	9	16	16	13	16	16	16
<i>x</i>	1059	602	33	1625	111	130	43	2
<i>s</i>	215	211	36	1569	46	38	9	0,7
Min	758	293	2	184	24	54	27	0,8
Max	1411	967	117	5152	185	205	65	3
<b>Puu, turve</b>								
<i>N</i>	11	8	11	11	10	11	11	11
<i>x</i>	618	342	85	3583	252	165	84	9
<i>s</i>	157	92	66	2527	44	105	33	8
Min	363	238	2	198	185	75	44	0,6
Max	945	469	186	7507	336	400	126	31
<b>Puu, kivihili</b>								
<i>N</i>	3	3	3	3	3	3	3	3
<i>x</i>	925	327	57	2424	110	205	69	6
<i>s</i>	125	55	11	481	36	11	4	1
Min	801	271	47	2003	89	192	65	5
Max	1050	381	69	2949	152	212	73	7
<b>Puu, turve, öljy, liete</b>								
<i>N</i>	3	1	3	3	3	3	3	3
<i>x</i>	545	309	2	307	194	97	42	2
<i>s</i>	193	–	1	126	19	24	6	0,7
Min	366	–	1	178	171	82	37	1
Max	749	–	4	430	207	124	48	2

**Taulukko II jatkuu.** Lentotuhkanäytteiden radionuklidipitoisuudet ( $Bq\ kg^{-1}$  ka.) polttoaineryhmittäin.  $N$  = havaintojen lukumäärä,  $x$  = aritmeettinen keskiarvo,  $s$  = standardipoikkeama,  $Min$  = havaintosarjan minimi,  $Max$  = havaintosarjan maksimi.

Tilastollinen suure	<sup>40</sup> K	<sup>90</sup> Sr	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>210</sup> Pb	<sup>226</sup> Ra	<sup>232</sup> Th	<sup>235</sup> U
<b>Puu, turve, kivihiili</b>								
$N$	2	–	2	2	2	2	2	2
$x$	421	–	6	258	85	179	72	17
$s$	37	–	0,7	38	39	57	2	4
Min	395	–	5	232	57	139	71	14
Max	448	–	6	285	113	219	74	20
<b>Puu, muut<sup>1)</sup> polttoaineet</b>								
$N$	2	1	2	2	2	2	2	2
$x$	419	98	29	1177	121	83	60	5
$s$	33	–	37	1446	78	18	10	3
Min	396	–	3	154	66	70	53	3
Max	442	–	55	2200	177	96	67	7
<b>Kaikki lentotuhkanäytteet</b>								
$N$	51	35	51	51	41	51	51	51
$x$	984	576	46	2181	167	154	55	4
$s$	596	309	46	1950	91	72	24	6
Min	363	98	1	154	24	54	21	0
Max	3273	1340	186	7507	464	400	126	31

<sup>1)</sup> Muut kuin turve, kivihiili, öljy tai liete.

**Taulukko III.** Pohjatuhkanäytteiden radionuklidipitoisuudet (Bq kg<sup>-1</sup> ka.) polttoaineryhmittäin. *N* = havaintojen lukumäärä, *x* = aritmeettinen keskiarvo, *s* = standardipoikkeama, *Min* = havaintosarjan minimi, *Max* = havaintosarjan maksimi.

Tilastollinen suure	<sup>40</sup> K	<sup>90</sup> Sr	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>210</sup> Pb	<sup>226</sup> Ra	<sup>232</sup> Th	<sup>235</sup> U
<b>100 % puu</b>								
<i>N</i>	18	5	18	18	–	18	18	18
<i>x</i>	811	857	26	1346		117	26	1
<i>s</i>	363	629	17	978		150	24	1
<i>Min</i>	90	12	0,4	22		5	2	0
<i>Max</i>	1669	1655	58	3465		533	77	4
<b>&gt;80 % puuta</b>								
<i>N</i>	6	1	6	6	–	6	6	6
<i>x</i>	1065	32	22	1110		73	26	1
<i>s</i>	315		12	628		25	5	0,6
<i>Min</i>	693		2	119		27	18	0,6
<i>Max</i>	1642		39	1963		101	32	2
<b>Puu, turve</b>								
<i>N</i>	1	–	1	1	1	1	1	1
<i>x</i>	805		0,9	87	21	69	29	0,8
<b>Puu, turve, öljy, liete</b>								
<i>N</i>	3	1	3	3	1	3	3	3
<i>x</i>	847	150	0,7	96	16	62	26	1
<i>s</i>	39		0,3	18		11	3	0,4
<i>Min</i>	805		0,5	78		49	23	0,7
<i>Max</i>	881		1,0	113		69	29	2
<b>Kaikki pohjatuhkanäytteet</b>								
<i>N</i>	28	7	28	28	2	28	28	28
<i>x</i>	869	638	21	1117	18	100	26	1
<i>s</i>	336	636	17	929	4	122	19	0,9
<i>Min</i>	90	12	0,4	22	16	5	2	0
<i>Max</i>	1669	1655	58	3465	21	532	77	4

**Taulukko IV.** Radionuklidipitoisuudet ( $Bq\ kg^{-1}\ ka.$ ) polttoaineryhmittäin näytteissä, jotka edustavat muuta kuin lento- tai pohjatuhkaa.  $N$  = havaintojen lukumäärä,  $x$  = aritmeettinen keskiarvo,  $s$  = standardipoikkeama,  $Min$  = havaintosarjan minimi,  $Max$  = havaintosarjan maksimi.

Tilastollinen suure	<sup>40</sup> K	<sup>90</sup> Sr	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>210</sup> Pb	<sup>226</sup> Ra	<sup>232</sup> Th	<sup>235</sup> U
<b>100 % puu</b>								
$N$	2	2	1	2	–	2	2	2
$x$	344	577	49	1018		58	14	0,3
$s$	433	719		1388		61	17	0,5
Min	38	68		36		15	2	0
Max	650	1085		1999		101	25	0,7
<b>&gt;80 % puuta</b>								
$N$	4	2	4	4	2	4	4	4
$x$	654	341	24	1133	82	142	66	7
$s$	43	38	1	39	11	18	19	4
Min	601	314	22	1099	74	120	49	3
Max	702	368	25	1189	90	163	90	12
<b>Puu, muut polttoaineet</b>								
$N$	1	1	1	1	1	1	1	1
$x$	535	341	3	250	86	99	54	3
<b>Muu tuhka, kaikki näytteet</b>								
$N$	7	5	7	7	3	7	7	7
$x$	548	435	24	974	83	112	49	4
$s$	231	382	15	653	8	49	29	4
Min	38	68	3	36	74	15	2	0
Max	702	1085	49	1999	90	163	90	12

\* Muut polttoaineet kuin turve, kivihiili, öljy tai liete.

Vertailu havupuun kuorituhkan arvioituun <sup>137</sup>Cs-pitoisuuteen. Havupuun kuorituhkan <sup>137</sup>Cs-aktiivisuus arvioitiin yksikkölaskeumaa kohti mitatuista kuoren <sup>137</sup>Cs-pitoisuuksista (STUK-A133, Rantavaara 1996) sekä Suomen kuntien Tshernobyl-laskeuman aktiivisuustasoista (Arvela ym. 1990, kuva 1), joihin oli lisätty ydinkokeista Suomen maaperään kertynyt <sup>137</sup>Cs-aktiivisuus pinta-alayksikköä kohti (Saxén 1986). Kokonaislaskeuman aktiivisuus korjattiin radioaktiivisen hajoamisen suhteen vastaamaan päivämäärää 1.10.1997. Pienpuun kuoren puhtaan tuhkan pitoisuuden ovat määrittäneet Hakkila ja Kalaja (1983). Lasketut suuntaa-antavat likiarvot (taulukko V) ylittävät tutkimuksessa havaitut voimalaitosten kuorituhkan <sup>137</sup>Cs-aktiivisuudet likimain

tekijällä 2 – 10. Tuhkanäytteisiin liittyviä puun hankinta-alueita verrattiin laskeumakarttaan (kuva 1). Taulukkoon V on laskettu myös tähän tutkimukseen sahoilta saadun havupuun kuoren ja purun tuhkan  $^{137}\text{Cs}$ -aktiivisuuteen perustuvat likiarvot tuhkan aktiivisuudelle eri laskeumavyöhykkeillä.

Mahdollisuus arvioida tuhkan  $^{137}\text{Cs}$ -pitoisuuksia hankinta-alueen maaperään keräytyneen aktiivisuuden avulla on ilmeisesti kohtalaisen hyvä ainoastaan tutkimuksen ulkopuolelle rajatuissa pienissä polttolaitoksissa kuten maataloilla, joilla polttoaineen koostumus ja hankinta-alue tunnetaan huomattavasti tarkemmin kuin teollisuudessa. Tällöinkin tuhkaan kertyvä  $^{137}\text{Cs}$ -määrä jää laskennallista pitoisuutta pienemmäksi, minkä ovat osoittaneet Moberg ym. (1999). Yhtenä syynä eroon voi olla palamisolosuhteiden mukaan vaihteleva polttoaineen tuhkapitoisuus, joka on käytännössä usein suurempi kuin puupolttoaineen puhtaan tuhkan osuus. Ruotsissa saatua laskeuman ja tuhkan aktiivisuuksien suhdetta soveltaen lasketut kuorituhkan  $^{137}\text{Cs}$ -aktiivisuudet olivat myös huomattavasti pienempiä kuin puhtaan kuorituhkan aktiivisuus-pitoisuudet taulukossa V.

