



# 3

## RADIOAKTIIVISET AINEET ULKOILMASSA

Tuomas Valmari ja Roy Pöllänen

### SISÄLLYSLUETTELO

3.1	Kaasut, höyryt ja hiukkaset .....	61
3.2	Aerosolihiukkasten pitoisuus ja kokojakauma .....	69
3.3	Hiukkasten liike ilmassa .....	72
3.4	Radioaktiivisten aineiden kulkeutuminen ilmassa .....	77
3.5	Laskeuma .....	89
3.6	Radioaktiiviset hiukkaset vakavista reaktori- onnettomuuksista ja ydinasekokeista .....	94
3.7	Aerosolinäytteiden keruu- ja analyysimenetelmiä .....	101
3.8	Ilman ja laskeuman radioaktiivisten aineiden valvonta ..	105

Ulkoilma sisältää kaasujen ja höyryjen lisäksi kiinteitä ja nestemäisiä aineita. Aineet ovat pieninä hiukkasina, joita on tuhansia kuutiosenttimetrissä ulkoilmaa. Kaasusta ja siinä olevista hiukkasista – aerosolihiukkasista – muodostuvaa kokonaisuutta sanotaan aerosoliksi. Ulkoilmassa useimmat radionuklidit esiintyvät kemiallisina yhdisteinä, jotka ovat ulkoilman lämpötilassa kiinteitä tai nestemäisiä. Niinpä ilman sisältämät radionuklidit ovat pääasiassa aerosolihiukkasiin kiinnittyneinä, poikkeuksena muun muassa jalokaasut ja osa jodista.

Ilman sisältämät hiukkaset ovat vaihtelevan kokoisia. Koko ilmaistaan yleensä hiukkasen halkaisijan avulla ja useimmiten yksikkönä käytetään mikrometriä ( $\mu\text{m}$ ). Aerosolihiukkaset voi jakaa muodostumistavan ja käyttäytymisen perusteella kahteen luokkaan. Halkaisijaltaan alle 1  $\mu\text{m}$  pienhiukkaset ovat alun perin muodostuneet yhteen kasautuneista kaasu- ja höyrymolekyyleistä. Pienhiukkaset sisältävätkin vain sellaisia aineita, jotka ovat vapautuneet ilmaan kaasuna tai höyrynä. Suuremmat hiukkaset vapautuvat ilmaan mekaanisesti, esimerkiksi tuulen maasta nostamina.

Ydinreaktorionnettomuudessa, ydinräjähdyksessä tai muussa poikkeuksellisessa tilanteessa ilmaan vapautuvat radioaktiiviset aineet voivat kulkeutua tuulen mukana jopa satoja kilometrejä vuorokaudessa. Hengitettynä ilman sisältämät radioaktiiviset aineet altistavat sisäiselle säteilylle. Lopulta aineet poistuvat ilmasta kuivalaskeumana tai sateen mukana märkälaskeumana. Normaalisti ulkoilmassa on keinotekoisia radioaktiivisia aineita erittäin vähän. Esimerkiksi vuonna 2001 suomalaiset saivat ulkoilman keinotekoisista radioaktiivista aineista keskimäärin noin yhden nanosievertin (nSv) efektiivisen annoksen.

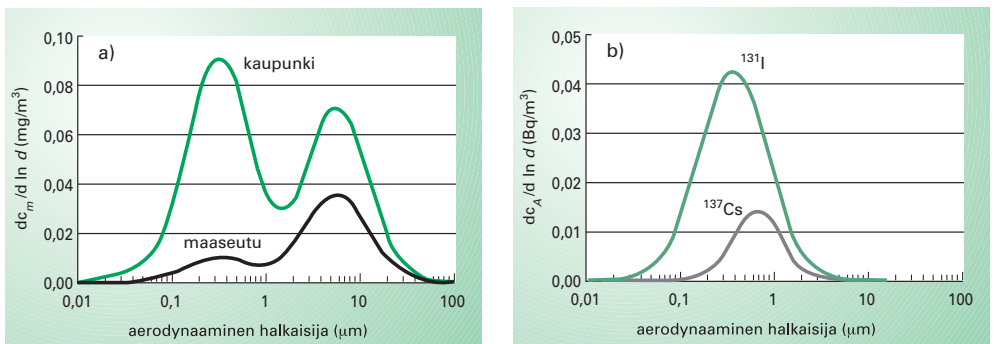
Kosminen säteily tuottaa ilmakehään luonnon radionuklideista muun muassa tritiumia sekä  $^{14}\text{C}$ :ää ja  $^{22}\text{Na}$ :ta, jotka ovat mukana vastaavien alkuaineiden kiertokulussa biosfäärissä. Samoja radionuklideja vapautui ilmakehään myös ydinasekokeista. Kosmogeenisesta  $^{14}\text{C}$ :sta aiheutuu noin 0,012 millisievertin (mSv) efektiivinen annos vuodessa (luku 2.4). Ulkoilman radon aiheuttaa samaa suuruusluokkaa olevan annoksen.  $^{14}\text{C}$  on ilmakehässä hiilidioksidina ja kulkeutuu muun hiilen mukana ravintoon. Efektiivisestä annoksesta vain prosentti tulee hengityksen kautta, loput ravinnosta.

