Imponerande mätteknik av ämnen med låg radioaktivitet

Figur 1. Kartor från artikeln (Qiao et al., Nature Communications (2021) 12:823) som visar uppdelningen av Östersjöområdet i olika regioner, kärntekniska anläggningar som kan tänkas ha gett bidrag till Östersjön, havsströmmar samt de platser där proverna tagits.

I februari publicerades en artikel i den vetenskapliga tidsskriften Nature Communications med titeln An unknown source of reactor radionuclides in the Baltic Sea revealed by multi-isotope fingerprints (J. Qiao et al., Nature Communications 12 (2021) 823). En internationell forskargrupp, med bland annat svensk medverkan, har analyserat prover på vatten och bottensediment i Östersjöområdet och har hittat spår av radioaktiva ämnen som tycks ha ursprung från en kärnreaktor. Ett av forskargruppens mätresultat antyder att ämnena skulle kunna härröra från Studsvik, men det behövs fortsatta studier för att kunna bekräfta eller avfärda detta.

Artikeln innehåller en del fascinerande detaljer, inte minst kring mättekniken, där väldigt låga halter av ämnena kunnat uppmätas ur havsvatten och bottensediment. Här presenteras några av dessa detaljer, samt en diskussion kring vad som kan vara orsaken till mätresultaten.

Mätningar av extremt låga halter av radioaktiva ämnen

Det brukar ibland sägas att radioaktiva ämnen är väldigt lätta att mäta och att det inte finns några andra mätmetoder som är lika noggranna. Det är en sanning med modifikation eftersom det beror på den radioaktiva nuklidens egenskaper. Exempelvis är det väldigt lätt att identifiera klyvningsprodukten cesium-137 eftersom den avger gammastrålning vid en specifik energi, och det går därför i princip att uppmäta sönderfallet av enskilda atomkärnor. Men i det här fallet är det nukliderna uran-233, uran-236 och jod-129 som har undersökts. Både uran-233 och uran-236 sönderfaller genom att sända ut alfastrålning, vilken är svår att använda för att identifiera vilken nuklid det är frågan om. Båda

nukliderna kan även sända ut gammastrålning när de sönderfaller, men det är väldigt ovanligt. Till detta har uran-233 en halveringstid på 159 tusen år och uran-236 på 23 miljoner år, vilket innebär väldigt få sönderfall att detektera om den undersökta mängden av ämnet är liten. Jod-129 utsänder gammastrålning vid låg energi som skulle kunna uppmätas, men nukliden har 15 miljoner års halveringstid och kan därför också vara svår att identifiera vid små mängder.

Forskargruppen har istället använt sig av en kombination av kemisk extrahering och två olika sorters mass-spektrometri för att kunna bestämma halterna av de olika nukliderna i proverna. Prover av vatten och bottensediment har tagits i Östersjön, Nordsjön och Mälaren vid olika tillfällen under perioden 2011-2016. För att identifiera nukliderna i havsvatten har för varje prov några liter vatten filtrerats, och med olika kemiska metoder har uran och jod separerats ut från filtren. Sedimentproverna har genomgått liknande kemiska processer. Jod och uran förekommer naturligt i både havsvatten och bottensediment, främst jod-127 och uran-238, samt en mindre andel uran-235 (0,7 procent av naturligt uran är uran-235, resten är uran-238). För både jod och uran beror halten i haven på salthalten, ju saltare vatten desto större andel av ämnena kan lösas i vattnet. Eftersom salthalten i Östersjön varierar, med lägre salthalt i Bottenviken på grund av inflödet av sötvatten från älvarna, så varierar också halterna av jod och uran. Typiska värden är omkring 1 mikrogram per liter för uran och omkring 10 mikrogram per liter för jod.

Mängden uran-238 och jod-127 har uppmätts ur en delmängd av varje prov med så kallad ICP-MS-teknik (inductively coupled plasma mass spectrometry) där atomerna i provet joniseras med ett plasma och sedan separeras med ett magnetfält. Genom att jämföra med referensprover går det att bestämma hur stor mängd uran-238 och jod-127 som varje prov innehåller, men metoden är inte tillräckligt känslig för att kunna se de extremt låga halterna av uran-233, uran-236 och jod-129.