**Taulukko V.** Männyn ja kuusen puhtaan kuorituhkan cesium  $^{137}\text{Cs}$ -aktiivisuuden laskennallisia likiarvoja ( $\text{Bq kg}^{-1} \text{ ka}$ ) Suomessa eri laskeumavyöhykkeillä (kuva 1) vuonna 1997 verrattuina tutkimuksessa havaittuihin sahan jätepuun tuhkan aktiivisuuspitoisuuksiin. Arvioinnin lähtötiedot on selostettu tekstissä.

Alueen kokonaislaskeuma $\text{kBq m}^2$	Puhdas männyn kuorituhka	Puhdas kuusen kuorituhka	Havupuun tuhka (sahan jätepuu)
1 - 5,3 $\text{kBq m}^2$	1200 - 5000	500 - 2200	100 - 800
5,3 - 9,5 "	5000 - 8900	2200 - 3800	500 - 1400
9,5 - 18 "	8900 - 17000	3800 - 7100	1000 - 3000
18 - 34 "	17000 - 32000	7100 - 14000	2000 - 5000
34 - 59 "	32000 - 54000	14000 - 23000	3000 - 9000

### 3.2 <sup>137</sup>Cs:n aktiivisuuspitoisuuksien vaihtelu

Samantyyppisestä tuhkasta vähintään neljä eri aikoina otettua näytettä toimitettiin yhdeksän laitosta (yhteensä 12 näytesarjaa). Niiden avulla tarkasteltiin lähemmin <sup>137</sup>Cs:n vaihtelua. Lentotuhkalla variaatiokerroin (standardipoikkeaman suhde keskiarvoon) oli 0,09 – 0,90 (mukana 7 laitosta) ja pohjatuhkalla 0,15 - 0,26 (4 laitosta). Variaatiokertoimen keskiarvo lentotuhkalle oli 0,40 ja pohjatuhkalle 0,19.

Näytteenottokertojen lisääminen neljästä vähintään kuuteen suurensi variaatiokerrointa, mutta pelkästään keräysjakson pidentäminen ei sitä välttämättä tehnyt. Samanaikaisesti vaikuttivat polttoaineseosten alueellisesta alkupe-  
räästä johtuvat radioaktiivisuuden erot. Harvalla laitoksella poltettiin jatkuvasti pelkkää puuta, ja jos näin tapahtui, puulajit ja niiden osuudet saattoivat vaihdella.

Suurin lentotuhkan <sup>137</sup>Cs-pitoisuuden variaatiokerroin 0,9 havaittiin seitsemän lentotuhkanäytettä lähettäneessä laitoksessa, jonka käyttämä polttoaine oli etupäässä puuta ja turvetta noin 100 km:n säteeltä laitoksen ympäristöstä. Kyseisellä alueella Tshernobyl-laskeuman <sup>137</sup>Cs-aktiivisuus vaihteli laskeumaluokissa 2 - 5 (kuva 1). Lisäksi kolme näytteistä sisälsi myös kivihiilen tuhkaa. Muissa tutkituissa laitoksissa puupolttoaine hankittiin usein jopa 200 km:n säteeltä laitospaikasta. Hankinta-alueet käsittivät tällöin kolmesta viiteen laskeumavyöhykettä, mikä tietysti suurensi tuhkan <sup>137</sup>Cs-pitoisuuksien vaihtelua eri aikoina otetuissa näytteissä.

Tuontipuun osuus metsäteollisuuden raakapuusta oli tutkimusajankohtana huomattava (Sevola 1998), mikä myös voi vaikuttaa havaittuihin pitoisuuksiin. Tuontipuu on laimentanut tuhkan <sup>137</sup>Cs-pitoisuuksia, jos se oli hankittu muuhun polttoaineeseen verrattuna lievän Tshernobyl-laskeuman alueelta, esimerkiksi Itä-Euroopasta. Useimmat näytteenottomittajat eivät maininneet tuontipuuta antamissaan tiedoissa polttoaineen alkuperästä, ehkä siksi että sitä ei oltu erikseen kysytty.

Metsäteollisuuden kuorikattiloissa poltetaan myös jätevedenpuhdistuksen lietettä ja tarvittaessa täydennyspolttoaineena turvetta ynnä muuta. Muut kuin puupolttoaineet voivat helposti muuttaa tuhkan radionuklidipitoisuuksia verrattuna pelkän puun poltossa syntyvään tuhkaan, ja lisäksi tavallisilla seospolttoaineilla turpeella ja biolietteellä on puuta suurempi tuhkapitoisuus.

Sahoilla poltetaan puun kuoren lisäksi purua, joka pienen tuhkapitoisuutensa takia ei laimenna sanottavasti kuusen kuorituhkan aktiivisuutta. Männyllä puru voi sen sijaan laimentaa tuhkan  $^{137}\text{Cs}$ -pitoisuutta, koska männyn kuoren tuhkapitoisuus on selvästi pienempi kuin kuusen.

Pohjoismaisten  $^{137}\text{Cs}$ -mittausten (Moberg ym. 1999, STUK-A133, Rantavaara 1996) mukaan kasvuolosuhteiltaan poikkeavien metsiköiden väliset erot puiden radiocesiumin otossa ovat huomattavia, mikä myös osaltaan suurentaa puun tuhkan radioaktiivisuuden hajontaa.

### 3.3 Radionuklidien liukoisuus

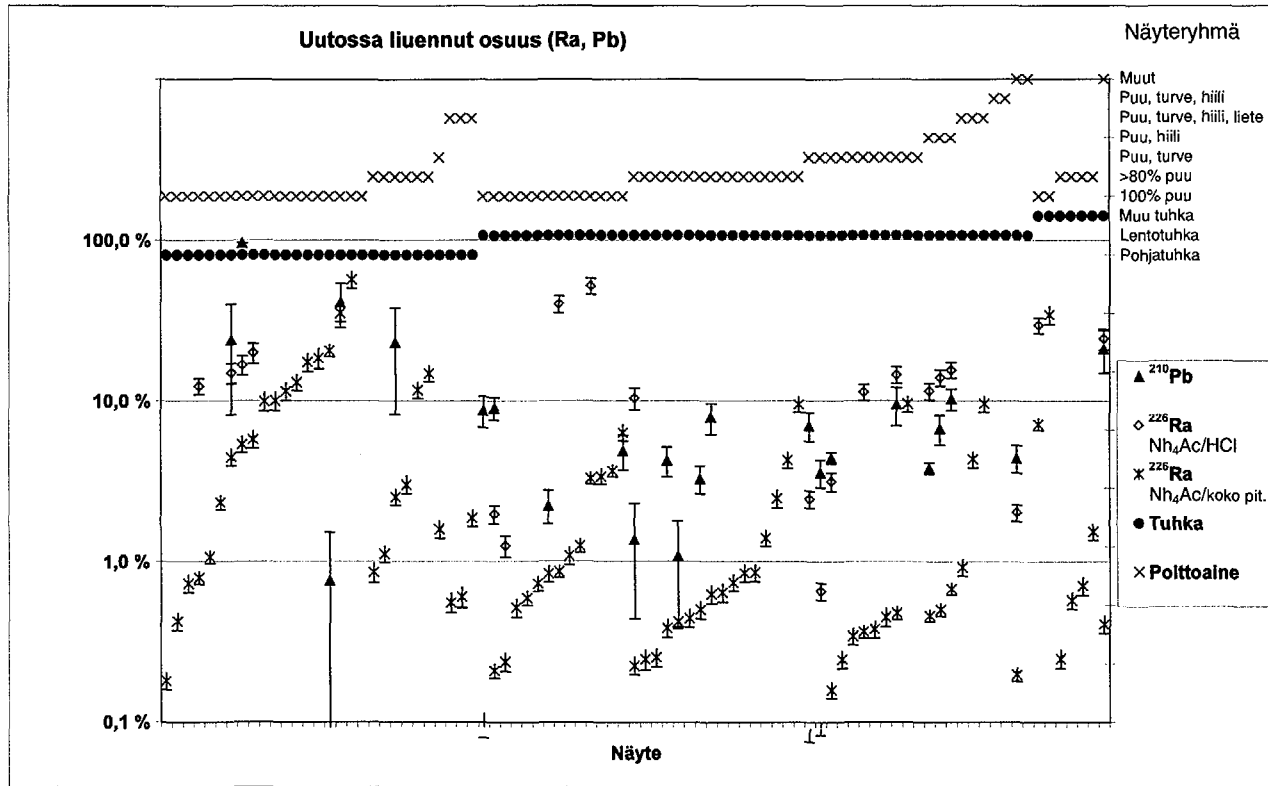
*Cesium 137, kalium 40 ja strontium 90.* Liukoisuustarkasteluissa puhtaat puutuhkat käsiteltiin omana ryhmänään (taulukko VI, kuva 4). Mittaukset näet osoittivat, että jo pieni osuus biolietettä poltossa aiheutti pohjatuhkan kalium 40:n ja cesium 137:n liukoisuuden selvän pienenemisen. Puuperäisissä tuhkissa eri nuklidien liukoisuudet pohja- ja lentotuhkassa eivät eronneet toisistaan merkitsevästi. Sekä lento- että pohjatuhkanäytteissä löytyi selkeä positiivinen korrelaatio kaliumin ja cesiumin liukoisuuksien väliltä. Tämä oli odotettavissa, koska kalium ja cesium ovat molemmat alkalimetalleja ja muistuttavat kemiallisesti toisiaan. Sr:n liukoisuus ei korreloinut edellisten kanssa.