### 3.1 Kaasut, höyryt ja hiukkaset

Ulkoilmassa on merkittäviä määriä sekä alle 1  $\mu\text{m}$  pienhiukkasia että tätä suurempia hiukkasia (kuva 3.1 a). Radioaktiivisten aineiden määrä ulkoilman hiukkasten kokonaismassasta on häviävän pieni. Suurin osa yleisimmistä radionuklideista on ulkoilmassa kiinteinä tai nestemäisinä yhdisteinä ja sitoutuneena aerosolihiukkasiin. Höyrystymällä ilmaan vapautuvat radioaktiiviset aineet päätyvät yleensä pienhiukkasiksi (kuva 3.1 b). Ulkoilmassa kaasuihin ovat muun muassa jalokaasut (esimerkiksi krypton, xenon ja radon), jotka ovat kemiallisesti inertejä eivätkä siten muodosta kemiallisia yhdisteitä muiden aineiden kanssa. Hiilen isotooppi  $^{14}\text{C}$  on ilmassa stabiilin hiilen tavoin pääasiassa hiilidioksidina ja vedyn  $^3\text{H}$ -isotooppi stabiilin vedyn tavoin vetenä. Jodi on ilmassa sekä hiukkasissa että kaasumaisena.

#### Suuret hiukkaset vapautuvat ilmaan mekaanisesti

Tuulen maasta nostama pöly on tyypillinen esimerkki mekaanisesti vapautuvista hiukkasista (kuva 3.2). Pinnalla olevaa hiukkasta pitää paikallaan adheesiovoima, jonka voimakkuus on verrannollinen hiukkasen halkaisijaan  $d$ . Ilmavirtauksen hiukkasta irrottava voima on puolestaan verrannollinen halkaisijan neliöön  $d^2$ , joten hiukkasta irrottavan voiman suhde sitä paikallaan pitävään voimaan on sitä suurempi mitä suurempi hiukkanen on. Sen vuoksi ilmavirtaus irrottaa pinnalta helpommin suuria kuin pieniä hiukkasia. Tuulen maasta nostamien hiukkasten tyypillinen alarajakoko on noin 10  $\mu\text{m}$ .



**KUVA 3.1** Aerosolihiukkasten pitoisuuksia ulkoilmassa hiukkasen halkaisijan funktiona

- a) Tyypillistä massapitoisuuksia kaupungissa ja maaseudulla.  
 b) Tshernobylin onnettomuudesta Suomeen kulkeutuneiden radionuklidien aktiivisuuspitoisuuksia toukokuussa 1986 (Kauppinen et al. 1986). Jodia oli lisäksi kaasumaisena.

Toisaalta yli 50  $\mu\text{m}$  hiukkasia ei maan vetovoiman vuoksi yleensä nouse ilmaan. Poikkeusolosuhteissa, esimerkiksi ilmakehässä tapahtuvan ydin-aseräjähdyksen seurauksena, voi maasta nousta hyvinkin suuria hiukkasia (luku 3.6). Mekaanista vapautumista tapahtuu myös kappaleiden murenemisen ja hajoamisen seurauksena. Tästä ovat esimerkkinä meren pärskeistä ilmaan vapautuvat suolavesipisarot tai auton renkaiden asfaltista irrottama hienojakoinen kiviaines ja piki.