En annan delmängd av varje prov har genomgått AMS (acceleratorbaserad mass-spektrometri) där atomer från provet joniseras och accelereras i en så kallad tandemaccelerator. För uran har detta skett vid ett laboratorium i Wien, och för jod har mätningar genomförts på liknande sätt vid tandemacceleratorn vid Uppsala universitet. När de accelererade jonerna passerar en magnet får de olika banor beroende på hur tunga de är. Därmed går det att separera olika uran- och jodisotoper från varandra och räkna dem. I de här proverna är skillnaderna i

koncentration mellan de olika uranisotoperna enorm, det går en atom av uran-236 på hundra miljon atomer av uran-238, samt en atom av uran-233 på tio miljarder atomer av uran-238. På liknande sätt har jod-127 och jod-129 kunnat särskiljas från varandra. Det är alltså en enastående känslighet som möjliggörs med AMS, och mätmetoden rapporteras i vissa fall kunna nå en känslighet på en atom per miljarder miljarder (1 följt av 18 nollor) atomer. Nästan lika hög känslighet, en miljon miljarder (1 följt av 15 nollor) nås ibland vid åldersdateringar med kol-14-metoden.

Från mätningarna framkom att andelen uran-238 är som förväntat i storleksordningen 1 mikrogram per liter vatten, vilket är en normal halt i de flesta hav, och att det finns ungefär en atom uran-236 per 100 miljoner atomer av uran-238. I sedimentproverna var det ungefär samma andel uran-236, förutom i de prover som tagits utanför Studsvik, där var det ungefär en atom uran-236 per miljon atomer av uran-238.

Inte noll, men väldigt låga aktiviteter

Omräknat till aktivitet innebär siffrorna ovan följande:

- I en liter vatten från Östersjön finns det i storleksordningen en miljon miljarder atomer uran-238, omkring femtio miljoner atomer uran-236 och omkring en halv miljon atomer uran-233. Det innebär ungefär ett sönderfall vardera från uran-236 och uran-233 varje halvår, att jämföra med att en liter havsvatten normalt har omkring tolv sönderfall per sekund från naturligt förekommande radioaktivitet, främst kalium-40 med elva sönderfall per sekund. Det naturligt förekommande uran-238 som finns i havsvattnet ger ungefär ett sönderfall varje minut. Det skulle alltså vara omöjligt att identifera de ytterst få sönderfallen av uran-236 och uran-233 från den naturliga bakgrunden av uran-238 genom att uppmäta deras radioaktivitet.
- Halterna i bottensediment är högre än i havsvattnet, men ändå väldigt låga. I ett kilo bottensediment från Östersjön finns det i storleksordningen hundra miljarder atomer uran-236. Det innebär ungefär ett sönderfall varje timme. Sedimentproverna som tagits i havet utanför Studsvik har dock halter som är hundra gånger högre, vilket ger omkring ett sönderfall per minut. Aktiviteten av naturligt förekommande uran-238 i ett kilo bottensediment varierar naturligt mellan femtio och ett par tusen

sönderfall per sekund, skillnaderna beror på var provet är taget.