*Raskaat luonnonnuklidit.* Radiokemiallisin  $^{210}\text{Pb}$ - ja  $^{226}\text{Ra}$ -määrityksin saatiin vahvistus sille, että näiden isotooppien liukoisuus happamaan ammoniumaseptaattiin oli enimmäkseen alle 10 %. Joitakin poikkeuksia löytyi kuitenkin erityisesti pohjatuhkien ryhmässä (kuva 4). Radiumin kemiallinen erotus kohdistui suolahappoon liukenevaan osaan.  $^{226}\text{Ra}$ :n suolahappoon liukeneva osuus oli huomattavasti kokonaisaktiivisuutta pienempi, mikä myös vahvistaa sen, että radium sitoutuu poltossa tiukasti tuhkaan.



**Taulukko VI.**  $^{90}\text{Sr}$ :n,  $^{137}\text{Cs}$ :n ja  $^{40}\text{K}$ :n ammonium-asetattiutossa liukenevat osuudet. Aritmeettinen keskiarvo sekä vaihteluväli (ala- ja yläkvartiilit); N on liukoisuuskokein testattujen näytteiden lukumäärä.

Näyteryhmä	Keskiarvo	25 % - 75 %	N
Kaikki testatut näytteet			
$^{90}\text{Sr}$	0,39	0,27 - 0,47	47
$^{137}\text{Cs}$	0,39	0,20 - 0,57	82
$^{40}\text{K}$	0,31	0,09 - 0,52	82
Pelkkä puu, pohjatuhkat			
$^{90}\text{Sr}$	0,36	0,24 - 0,43	5
$^{137}\text{Cs}$	0,32	0,13 - 0,47	18
$^{40}\text{K}$	0,31	0,09 - 0,58	18
Pelkkä puu, suodatintuhkat			
$^{90}\text{Sr}$	0,36	0,29 - 0,47	14
$^{137}\text{Cs}$	0,55	0,37 - 0,78	15
$^{40}\text{K}$	0,52	0,21 - 0,84	14



**Kuva 4.** Näytekohtaiset <sup>210</sup>Pb:n ja <sup>226</sup>Ra:n liukoisuudet NH<sub>4</sub>Ac:hen, ryhmiteltyinä tuhka- ja polttoainelajin mukaan (y-asteikon ylin jakoväli). Ryhmien sisällä näytteet on järjestetty <sup>226</sup>Ra:n kasvavan liukoisuuden mukaan. Kuvassa on myös NH<sub>4</sub>Ac:hen liukeneva osuus HCl-liukoisesta tuhkan <sup>226</sup>Ra-aktiivisuudesta.

## 4 SÄTEILYALTISTUS

### 4.1 Tuhkan käsittely, varastointi ja käyttö maarakentamiseen tai betonin lisäaineena

Työntekijöiden säteilyannoksiin tulee kiinnittää huomiota, jos tuhkan käsittelystä työntekijälle aiheutuva altistus on 1 mSv:n (millisievertin) suuruusluokkaa vuodessa. Väestölle tähänastiset turvetuhkan käyttötavat eivät saa aiheuttaa henkeä kohti yli 0,1 mSv:n lisäystä vuodessa maaperän radioaktiivisuuden aiheuttamaan annokseen (säteilyturvallisuusohje ST 12.2, Säteilyturvakeskus 1993). Toiminnan harjoittaja vastaa siitä, että tuhkan käsittelyn ja käytön turvallisuustavoitteet saavutetaan jatkuvasti.

ST-ohjeessa 12.2 on määritelty turvetuhkan käsittelyn ja käytön turvallisuustavoitteiden toteutumista indikoivat radioaktiivisuusindeksit. Ulkoisen säteilyaltistuksen rajoittaminen on samanlaista sekä puun että turpeen tuhkalta, jos käsittely- ja käyttötavat eivät eroa toisistaan. Kun tuhkan radioaktiivisuusindeksi ylittää arvon yksi, eli niin sanotun tutkimusrajan, toiminnan harjoittajan on selvitettävä miten tuhkaa voidaan käsitellä ja sijoittaa niin, että turvallisuustavoitteet saavutetaan. Aktiivisuusindeksit (I) lasketaan tuhkan kuiva-aineen radionuklidipitoisuuksista, ellei toisin mainita. Laskukaavat erilaisille tuhkan käyttötavoille ovat seuraavat:

Tuhkan käytölle talonrakennukseen (pitoisuudet valmiissa rakennusmateriaalissa)

$$I_1 = \frac{C_{Th}}{200} + \frac{C_{Ra}}{300} + \frac{C_K}{3000}$$

Tuhkan käytölle tien- tai kadunrakennukseen

$$I_2 = \frac{C_{Th}}{500} + \frac{C_{Ra}}{700} + \frac{C_K}{8000} + \frac{C_{Cs}}{2000}$$

Tuhkan käytölle maantäyttöön tai maisemarakentamiseen

$$I_3 = \frac{C_{Th}}{1500} + \frac{C_{Ra}}{2000} + \frac{C_K}{20000} + \frac{C_{Cs}}{5000}$$

Tuhkan käsittelylle

$$I_4 = \frac{C_{Th}}{3000} + \frac{C_{Ra}}{4000} + \frac{C_K}{50000} + \frac{C_{Cs}}{10000}$$

missä  $C_{Th}$ ,  $C_{Ra}$ ,  $C_K$  ja  $C_{Cs}$  ovat  $^{232}\text{Th}$ :n,  $^{226}\text{Ra}$ :n,  $^{40}\text{K}$ :n ja  $^{137}\text{Cs}$ :n aktiivisuuspitoisuudet tuhkassa ( $\text{Bq kg}^{-1}$  ka.).

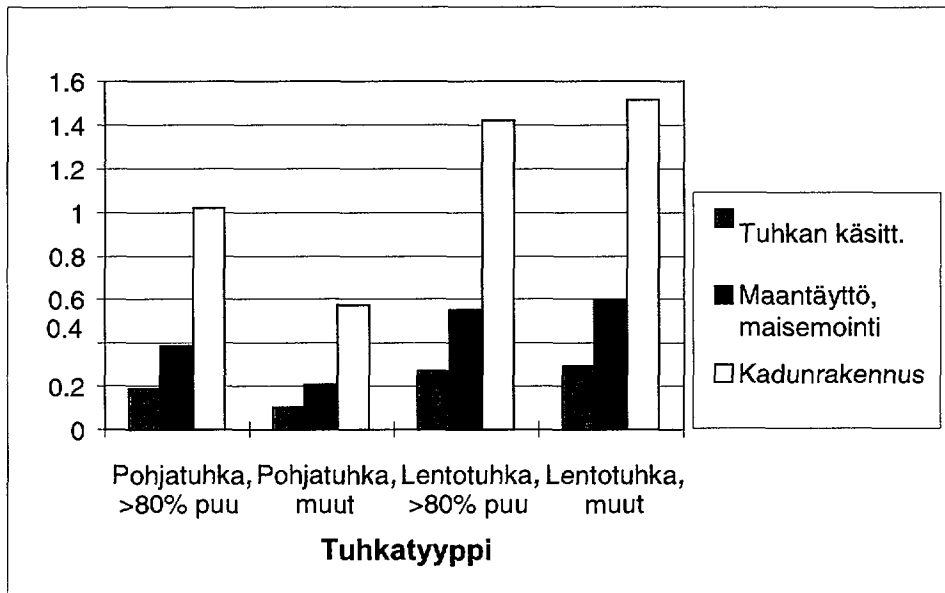
Aktiivisuusindeksin ( $I_1$ ) lisäksi talonrakennustuotannon lisäaineiden sisältämän  $^{137}\text{Cs}$ :n gammasäteilylle on asetettu turvallisuustavoite, jonka mukaan siitä aiheutuva efektiivinen annos ei saa ylittää 0,1 mSv vuodessa.

Tuhkanäytteiden aktiivisuuspitoisuuksista lasketut indeksien arvot tuhkan käsittelylle ja käytölle maantäyttöön olivat keskimäärin alle lisäselvityksiä edellyttävän arvon 1. Kadun- ja tienrakennusindeksi oli lentotuhkalla selvästi suurempi kuin pohjatuhkalla (kuva 5).