Aiemmin maahan deponoituneet aineet voivat nousta uudelleen ilmaan, jolloin kyseessä on niin sanottu resuspensio. Radioaktiivisten aineiden pitoisuus ilmassa on tällöin kuitenkin useita kertaluokkia pienempi kuin deponoitumisajankohtana vallinnut pitoisuus. Tshernobylin turman jälkeen  $^{137}\text{Cs}$ :n aktiivisuuspitoisuus ilmassa,  $c_A$ , noudatti ainakin parin vuoden ajan yhtälöä

$$c_A = 2 \cdot 10^{-8} \cdot S \cdot e^{-0,06 \cdot t}, \quad (3.1)$$

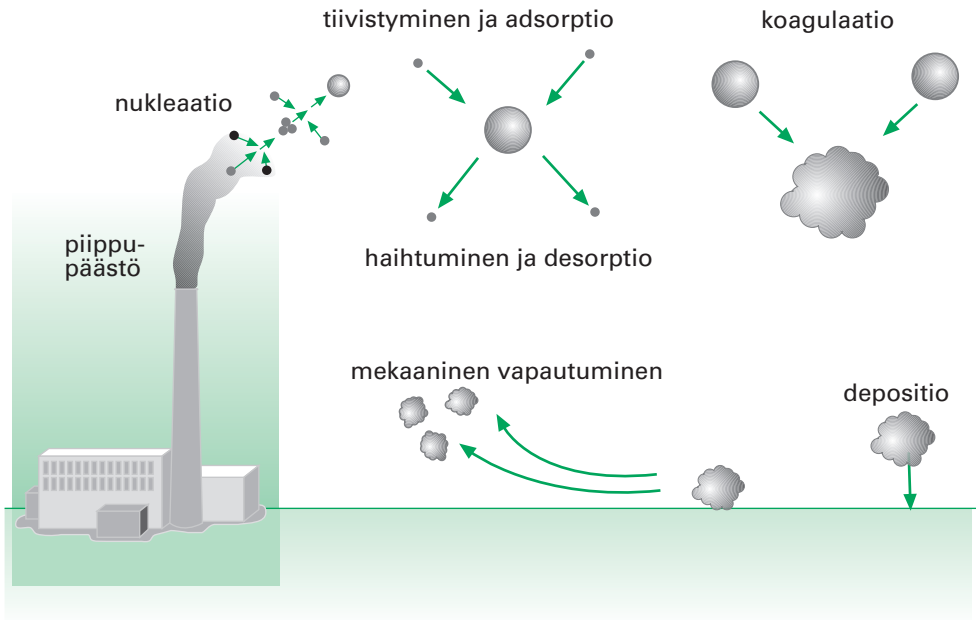
missä  $S$  on radionuklidin määrä maan pinnalla ( $\text{Bq}/\text{m}^2$ ) ja  $t$  on aika laskeumahetkestä kuukausina.

## Pienhiukkaset muodostuvat höyrystä

Pienhiukkaset muodostuvat ylikylläisestä höyrystä. Ylikyllästystila voi syntyä höyryn pitoisuuden kasvaessa tai alikylläisen höyryn lämpötilan laskiessa. Se voi syntyä myös silloin, kun suuren kyllästyshöyrynpaineen yhdiste muuntuu kemiallisen reaktion tai radioaktiivisen hajoamisen seurauksena pienen kyllästyshöyrynpaineen yhdisteeksi. Höyrymolekyyliden keräytymistä yhteen hiukkasiksi kutsutaan nukleaatioksi (kuva 3.2).

Höyryn tai kaasun pitoisuus ilmassa voidaan ilmaista sen osapaineen  $p$  avulla. Jos esimerkiksi joka miljoonas molekyyli normaalipaineista (101 kilopascalina, kPa) ilmaa on tiettyä yhdistettä, on kyseisen yhdisteen osapaine 0,101 Pa. Kemiallisen yhdisteen kyllästyshöyrynpaine  $p_s$  on yhdisteen osapaine, kun höyry ja tiivistynyt olomuoto (neste tai kiinteä olomuoto) ovat tasapainossa. Esimerkiksi veden kyllästyshöyrynpaine alueella 0–100 °C saadaan kokeellisesti määritetystä yhtälöstä

$$p_s(\text{H}_2\text{O}) = \exp\left(16,7 - \frac{4060}{T + 236,15}\right) \text{kPa}, \quad (3.2)$$