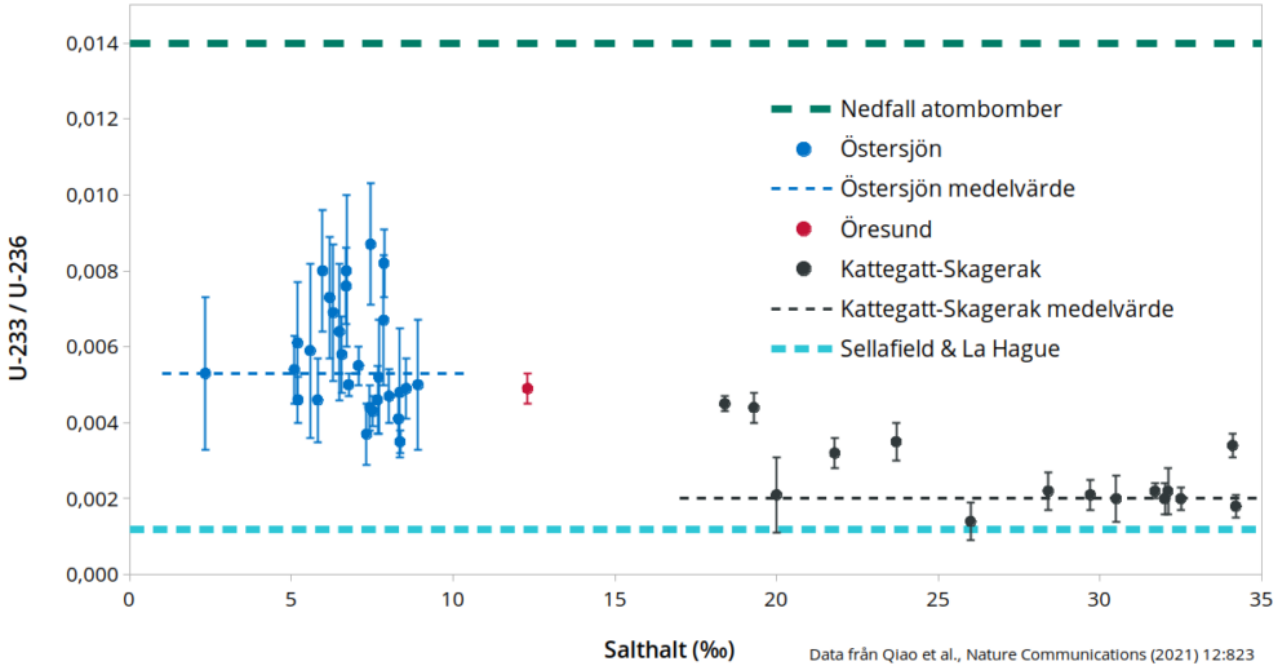
I både vatten och sedimentproverna skulle det vara närmast omöjligt att identifiera uran-236 och uran-233 från uran-238 genom att försöka mäta deras radioaktivitet, men genom att räkna atomerna med mass-spektrometri är det möjligt. Det kan tilläggas att det skulle vara helt ofarligt att dricka vatten med de här extremt låga halterna, om vi bortser från det faktum att det inte är lämpligt att dricka havsvatten av andra skäl.

Var kommer nukliderna ifrån?

Uran-233, uran-236 och jod-129 förekommer i ytterst små mängder på jorden genom naturliga processer och syns inte alls i de här mätningarna. Däremot går det att identifiera samma nuklider när de uppkommer som ett resultat av mänsklig aktivitet. I korta ordalag så härstammar uran-233 från de atmosfäriska atombombsproven på 1950- och 60-talen medan uran-236 kommer både från atombombsprov och från använt kärnbränsle. I det sistnämnda fallet är det när en neutron absorberas av uran-235 utan att orsaka kärnklyvning som den istället ombildas till uran-236, därför skapas en viss mängd av nukliden när en kärnreaktor är i drift. Jod-129 är en klyvningsprodukt och skapas också vid drift av kärnreaktorer. Upparbetningsanläggningarna Sellafield i Storbritannien och La Hague i Frankrike har utsläpp i havet av låga halter av uran-236 och jod-129. Via strömmar kommer en del av dessa ämnen in i Östersjön. Det finns även ett bidrag av uran-236 i Östersjön efter Tjernobylolyckan 1986. Figur 1 ovan från artikeln visar information om strömmar, olika regioner av Östersjöområdet, kärntekniska anläggningar och var proverna är tagna.

I artikeln jämförs kvoter mellan de olika uppmätta nukliderna för att hitta samband som visar på varifrån de kommer. Det är väldigt lätt att gå vilse i metodiken så här ges endast ett förenklat resonemang. I figur 2 nedan finns ett exempel där kvoten av mängden uran-233/uran-236 visas för de olika proverna, på den horisontella axeln visas salthalten i vattnet. Om allt uran-236 kommer från atombomber så är kvoten 0,014 (grönstreckad linje), något som är välkänt från tidigare studier. I samtliga prover är kvoten lägre än 0,014, vilket innebär att det finns ett bidrag av uran-236 som kommer från andra källor. För proverna med hög salthalt i Kattegatt och Skagerak (svarta punkter) är kvoten väldigt låg, vilket visar på ett bidrag av uran-236 från Sellafield och La Hague (den turkosstreckade linjen visar motsvarande kvot i havet utanför Sellafield). I Östersjön (blå punkter)

uppvisar proverna kvoter mellan de båda extremfallen, vilket skulle kunna förklaras med att Nordsjövatten med uran från upparbetningsanläggningarna har blandats ut med Östersjövatten som främst har bidrag från atombomber. Men genom att titta på flera liknande kvoter, och modeller för hur vattnet från Nordsjön blandas med vatten från älvarna, kommer artikelförfattarna fram till att det finns ett extra bidrag av uran-236 i Östersjön som härstammar från använt kärnbränsle. Från de modeller och antaganden som görs, baserat på mätdata, räknar de fram att det finns ett överskott på omkring 200 gram uran-236 som kommer från använt kärnbränsle med ursprung i Östersjöområdet. Det är alltså frågan om 200 gram uran-236 som är någorlunda jämnt fördelat i hela Östersjöns vattenvolym.