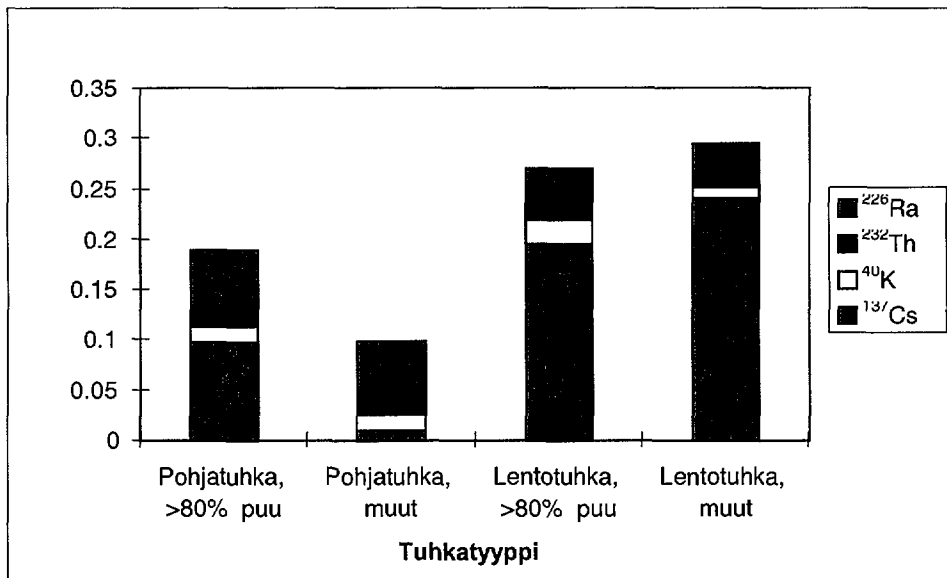
Luonnon nuklidien aktiivisuuksista lasketut indeksien arvot olivat keskimäärin 0,05 - 0,44 lentotuhkalla ja 0,09 - 0,53 pohjatuhkalla. Tuhkan käsittelyn indeksiin luonnon nuklidit vaikuttivat vähiten (kuva 6) ja tien- ja kadunrakennuksen indeksiin eniten.  $^{137}\text{Cs}$ :n osuus oli kaikkiaan huomattava ja se aiheutti jonkin verran tutkimusrajan ( $I = 1$ ) ylityksiä. Indeksien suuruusluokan määräsi siis yleensä  $^{137}\text{Cs}$ , mutta myöskään luonnon radionuklideja ei voi pitää merkityksettöminä. Aktiivisuusindeksit vaihtelivat huomattavasti.

Tutkimusrajan ylittyessä tuhka pyritään varastoimaan niin, ettei siitä leviä radioaktiivisia aineita ympäristöön. Säteilyaltistusta pienentää myös peite-  
maakerros läjitysalueella. Tuhkalle laskettujen indeksien ( $I_2$ ,  $I_3$  ja  $I_4$ ) frekvenssijakaumat havainnollistavat tuhkan sijoitusmahdollisuuksia ja käytettävyyttä sekä lisäselvitysten tarvetta tutkimusajankohtana (kuva 7).

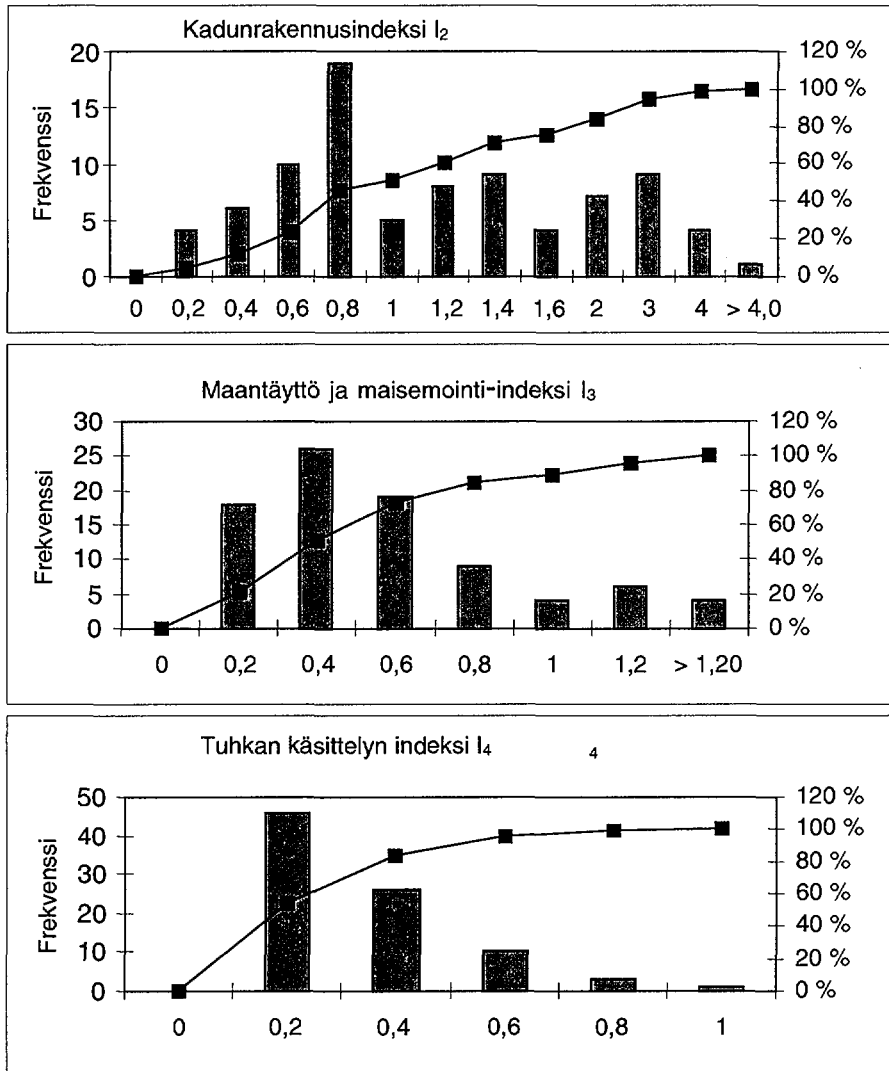
*Tuhkan käsittelyn* turvallisuustavoite toteutui tutkituilla laitoksilla mittausajankohtana aina, sillä aktiivisuusindeksin maksimi oli 0,81 (aritmeettinen keskiarvo 0,23). Puun tuhkan sijoittaminen valvotulle kaatopaikalle oli tutkimusajankohtana yleisin tuhkan sijoitustapa, ja se oli tulosten perusteella turvallista.



**Kuva 5.** Tuhkan käsittelyn ja käytön keskimääräiset aktiivisuusindeksit tuhkalajeittain.



**Kuva 6.** Tuhkan käsittelyn keskimääräinen aktiivisuusindeksi tuhkalajeittain ja eri radionuklidien osuudet siitä.



**Kuva 7.** Tuhkan käytön ja käsittelyn aktiivisuusindeksien frekvenssi- ja summafrekvenssijakaumat. Indeksien arvot x-akselilla ovat luokkien ylärajoja. Vasen y-asteikko antaa tapausten lukumäärän frekvenssijakaumassa, oikea y-asteikko ilmoittaa summafrekvenssin prosentteina.

Tuhkan käyttöä *maantäyttöön ja maisemointiin* koskevan indeksin ylittäessä arvon yksi on tehtävä erillinen selvitys tuhkan sijoittamisesta (jos sijoitetaan muualle kuin valvotulle kaatopaikalle). Tämä indeksi ylittyi kymmenessä näytteessä (12 % näytteistä) kolmelta eri laitokselta. Ylityksien pääasiallinen aiheuttaja oli  $^{137}\text{Cs}$ -aktiivisuus, joten puutuhkan turvallisen sijoittamisen kannalta pitäisi lähemmin tarkastella laitoksia, jotka polttavat korkean  $^{137}\text{Cs}$ -laskeuman alueelta peräisin olevaa puuta tai puu-turveseosta.

*Kadun- ja tienrakennuksen* indeksi ylittyi lähes puolessa (45 %) kaikista näytteistä, ja myös sen keskiarvo oli yli yhden. Kadunrakennukseen voi ST-ohjeen 12.2 mukaan käyttää myös indeksin ylittäviä aineksia, mikäli kerroksen päälle tulee tarpeeksi paksu gammasäteilyltä suojaava kerros. Aktiivisuusindeksin korkean ylittymisprosentin takia puun tuhkan käyttöä kadun- tai tienrakennukseen kiviainesta korvaavana materiaalina ei voitane suositella ilman erillistä selvitystä. Puun tuhkaa on tietävästi käytetty maarakentamiseen erittäin vähän.