**KUVA 3.2 Aerosolihiukkasten muodostumiseen ja käyttäytymiseen liittyviä mekanismeja**

Piipusta vapautuu ulkoilmaan aerosolia, jossa voi olla sekä nukleoitumalla muodostuneita pienihiukkasia että mekaanisesti vapautuneita suuria hiukkasia.

jossa lämpötila  $T$  on annettava Celsius-asteina. Kiehumispisteen kohdalla aineen kyllästyshöyrnpaine on yhtä suuri kuin vallitseva ilmanpaine. Normaalipaineisessa ilmassa kiehuminen siis tapahtuu lämpötilassa, jossa  $p_s = 101$  kPa. Tietyn alkuaineen kemiallisten yhdisteiden kiehumispisteet voivat poiketa toisistaan erittäin paljon (taulukko 3.1).

Jos höyry on ylikylläistä ( $p > p_s$ ), tiivistyy ylijäämä nopeasti nesteeksi tai härmistyy kiinteäksi aineeksi riippuen siitä, onko vallitseva lämpötila aineen sulamispisteen ylä- vai alapuolella. Tiivistyminen tai härmistyminen voi tapahtua joko olemassa olevien aerosolihiukkasten pintaan tai muihin pintoihin, kuten esimerkiksi seinään. Höyryn osapaineen pudotessa kyllästyshöyrnpaineen alapuolelle ( $p < p_s$ ) yhdistettä höyrystyy (tai sublimoituu) pinnoilta. Tiivistymistä ja höyrystymistä (tai härmistymistä ja sublimoitumista) tapahtuu yhtä paljon silloin, kun höyryn osapaine on kyllästyshöyrnpaineen suuruinen ( $p = p_s$ ).

Pienen hiukkasen pinta on voimakkaasti kaareva, minkä seurauksena pinnan molekyylien välinen vetovoima on pienempi kuin suuren hiukkasen lähes tasaisella pinnalla. Molekyylit siis höyrystyvät pinnalta sitä helpommin, mitä pienempi hiukkanen on. Nettotiivistyminen hiukkasen pinnalle

Yhdiste		Kiehumis- piste (°C)
Jalokaasuja		
Krypton	Kr	-152
Ksenon	Xe	-107
Radon	Rn	-62
Berylliumyhdisteitä		
Beryllium	Be	2 470
Berylliumoksidi	BeO	3 900
Fissiotuotteiden yhdisteitä		
Jodi	I <sub>2</sub>	184
Vetyjodidi	HI	-35
Metyylijodidi	CH <sub>3</sub> I	42
Cesiumjodidi	CsI	1 280
Cesiumhydroksidi	CsOH	990
Rutenium	Ru	4 150
Ruteniumoksidi	RuO <sub>4</sub>	40
Strontium	Sr	1 380
Strontiumoksidi	SrO	3 000
Uraaniyhdisteitä		
Uraani	U	4 100
Uraanidioksidi	UO <sub>2</sub>	3 500
Uraaniheksafluoridi	UF <sub>6</sub>	56

**TAULUKKO 3.1 Eräiden aineiden ja yhdisteiden kiehumispisteitä**

höyry tiivistyy tai härmistyy olemassa olevien tiivistymisytimien – esimerkiksi ilman ionien – pintaan. Homogeenisessä nukleaatiossa ei ole tiivistymisytimiä apuna. Tällöin pysyvien hiukkasten muodostuminen edellyttää hyvin voimakasta ylikylläisyyttä; kyllästyssuhteen  $p/p_s$  täytyy olosuhteista riippuen olla silloin vähintään 2–10. Ulkoilmassa näin suuria kyllästyssuhteita esiintyy harvoin, koska höyryt tiivistyvät muiden hiukkasten pintaan jo pienenkin ylikylläisyytilan vallitessa. Heterogeeninen nukleaatio onkin homogeenistä selvästi yleisempi uusien hiukkasten muodostusmekanismi.