Figur 2. Punkterna visar kvoten av antalet uppmätta atomer uran-233 jämfört med uran-236 i en liter havsvatten. De streckade linjerna visar de båda extremvärdena för uran från atombomber (grön) och från använt kärnbränsle (turkos) samt medelvärden för prover tagna i Kattegatt och Skagerak (svart) samt i Östersjön (blå).

Så var kommer detta extra uran-236 från? Utöver vattenproverna redovisas i artikeln mätresultat för bottensediment från flera platser i Östersjön, och de prover som tagits nära Studsvik uppvisar höga värden. Därför är det lätt att dra slutsatsen att någon verksamhet vid Studsviks kärntekniska anläggningar är orsaken. Artikelförfattarna resonerar om alternativ som utsläpp från Studsvik,

dumpning av kärnbränsle i Östersjön utanför Studsvik, eller att något annat land har dumpat kärnbränsle i havet.

Det finns dokumenterat att svenska dumpningar av radioaktiva ämnen skedde på 1950- och 60-talen i Östersjön och i Atlanten (se exempelvis i detta dokument från IAEA). Det var en tid då den allmänna synen på avfallshantering och miljöskydd var väldigt annorlunda jämfört med idag. Avfallet göts in i betong i plåtfat som sänktes i Östersjön, bland annat utanför Landsort där havet är över 400 meter djupt. På samma ställe har Sverige dumpat uttjänt ammunition och annat avfall. Men det är inte troligt att använt bränsle skulle vara del av dessa dumpningar. Allt bränsle som använts i svenska reaktorer är dokumenterat och finns antingen i mellanlagret CLAB utanför Oskarshamn eller vid någon anläggning utomlands. Däremot är det inte otänkbart att verksamheten i Studsvik tidigare kan ha haft utsläpp som innehåller rester från laboratoriearbete med använt kärnbränsle, men det är svårt att se hur det skulle kunna leda till så stora mängder uran-236 som räknats fram av forskargruppen. Om 200 gram uran-236 från använt bränsle har kommit ut i vattnet så innebär det att åtminstone 20 kg använt bränsle har lösts upp. Det är väldigt stora mängder bränsle om det är frågan om rester från laboratoriearbete. Om det däremot är frågan om dumpat bränsle så är storleksordningen rimlig. I båda fallen bör det gå att se spår av andra nuklider från bränslet, men de olika ämnenas kemiska egenskaper kan ge variationer i hur de sprids och deponeras. Här skulle fortsatta studier kunna komplettera den information som presenteras i artikeln. Ett annat alternativ är att de dumpningar av radioaktiva ämnen som skedde i samband med Sovjetunionens upplösning även innehöll rester av använt kärnbränsle, men även då bör det gå att se spår av andra nuklider.

Artikeln i Nature avslutas just med ett resonemang om att den okända källan av uran-236 från använt bränsle skulle kunna innebära att det även finns andra radionuklider på samma plats som skulle kunna frigöras vid ett senare tillfälle och ställa till problem. Om källan är dumpat använt bränsle så skulle det kunna vara korrekt då det uran-236 som nu upptäckts kan indikera en urlakning av det använda bränslet. Men även urlakning av andra ämnen i bränslet, som cesium-137, bör i så fall ske i långsam takt och inte innebära en plötsligt ökad frigörelse av radioaktivitet. Om källan istället är utsläpp från Studsviks verksamhet så bör övriga ämnen som frigjorts, exempelvis cesium-137, ha spridits på motsvarande sätt från utsläppspunkten. I så fall finns inget skäl att förvänta

sig en plötslig frigörelse av material från en enskild punkt.

Oavsett vad som är orsaken, inklusive möjligheten att forskargruppens modeller skulle kunna innehålla något felaktigt antagande, så bör studien följas upp med fler undersökningar för att ge ledtrådar om de dumpningar och utsläpp som skett tidigare. I väntan på att detta sker går det att imponeras av att det är möjligt att mäta så pass låga halter av de här nukliderna i havsvatten.