ST-ohjeen 12.2 *talonrakennustuotantoindeksi* perustuu pelkkiin luonnonnuklideihin ja se on määritelty valmiille rakennusmateriaalille. Siksi indeksin arvoja ei tarkastella tässä yhteydessä. Esimerkiksi tuhkaa, jonka  $^{137}\text{Cs}$ -aktiivisuus on  $1000 \text{ Bq kg}^{-1}$  voidaan käyttää lisäaineena korkeintaan  $120 \text{ kg m}^{-3}$  betonia, kun  $^{137}\text{Cs}$  on pääasiallinen säteilyaltistuksen aiheuttaja. Kyseisen aktiivisuuspitoisuuden ylitti 64 % tutkituista näytteistä. Näytteen-toimittajilta ei saatu yhtään ilmoitusta puun tuhkan käytöstä talonrakennustuotannon lisäaineena.

*Muu ulkoinen säteily.* Pitkäaikaisen käytön aikana polttokattilaan voi kertyä radioaktiivisia aineita. Rakenteiden säteilytasoon tulee kiinnittää huomiota siinä vaiheessa, kun kattilaa puretaan ja syntyvää romua hävitetään.

## **4.2 Tuhkan käyttö metsien lannoitteena**

### **4.2.1 Ulkoinen säteily tuhkan radionuklideista**

Puun tuhkan mahdollisesti laajeneva käyttöalue Suomessa on metsien maanparannus. Metsiin palautettavan tuhkan gammasäteilyä lähettävät nuklidit voivat suurentaa ulkoisen säteilyn annosnopeutta maanpinnan yläpuolella. Tuhkan ravinteet taas voivat vähentää metsistä saatavien elintarvikkeiden sekä puutavaran radioaktiivisuutta vuosien kuluessa, vaikka tuhkan sisältä-

mät radio-isotoopit joutuvatkin osittain metsikön ravinnekiertoon. Jos tuhkalannoitus vähentää radio-isotooppien kertymistä kasveihin, myös metsätalouden lopputuotteista, esimerkiksi puutavarasta aiheutuva säteilyaltistus vähenee.

Maahan levitetyn tuhkan sisältämät radionuklidit lisäävät säteilytystä vaihtelevasti, lähettämänsä säteilyn energian ja intensiteetin sekä aktiivisuustason mukaan. Suurin ulkoisen annosnopeuden aiheuttaja Tshernobyl-laskeuman alueella Suomessa on useimmiten tuhkan  $^{137}\text{Cs}$ . Kun tuhkan  $^{137}\text{Cs}$ -aktiivisuus on erittäin pieni, kaliumin isotooppi  $^{40}\text{K}$  on tärkein ulkoisen annoksen aiheuttaja lannoituksen yhteydessä ruotsalaisen arvion mukaan (Ravila ja Holm 1996).

Metsien tuhkalannoituksen jälkeen yleisölle aiheutuu säteilyaltistusta kotalaisen pienistä tuhkamääristä. Maa- ja metsätalousministeriön asettama työryhmä suositteli vuonna 1993 maksimimääräksi kangasmetsiin 4000 kg ja turvemaille 8000 kg tuhkaa hehtaarille, ja lannoitusväliksi vähintään 20 vuotta (Maa- ja metsätalousministeriö 1993). Metsien virkistyskäytön yhteydessä väestön altistumisajat ovat suhteellisen lyhyitä. Nykyisessä Tshernobyl-onnettomuuden jälkeisessä laskeumatilanteessa väestön yksilöiden saamat säteilyannokset ovat kaikkiaan pieniä. Kuljetettaessa ja levitettäessä tuhkaa metsiin tulee kuitenkin huolehtia siitä, että työntekijät eivät altistu tarpeettomasti suurten tuhkamäärien gammasäteilylle tai pölylle.

Tuhkan radionuklidien aiheuttaman ulkoisen annoksen suuruusluokkaa havainnollistaa esimerkki, jossa puun tuhkaa käytetään lannoitukseen  $1000 - 5000 \text{ kg ha}^{-1}$ . Tuhkan  $^{137}\text{Cs}$ -aktiivisuudeksi oletetaan  $10\,000 \text{ Bq}$  kilossa kuiva-ainetta, mikä ylittää tutkimuksessa havaitun maksimipitoisuuden. Tällöin maaperään lisätään cesium  $^{137}\text{Cs}$ :ää  $1000 - 5000 \text{ Bq m}^{-2}$ . Lisäys vastaa Tshernobyl-laskeuman aktiivisuutta lievimmällä laskeumavyöhykkeellä Suomessa (kuva 1). Ulkoisen annosnopeuden lisäys on  $1,3 - 6,6 \text{ nanograytä tunnissa (nGy h}^{-1})$  (Arvela 1988, Jacob ym. 1990, Golikov ym. 1999). Ulkoinen säteilyaltistus vähenee  $^{137}\text{Cs}$ :n radioaktiivisen hajoamisen johdosta ja tuhkan radionuklidien siirtyessä vuosien kuluessa syvemmälle maahan. Keskimääräinen maaperän luonnollisen radioaktiivisuuden aiheuttama annosnopeus Suomessa on  $71 \text{ nGy h}^{-1}$  (Arvela ym. 1995).

Esimerkin metsikössä 2000 tuntia vuodessa työskentelevä henkilö saisi oletetusta tuhkan  $^{137}\text{Cs}$ -aktiivisuudesta  $2 - 11 \text{ mikrosievertin } (\mu\text{Sv})$  annoslisän



vuodessa. Annos on 0,4 - 2 % maaperän luonnollisista radionuklideista saata-  
vasta vuosiansiannoksesta Suomessa (Säteilyturvakeskus 1998). Tshernobyl-  
laskeuman  $^{137}\text{Cs}$  aiheutti maassamme vuonna 2000 keskimäärin 40  $\mu\text{Sv}$ :n vuo-  
siannoksen, kun sekä ulkoinen että sisäinen säteilyannos otetaan huomioon.  
Enimmillään edellä oletettu, tutkimuksen maksimin ylittävä tuhkan  $^{137}\text{Cs}$ -  
pitoisuus aiheuttaisi ulkoista annosta metsätyöntekijälle noin neljäsosan täs-  
tä ansiannoksesta. Metsän virkistyskäytöstä (oletettu oleskeluaika metsässä 120  
 $\text{h a}^{-1}$ ) aiheutuisi väestölle enintään 0,8  $\mu\text{Sv}$ :n vuosiansiannos esimerkin tuhkalisä-  
yksen johdosta. Annoksen suuruusluokka on yleisölle asetettuun annosrajoi-  
tukseen 0,1  $\text{mSv a}^{-1}$  verrattuna merkityksetön, erityisesti jos esimerkin tuh-  
kan  $^{137}\text{Cs}$ -pitoisuus korvataan tutkimuksessa havaituilla aktiivisuuspitoisuu-  
ksilla. Suomalaiset saavat eri lähteistä yhteensä lähes 4  $\text{mSv}$ :n säteilyannok-  
sen vuodessa (Säteilyturvakeskus 1998).

#### 4.2.2 Sisäinen säteily tuhkan radionuklideista

Maassa liukenevassa muodossa olevat radionuklidit kulkeutuvat ravinteiden  
mukana osittain kasveihin ja sieniin sekä niistä edelleen muun muassa riis-  
taeläimiin. Ihminen saa sisäistä säteilyannosta keräilytuotteiden ja riistanli-  
han kautta. Tuhkan ravinteet lieventävät sekä tuhkan mukana lisättyjen että  
maassa ennestään olevien  $^{137}\text{Cs}$ :n,  $^{90}\text{Sr}$ :n ja eräiden luonnon radio-isotooppien  
siirtymistä kasveihin useiden vuosien, jopa vuosikymmenien aikana.

Puun tuhkan ravinnepitoisuus ei voi olla niin pieni, ettei muutaman tuhka-  
tonnin levittämällä hehtaarille olisi lainkaan lannoitusvaikutusta metsä-  
kasvillisuuteen. Tällaista tuhkaa voi syntyä ainoastaan, jos puun osuus seos-  
poltossa on erittäin pieni, eikä tapaus siten kuulu puun tuhkan yhteyteen.

Pitkäikäinen laskeuman keinotekoinen radionuklidi  $^{90}\text{Sr}$  lähettää vain bee-  
tasäteilyä eikä siten aiheuta ulkoista säteilyä. Laskeuman mukana levinnyt  
 $^{90}\text{Sr}$  kulkeutuu kohtalaisen helposti maasta kasveihin, minkä myös tämän  
tutkimuksen tuloksena saadut aktiivisuuspitoisuudet puun tuhkassa osoitta-  
vat. Keskiarvo 47 tuhkanäytteelle (etupäässä lentotuhkanäytteitä) oli  
 $570 \text{ Bq kg}^{-1}$ , ja suurin havaittu pitoisuus oli  $1660 \text{ Bq kg}^{-1}$ . Strontiumin liukoi-  
suus ammoniumasetaattiuutossa oli keskimäärin 36 % (taulukko VI). Radio-  
aktiivinen strontium diskriminoituu eläimen aineenvaihdunnassa niin, ettei  
sitä yleensä kulkeudu mainittavasti lihaskudokseen. Tämä vähentää havait-  
tujen tuhkan  $^{90}\text{Sr}$ -pitoisuuksien vaikutusta riistanlihan kautta saatavaan  
säteilyannokseen. Myös sienten ja marjojen strontiumin otto on vähäistä, ja

keräilytuotteistakin lähinnä vain yrtit ja niiden tapaiset kasvukunnan tuotteet voivat sisältää strontium 90:tä huomionarvoisina pitoisuuksina. Isotoopin pääasialliset lähteet suomalaisten ruokavaliassa ovat vilja, kasvikset ja maito, joihin verrattuna tuhkasta metsäntuotteisiin joutuneen  $^{90}\text{Sr}$ :n määrä ravinnossa on pieni (STUK-A78, Rantavaara 1991).