### Höyrystä hiukkasiksi – tiivistyminen ja adsorptio

Ylikylläinen höyry tiivistyy aerosolihukkasten pintaan kasvattaen hiukkasten kokoa (kuva 3.2). Höyry voi hiukkasten sijasta tiivistyä myös sei-niin tai muihin pintoihin. Mitä vähemmän ilmassa on hiukkasia, sitä suurempi osuus tiivistyy muualle kuin hiukkasiin.

edellyttää höyrynpainetta  $p_d$ , joka on sitä suurempi, mitä pienempi hiukkanen on. Yli 1 µm hiukkasille  $p_d \approx p_s$ . Tämän niin sanotun Kelvinin efektin takia aerosolihiuksien koolla on alaraja, jota pienempi hiukkanen ei ole stabiili. Molekyyli-ryppästä tulee pysyvä hiukkanen, kun se kasvaa niin suureksi, että  $p > p_d$ .

Ilman ionit ovat sähkövarauksisia kymmenistä tai sadoista kaasumolekyyleistä koostuvia ryppäitä. Varaus on useimmiten yhden alkeisvarauksen suuruinen ja voi olla joko positiivinen tai negatiivinen. Ionit eivät ole stabiileja kuten hiukkaset, mutta sähkövarauksensa ansiosta niiden elinikä on huomattavasti pidempi – ulkoilmassa kymmeniä sekunteja – kuin varauksettomien molekyyli-ryppäiden. Ionien lukumääräpitoisuus asettuu sellaiselle tasolle, että niitä muodostuu yhtä paljon kuin hajoaa. Ulkoilmassa tasapainopitoisuus on noin 1 000 kpl/cm<sup>3</sup>.

Heterogeenisessä nukleaatiossa pysyviä hiukkasia muodostuu, kun ylikylläinen

Aerosolihukkasiin tiivistyvä aine rikastuu pieniin hiukkasiin, jolloin tiivistyneen aineen osuus hiukkasen kokonaismassasta on sitä suurempi, mitä pienempi hiukkanen on. Jos ilmassa on erikokoisia hiukkasia, on hiukkaseen tiivistyvän aineen massan  $M_h$  ja hiukkasen kokonaismassan  $M$  suhde sitä suurempi mitä pienempi hiukkanen on.

$$\frac{M_h}{M} \propto \frac{1}{d^2}, \text{ kun } d \gg 0,07 \text{ } \mu\text{m}, \quad (3.3)$$

missä  $d$  on hiukkasen halkaisija. Ulkoilmassa on pienhiukkasia massan yksikkönä ilmaistuna suunnilleen yhtä paljon kuin suuria hiukkasia (kuva 3.1 a), joten tiivistyvistä höyrystä vain erittäin pieni osa kertyy suurten hiukkasten pintaan.

Pienten hiukkasten yhteenlaskettu pinta-ala on suurempi kuin suurten hiukkasten, jos pienten ja suurten hiukkasten kokonaismassa on sama. Suhde  $M_h/M$  ei siitä huolimatta ole suoraan verrannollinen hiukkasen pinta-alaan ja massan suhteeseen (paitsi kun  $d \ll 0,07 \text{ } \mu\text{m}$ ), koska tiivistymisnopeuden määräävä tekijä ei ole käytettävissä oleva pinta-ala vaan nopeus, jolla molekyylit diffundoituvat hiukkasen pintaan.

Vettä imevät eli hygroskooppiset aineet, kuten esimerkiksi CsOH ja CsI, voivat muodostaa vesiliuoksen myös silloin kun suhteellinen kosteus on alle 100 prosenttia. Hygroskooppisista aineista muodostuneiden hiukkasten koko kasvaa, kun ne keräävät vettä kosteasta ilmasta.

Alikylläiset höyryt ja muut kaasumaiset aineet sitoutuvat pintoihin adsorboitumalla. Monia kaasuja voidaan erottaa ilmasta aktiivihiiileen tapahtuvan adsorption avulla. Adsorptio voidaan jakaa fysisorptioon ja kemisorptioon. Fysisorptiossa kaasumolekyylit ja pinnan molekyylit vetävät toisiaan puoleensa van der Waals -voimien kaltaisten heikkojen voimien vaikutuksesta. Fysisorptiolla heikosti sitoutuneet molekyylit helposti desorboituvat eli irtoavat pinnalta. Esimerkiksi radonin pidättyminen aktiivihiiileen perustuu fysisorptioon. Kemisorptiossa muodostuu kemiallinen sidos, joka on paljon voimakkaampi kuin van der Waals -voiman aiheuttama sidos.