### 4.2.3 Metsäkasvillisuuden $^{137}\text{Cs}$ -pitoisuudet lannoituksen jälkeen

Useita lannoituksen vaikutusta metsäkasvillisuuteen koskevia tutkimuksia on tehty 1990-luvulla. Tulokset vahvistavat se, että puun tuhkan metsiin palauttaminen vähentää puun ja muiden metsätalouden tuotteiden radioaktiivisuutta pitkällä aikavälillä. Osa kokeista tehtiin kemiallisilla lannoitteilla, joiden tiedetään usein liukenevan tuhkaa nopeammin. Tuhkan liukoiset pääravinteet käyttäytyvät maassa (tässä asiayhteydessä riittävän yhtäpitävästi) kemiallisten lannoitteiden sisältämien vastaavien aineiden tavoin. Kestovaikeus saadaan hitaasti liukenevilla lannoitteilla, ja niiden käyttöä metsiin pidetään mielekkäänä.

Lannoitus vähensi turvemaalla kasvavan mäntymetsän radiocesium-pitoisuuksia alueella, johon keväällä 1986 levisi  $^{137}\text{Cs}$ :ää Tshernobylin ydinvoimalaitosonnettomuuden johdosta enemmän kuin Suomeen keskimäärin (Kaunisto ym. 2000).  $^{137}\text{Cs}$ -aktiivisuus puun eri osissa pieneni yhdistetyn typpi-, fosfori- ja kaliumlannoituksen (NPK) tai PK-lannoituksen ansiosta selvästi. Noin 25 vuotta ennen kevään 1986 laskeumaa lannoitetussa metsässä havaittiin runkopuun  $^{137}\text{Cs}$ -pitoisuuksissa vielä vuonna 1995 lievä (n. 10 %:n) vähennys. Vuonna 1994 tehty uusintalannoitus aiheutti vuodessa 30 %:n vähennyksen.

Tuhkalla lannoitetun kuivan mäntykankaan puolukkasadon radiocesiumpitoisuutta tutkittiin vuoden kuluttua käsittelystä. Keväällä 1990 metsään oli levitetty havupuiden kuorituhkaa 1000 – 5000 kg hehtaarille. Puolukan marjojen  $^{137}\text{Cs}$ -aktiivisuus väheni vuodessa 20 – 60 %. Seitsemän vuoden kuluttua käsittelystä vähenemisen todettiin jatkuneen suurimman tuhka-annoksen saaneilla koealoilla ja se lähestyi 70 % (Levula ym. 2000). Koealueen Tshernobyl-laskeuman aktiivisuus oli suuruusluokkaa  $50 \text{ kBq m}^{-2}$ , ja tuhkan mukana lisättiin metsämaahan enintään 10 % tästä aktiivisuudesta.

Runsaalla NPK-lannoituksella osoitettiin merkittävä, jopa 90 %:n vähennys runkupuun ja neulasten <sup>137</sup>Cs-aktiivisuuteen kivennäismaalla Hämeessä. Männyn oksissa vähennys oli 70 % (Moberg ym. 1999). Lannoitus oli tehty vuotta ennen Tshernobyl-laskeumaa, jota levisi alueelle keskimääräistä enemmän.

#### 4.2.4 Tuhkalannoitus ja säteilyaltistuksen rajoittamistarve

Pitkällä aikavälillä ravinnesisällöltään merkittävä annos puun tuhkaa metsään levitettynä tulee Tshernobyl-laskeuman leviämisalueella Suomessa useimmiten vähentämään metsäntuotteiden radioaktiivisuutta siitä, mikä se olisi ilman tuhkalisäystä. Tutkimuksessa havaittua aktiivisuustasoa olevien tuhkien käyttöä metsien lannoitukseen ei siten ole tarvetta rajoittaa. Ainoastaan lievimmän Tshernobyl-laskeuman alueilla voi erityistapauksissa olla odotettavissa metsäkasvillisuuden <sup>137</sup>Cs-aktiivisuuden lisäystä. Tilanne voi syntyä, jos lannoitteen mukana lisätään metsään moninkertaisesti enemmän <sup>137</sup>Cs:ää kuin siellä on ennestään, ja pitkän aikavälin lannoitusvaikutus on samanaikaisesti heikko.

Liukoisuustestit indikoivat selvästi, että <sup>137</sup>Cs:n liuetessa puun tuhkasta maa-vedeen sitä seuraa likimain samassa suhteessa tuhkasta liukenevaa kaliumia, joka aiheuttaa muiden ravinteiden ohella kasvien cesiumin oton vähenemistä. Tuhkan sisältämä kalsium taas vähentää maa-alkaleihin kuuluvien radioisotooppien (Sr, Ra) ja muiden maan happamuuteen samantapaisesti reagoivien alkuaineiden isotooppien siirtymistä kasveihin. Raskaiden luonnon nuklidien liukoisuus tuhkasta oli yleensä vähäistä, mikä vähentää tai hidastaa niiden kulkeutumista tuhkalannoituksesta kasvillisuuteen.

Polttaessa puun ohella massateollisuuden vedenpuhdistuksen lietettä pohjatuhkan cesiumin ja kaliumin liukoisuus pieneni. Siitä voi aiheutua viivettä radioisotooppien liukenemiseen tuhkasta maahan. Jos lannoituksella halutaan tuottaa tietty puuston kasvun lisäys, biolietettä sisältävän seospolttoaineen pohjatuhkaa tarvittaisiin todennäköisesti enemmän kuin puhdasta puun tuhkaa. Tässä yhteydessä ei ole varmistettu, voiko liete puun ohella poltettu- na tuottaa tuhkaa, jolla olisi erittäin pitkään kestävä lannoitusvaikutus.

Seospoltossa syntyvä tuhka sisältää usein vähemmän kaliumia kuin puhtaan puun tuhka. Siten esimerkiksi turpeesta voi kertyä tuhkaan yhtä kalium-

grammaa kohti enemmän radioaktiivista cesiumia kuin puusta, jos turve on hankittu alueelta, jossa on edelleen huomattavasti Tshernobyl-laskeumaa.

Arvioitaessa säteilyn rajoittamistarvetta metsien tuhkalannoituksen yhteydessä on tärkeää ottaa huomioon myös tuhkan kemialliset ominaisuudet. Polttoaineseoksen koostumus voi vaikuttaa paitsi ravinne- ja radionuklidimääriin myös siihen todennäköisyyteen, jolla ne joutuvat liuenneina metsikön ravinnekiertoon. Tuhkan radionuklidien liukoiset aktiivisuuspitoisuudet suhteessa liukoiseen kaliumiin ja muihin pääravinteihin vaikuttavat lannoituksen aiheuttamaan sisäisen säteilyaltistuksen muutokseen.

Lannoituksen säteilyaltistusta vähentävää vaikutusta ei ole tietävästi otettu huomioon Ruotsissa, kun on määrätty  $^{137}\text{Cs}$ :n aktiivisuusraja metsiin palautettavalle puun tuhkalalle (Statens strålskyddsinstitut 1999). Lannoituskäyttöön kelpaava tuhka saa Ruotsissa sisältää  $^{137}\text{Cs}$ :ää enintään 5000 Bq kilossa kuiva-ainetta, eikä lannoituksella saa lisätä metsämaan  $^{137}\text{Cs}$ -aktiivisuutta pinta-alaa kohti yli 1500 Bq m<sup>-2</sup>.

Suomea koskeva arviointi perustuu oletukseen, että metsien lannoitukseen käytetään nimenomaan puun tuhkaa, jossa radioaktiivisen cesiumin ja muiden radio-isotooppien kertymistä kasveihin lieventää mahdollisimman suuri pääravinteiden pitoisuus. Sisäisen säteilyannoksen nettomuutos määräytyy myös siitä, mikä on maassa ennestään olevan ja lannoitteen mukana lisätyn  $^{137}\text{Cs}$ :n aktiivisuuksien suhde. Ulkoisen annoksen lisäys on yleensä sitä suurempi, mitä enemmän  $^{137}\text{Cs}$ :ää sisältyy tuhka-annokseen, jolla haluttu metsämaan ravinnelisyys saavutetaan.

## 5 JOHTOPÄÄTÖKSET

Tuhkan käsittelyssä saavutettiin työntekijöiden säteilyaltistukselle annettu turvallisuustavoite kaikilla tutkituilla laitoksilla. Jos tutkittuja tuhkia olisi käytetty maantäyttöön, kadun- ja tienrakennukseen tai lisäaineeksi rakennusmateriaaleihin, olisi melko usein tarvittu lisäselvityksiä tai käytettävän tuhkamäärän rajoituksia. Aktiivisuusindeksien ylitykset aiheutti selvästi puupolttoaineiden sisältämä pitkäikäinen cesiumin nuklidi  $^{137}\text{Cs}$ . Kyseisiä käyttötapoja harkittaessa tulee mittauksin varmistaa sellaisten tuhkaerien käyttökelpoisuus, joiden  $^{137}\text{Cs}$ -aktiivisuudet polttoaineen alkuperän perusteella arvioiden voivat olla suuria.

Suurempia radionuklidipitoisuuksia kuin tutkimuksessa havaitut voi esiintyä joillakin laitospaikoilla Suomessa. Varsinkin metsähakkeen poltossa syntyvä tuhka voi eniten  $^{137}\text{Cs}$ -laskeumaa saaneilla alueilla ylittää tässä tutkimuksessa mitatut tuhkan aktiivisuuspitoisuudet.

Varteenotettava ja mahdollisesti lisääntyvä tuhkan käytötapa on metsien maanparannus. Aikaväli, jolla tuhkalannoituksen säteilyvaikutuksia arvioidaan, tulee olla riittävän pitkä. Lannoitus pienentää kasvien radioaktiivisuutta useiden vuosien, jopa vuosikymmenien ajan. Tuhkan sisältämät liukoissa muodossa olevat ravinteet vähentävät radio-isotooppien kertymistä kasveihin. Ravinteiden ja radionuklidien pitoisuussuhteet ja liukoisuus tuhkassa vaikuttavat siihen, miten ihmisen säteilyaltistus muuttuu tuhkalannoituksen jälkeen. Tuhkan radioaktiivisuuden lisäksi tulee siksi myös sen laatu ottaa huomioon, kun harkitaan metsien tuhkalannoituksen mahdollista rajoittamista. Näin kokonaisvaikutus ihmisen säteilyaltistukseen voidaan pitää tarkoituksenmukaisesti hallinnassa ja välttää turhat rajoitukset ja toisaalta myös korjaavat toimenpiteet jälkikäteen.

Tutkimuksessa havaitut tuhkan radionuklidipitoisuudet ja uusimmat metsänhoitoon liittyvien radioekologisten tutkimusten tulokset oikeuttavat päättelemään, että Suomessa ei ilmeisesti tarvita puuenergia-alan kannalta merkittävää rajoitusta puun tuhkan käytölle metsien lannoitteena. Tuhkalannoitus voi olla muun ohessa myös keino lieventää radioaktiivisen laskeuman vaikutuksia metsäkasvillisuuteen pitkällä aikavälillä etenkin ravinneköyhillä kasvupaikoilla (Moberg ym. 1999). Metsien ravinnetilanteen asianmukainen

parantaminen on yleensäkin järkevää varautumista vakaviin ja vaikutuksiltaan laaja-alaisiin ydinlaitosonnettomuuksiin.

Seospoltossa myös turve voi aiheuttaa sen, että tuhkan hyötykäytön turvallisuustavoite ei toteudu ilman lisäselvityksiä. Turpeen radioaktiivisuuden mittaaminen on käytännössä helpompaa kuin metsähakkeen, jos mitattavat näytteet otetaan turveaumoista tai -kuormista edustavasti. Turpeen tuhkapitoisuus on suurempi kuin puun, ja se tulee ottaa huomioon, kun seospolttoaineen tuhkan radioaktiivisuutta arvioidaan. Turpeen radionuklidikoostumus maassamme vaihtelee alueittain ja suokohtaisesti (Helariutta ym. 2000).

Polttoaineen alkuperä ja koostumus voivat vaihdella samallakin laitoksella ja aiheuttaa vaihtelua tuhkan radionuklidipitoisuuksiin. Lähellä tutkimusrajaa olevat, tuhkan sijoittamistapaa vastaavien aktiivisuusindeksien arvot viittaavat selvästi tarpeeseen seurata tilannetta mittauksin. Tuhkanäytteiden radioaktiivisuusmittausten avulla voidaan verrata luotettavasti erilaisten polttoaineiden käytön seurauksia. Mittausten tulee olla nuklidispesifisiä sekä aktiivisuusindeksien laskemista varten että määrittystarkkuuden takia. Tuhkassa on näet erilaisen mittarin vasteen aiheuttavia nuklideja vaihtelevissa suhteissa. Laskennolliset ja havaitut aktiivisuuspitoisuudet voimalaitosten tuhkassa poikkesivat toisistaan huomattavasti, mikä myös puoltaa säteilytilanteen varmistamista tarvittaessa näytemittausten avulla.

Metsien tuhkalannoitusta ja muuta tuhkan sijoittamista koskevaa säteily-suojeluneuvontaa ja tarpeellisia ohjeita toiminnan harjoittajille tulisi kehittää yhteistyössä metsätalouden, puuenergia-alan, radioekologian ja säteilysuojelun asiantuntijoiden kanssa. On järkevää seurata ja dokumentoida metsiin palautettavan tuhkan laatua, alueellista alkuperää ja mielellään myös <sup>137</sup>Cs-aktiivisuuden suuruusluokkaa. Siten voidaan varmistaa ja tarvittaessa osoittaa sekä työntekijöiden että väestön turvallisuustavoitteiden toteutuminen. Samaa tavoitetta palvelee puun tuhkan säteilytutkimuksen jatkaminen siten, että suurimpiin tuhkan aktiivisuuspitoisuuksiin johtavat tuotantoketjut tunnistetaan ja realistisia keinoja annosten rajoittamiseksi testataan.

## KIRJALLISUUSVIITTEET

Anttila P. Metsäteho. Henkilökohtainen tiedonanto 1998.

Arvela H. Ulkoinen gammasäteily. Kirjassa: Toivonen H, Rytömaa T, Vuorinen A (Toim.) Säteily ja turvallisuus. Helsinki: Säteilyturvakeskus, Valtion Painatuskeskus, 1988: 308-318.

Arvela H, Hyvönen H, Lemmelä H, Castrén O. Indoor and outdoor gamma radiation in Finland. *Radiation Protection Dosimetry*, 1995; vol. 59, no. 1, pp. 25-32.

Arvela H, Markkanen M, Lemmelä H. Mobile survey of environmental gamma radiation and fall-out levels in Finland after the Chernobyl accident. *Radiation Protection Dosimetry*, 1990; vol. 32 No. 3 pp. 177-184.

Bryant FJ, Morgan A, Spicer GS. The Determination of Radiostrontium in Biological Materials, AERE-R3030, Atomic Energy Research Establishment, Harwell, Berkshire, 1959. 35 p.

EU:n komissio. Energy for future, Renewable sources of energy, White Paper for a Community Strategy, 26.11.1997.

Golikov V, Barkovski A, Kulikov V, Balonov M, Rantavaara A, Vetikko V.. Gamma ray exposure due to sources in the contaminated forest. In: Linkov I & Schell WR (eds). Contaminated Forests – Recent Developments in Risk Identification and Future Perspective. Proceedings of the NATO Advanced Research Workshop on Contaminated Forests, Kiev, Ukraine 27-30 June 1998. Dordrecht: Kluwer Academic Publishers, 1999, 333-341.

Hakkila P, Kalaja H. Puu- ja kuorituhkan palauttamisen tekniikka. *Folia Forestalia* 552. Helsinki: Metsäntutkimuslaitos, 1983, 35 s.

Hedvall R. Activity Concentrations of Radionuclides in Energy Production from Peat, Wood Chips and Straw. Doctoral dissertation. LUNFD6/(NFRA-1035)/1-65/1997. Nyköping: Radiation Physics Department, Lund University, 1997, 65 p. with Appendix.

Helariutta K, Rantavaara A, Lehtovaara J. Turvesoiden ja polttoturpeen radionuklidit. STUK-A143. Helsinki: Säteilyturvakeskus, 2000, 58 s.

Jacob P, Rosenbaum H, Petoussi N, Zankl M. Calculation of Organ Doses from Environmental Gamma Rays Using Human Phantoms and Monte Carlo Methods. Part II: Radionuclides Distributed in the Air or Deposited on the Ground. GSF-Bericht 12/90, 1990, 20 p. with Annex 76 p.

Jantunen MJ, Reponen A, Kauranen P, Vartiainen M. Chernobyl fallout in Southern and Central Finland. Health Physics 1991, Vol. 60, No. 3, pp. 427-434.

Jantunen MJ, Reponen A, Mustonen R, Itkonen A, Kauranen P. Behaviour of Chernobyl fallout radionuclides in peat combustion. Health Physics 1992, Vol. 62, No. 3, pp. 245-249.

Kaunisto S, Aro L, Rantavaara A. Effect of fertilisation on the potassium and radiocaesium distribution in tree stands on pine (*Pinus sylvestris*) mire and peat. Käsikirjoitus 1.12.2000.

Karessuo A (toim.). Ympäristönsuojelun vuosikirja 1996. Helsinki: Metsäteollisuus ry, 1996, 139 s.

Klemola S, Leppänen A. GAMMA-97 - Gamma-Ray Spectrum Analysis Program. Documentation and User's Manual. - STUK, Helsinki, 1997.

Leskelä J, Henkilökohtainen tiedonanto 1997.

Levula T, Saarsalmi A, Rantavaara A. Effects of ash fertilization and prescribed burning on macronutrient, heavy metal, sulphur and <sup>137</sup>Cs concentrations in lingonberries (*Vaccinium vitis-idaea*). Forest Ecology and Management, 2000; 126/3: 267-277.

Maa- ja metsätalousministeriö. Työryhmämuistio MMM 1993:8, Helsinki, 1993.

Markkanen M. Radiation Dose Assessments for Materials of Elevated Natural Radioactivity. Report STUK-B-STO 32. Helsinki: STUK, Radiation and Nuclear Safety Authority, 1995, 40 p.



Markkanen M. Maaperän radontuoton mittaaminen. Pro gradu –tutkielma, Helsingin yliopisto, 1988.

Moberg L, Hubbard L, Avila R, Wallberg L, Feoli E, Scimone M, Milesi C, Mayes B, Iason G, Rantavaara A, Vetikko V, Bergman R, Nylén T, Palo T, White N, Raitio H, Aro L, Kaunisto S, Guillitte O. An integrated approach to radionuclide flow in semi-natural ecosystems underlying exposure pathways to man (LANDSCAPE). Final Report, Research Contract no F14P-CT96-0039, European Commission Nuclear Fission Safety Programme. Report SSI: 19. Stockholm: Swedish Radiation Protection Institute, 1999: 104 pp.

Peltola I. Bioenergian mahdollisuuksista Suomen energiantuotannossa. Kirjassa: Bioenergiapäivät 99 - 17. - 18.11.99 Helsingin Messukeskus. FINBIO Raporttisarja 4, 1999: 9-22.

Raitio H, Rantavaara A. Airborne radiocesium in Scots pine and Norway spruce needles. *Science of the Total Environment*, 1994; 157: 171-180.

Rantavaara A Puutavaran radioaktiivisuus. STUK-A133. Helsinki: Oy Editab, 1996, 29 p.

Rantavaara A. Radioactivity of foodstuffs in Finland in 1987-1988. STUK-A78. Helsinki: the Finnish Government Printing Centre, 1991, 89 p.

Rantavaara AH, Moring KM. Contaminated tree biomass in energy production – potential need for radiation protection. In: Linkov I and Schell WR (Eds.), *Contaminated Forests – Recent Developments in Risk Identification and Future Perspective*. Proceedings of the NATO Advanced Research Workshop on Contaminated Forests, Kiev, Ukraine 27-30 June 1998. Dordrecht: Kluwer Academic Publishers, 1999, 303-310.

Ravila A, Holm E. Assessment of the Radiation Field from Radioactive Elements in a Wood-Ash-Treated Coniferous Forest in Southwest Sweden. *J. Environ. Radioactivity*, 1996; Vol. 32, Nos 1-2, pp. 135-156.

Saxén R. Säteilyturvakeskus. Henkilökohtainen tiedonanto, 1986.

Sevola Y (toim.). Metsätalastollinen vuosikirja 1998. SVT Maa- ja metsätalous 1998:3, Helsinki: Metsäntutkimuslaitos, 1998, 344 s.

Statens strålskyddsinstitut, Sverige. Policy för biobränsle (1999-2-22, Dnr 822/504/99), 2 s.

ST-ohje 12.2. Rakennusmateriaalien, polttoturpeen ja turvetuhkan radioaktiivisuus. Säteilyturvakeskus, 1993, 6 s.

Säteilyturvakeskus. Perustietoa säteilystä, 1998.

Vuorinen J, Mäkitie O. The method of soil testing in use in Finland. Agrogeol. Publ. 1955; 63: 1-44.

## STUK-A -sarjan julkaisuja

**STUK-A177** Rantavaara A, Moring M. Puun tuhkan radioaktiivisuus. Helsinki 2000.

**STUKA176** Lindholm C. Stable chromosome aberrations in the reconstruction of radiation doses. Helsinki 2000.

**STUK-A175** Annanmäki M, Turtiainen T, Jungclas H, Rausse C. Disposal of radioactive waste arising from water treatment: Recommendations for the EC. Helsinki 2000.

**STUK-A174** Servomaa A, Parviainen T (toim). Säteilyturvallisuus ja laatu röntgendiagnostiikassa 2000. Koulutuspäivät 24. - 25.2.2000 ja 10. - 11.4.2000. Helsinki 2000.

**STUK-A173** Hämäläinen RP, Sinkko K, Lindstedt M, Ammann M, Salo A. Decision analysis interviews on protective actions in Finland supported by the RODOS system. Helsinki 2000.

**STUK-A172** Turtiainen T, Kokkonen P, Salonen L. Removal of Radon and Other Natural Radionuclides from Household Water with Domestic Style Granular Activated Carbon Filters. Helsinki 1999.

**STUK-A171** Voutilainen A, Mäkeläinen I, Huikuri P, Salonen L, Arvela H. Porakaivoveden radonkartasto/Radon-atlas över borrhunnar/Radon Atlas of wells drilled into bedrock in Finland. Helsinki 1999.

**STUK-A170** Saxén R, Koskelainen U, Alatalo M. Transfer of Chernobyl-derived <sup>137</sup>Cs into fishes in some Finnish lakes. Helsinki 1999.

**STUK-A169** Annanmäki M, Turtiainen T (Eds.). Treatment Techniques for Removing Natural Radionuclides from Drinking Water. Helsinki 1999.

**STUK-A168** Suomela M, Bergman R, Bunzl K, Jaakkola T, Rahola T, Steinnes E. Effect of industrial pollution on the distribution dynamics of radionuclides in boreal understorey ecosystems (EPORA). Helsinki 1999.

**STUK-A167** Thorring H, Steinnes E, Nikonov V, Rahola T, Rissanen K. A summary of chemical data from the EPORA project. Helsinki 1999.

**STUK-A166** Rahola T, Albers B, Bergman R, Bunzl K, Jaakkola T, Nikonov V, Pavlov V, Rissanen K, Schimmack W, Steinnes E, Suomela M, Tillander M, Äyräs M. General characterisation of study area and definition of experimental protocols. Helsinki 1999.

**STUK-A165** Ilus E, Puhakainen M, Saxén R. Strontium-90 in the bottom sediments of some Finnish lakes. Helsinki 1999.

**STUK-A164** Kosunen A. Metrology and quality of radiation therapy dosimetry of electron, photon and epithermal neutron beams. Helsinki 1999.

**STUK-A163** Servomaa A (toim.). Säteilyturvallisuus ja laadunvarmistus röntgendiagnostiikassa 1999. Helsinki 1999.

**STUK-A162** Arvela H, Rissanen R, Kettunen A-V ja Viljanen M. Kerrostalojen radonkorjaukset. Helsinki 1999.

**STUK-A161** Jokela K, Leszczynski D, Paile W, Salomaa S, Puranen L, Hyy-salo P. Radiation safety of handheld mobile phones and base stations. Helsinki 1998.

**STUK-A160** Voutilainen A, Vester-backa K, Arvela H. Radonturvallinen rakentaminen - Kysely kuntien viran-omaisille. Helsinki 1998.

**STUK-A159** Hämäläinen RP, Sinkko K, Lindstedt M, Ammann M, Salo A. RODOS and decision conferencing on early phase protective actions in Finland. Helsinki 1998.

**STUK-A158** Auvinen A, Rahu M, Veidebaum T, Tekkel M, Hakulinen T, Salomaa S, Boice JD Jr (eds). Cancer incidence and thyroid disease among Estonian Chernobyl clean-up workers. Helsinki 1998.

**STUK-A157** Klemola S, Ilus E, Ikäheimonen TK. Monitoring of radionuclides in the vicinities of Finnish nuclear power plants in 1993 and 1994. Helsinki 1998.

**STUK-A156** Eloranta E, Jokela K (toim.). The Eight National Electromagnetics Meeting, August 27, 1998. Extended Abstracts. Helsinki 1998.

**STUK-A155** Salomaa S, Eloranta E, Heimbürger H, Jokela K, Järvinen H, (toim.). Säteilyturvakeskuksen tutkimushankkeet 1998 – 2000. Helsinki 1998.

**STUK-A154** Puhakainen M, Suomela M. Detection of radionuclides originating from a nuclear power plant in sewage sludge. Helsinki 1998.

**STUK-A153** Toivonen H, Honkamaa T, Ilander T, Leppänen A, Nikkinen M, Pöllänen R, Ylätaalo S. Automated high-volume aerosol sampling station for environmental radiation monitoring. Helsinki 1998.

**STUK-A152** Servomaa A (toim.). Säteilyturvallisuus ja laadunvarmistus röntgendiagnostiikassa 1998. Helsinki 1998.

**STUK-A151** Voutilainen A, Mäkeläinen I, Pennanen M, Reisbacka H, Castrén O. Radonatlas över Finland. Helsinki 1998.

### **Täydellisen listan STUK-A-sarjan julkaisuista saa osoitteesta**

Säteilyturvakeskus  
PL 14  
00881 Helsinki  
puh. (09) 759 881