Hiukkasen sisällä voi esimerkiksi radioaktiivisen hajoamisen seurauksena syntyä kaasumaisia aineita, jotka aikaa myöten kulkeutuvat diffuusion seurauksena hiukkasen pintaan ja siitä edelleen ilmaan.



ESIMERKKI 3.1

Kuutiometrissä kosteaa ilmaa on 1 mg halkaisijaltaan 1  $\mu\text{m}$  sekä 10 mg halkaisijaltaan 10  $\mu\text{m}$  pyöreitä hiukkasia. Kaikkien hiukkasten tiheys on sama. Hiukkasten pintaan tiivistyy höyryä. Höyryn määrä on niin vähäinen, ettei hiukkasten halkaisija kasva merkittävästi tiivistymisen seurauksena. Mikä osuus tiivistyy 1  $\mu\text{m}$  ja mikä 10  $\mu\text{m}$  hiukkasten pintaan?

$$\text{Yhtälön 3.3 mukaan } \frac{M_{h,i}}{M_i} = \frac{C}{d_i^2},$$

missä  $M_{h,i}$  on kokoluokan  $i$  hiukkasiin tiivistyvän veden määrä,  $M_i$  on kokoluokan  $i$  hiukkasten kokonaismassa,  $C$  on vakio ja  $d_i$  on kokoluokan  $i$  hiukkasten halkaisija. Tässä tapauksessa  $M_1 = 1 \text{ mg}$ ,  $M_2 = 10 \text{ mg}$ ,  $d_1 = 1 \text{ }\mu\text{m}$  ja  $d_2 = 10 \text{ }\mu\text{m}$ , joten

$$C = \frac{M_{h,1} \cdot (1\mu\text{m})^2}{1 \text{ mg}} = \frac{M_{h,2} \cdot (10\mu\text{m})^2}{10 \text{ mg}}$$

$$\Rightarrow \frac{M_{h,1}}{M_{h,2}} = 10.$$

Merkitsemällä tiivistyvän veden kokonaismääräksi 1 saadaan

$$M_{h,1} + M_{h,2} = 1 \Rightarrow M_{h,1} = 0,91 \text{ ja } M_{h,2} = 0,09.$$

Höyrystä 91 prosenttia tiivistyy 1  $\mu\text{m}$  hiukkasten pintaan, vaikka näiden osuus hiukkasten kokonaispinta-alasta on vain puolet ja kokonaismassasta vain 9 prosenttia.

Jodi on osin kaasumaisena, osin sitoutuneena hiukkasiin

Kaasumaista jodia on ulkoilmassa orgaanisina (esimerkiksi  $\text{CH}_3\text{I}$ ) ja epäorgaanisina (esimerkiksi  $\text{I}_2$ ) yhdisteinä. Jodin kemiallinen olomuoto vaikuttaa muun muassa siihen, kuinka suuren laskeuman tietty määrä jodia ilmassa aiheuttaa (luku 3.5).

Alkuainemuodossa oleva jodi ( $\text{I}_2$ ) sekä metyylijodidi  $\text{CH}_3\text{I}$  hajoavat kemiallisesti auringon valon vaikutuksesta.  $\text{I}_2$ :n keskimääräinen elinikä on alle minuutti ja  $\text{CH}_3\text{I}$ :n noin viikko. Hajoamisessa vapautuneet jodiatomit

muodostavat epäorgaanisia jodiyhdisteitä sekä uudelleen I<sub>2</sub>:ta. Jodia adsorboituu aerosolihiukkasten pintaan. Jodista on hiukkasiin sitoutuneena sitä suurempi osuus, mitä enemmän ilmassa on hiukkasia. Tyypillisellä ulkoilmassa vallitsevalla hiukkasten massapitoisuudella 0,01–0,1 mg/m<sup>3</sup> on stabiilista jodista, jonka uskotaan vapautuvan ilmaan etupäässä mestä metyyljodidina, noin 15–25 prosenttia hiukkasissa.

Jodin alkuperäinen olomuoto vaikuttaa jodihiukkasten ja -kaasun suhteelliseen osuuteen. Vakavassa ydinreaktorionnettomuudessa jodi voi vapautua ympäristöön pääosin kaasumaisena. Toisaalta osa jodista voi vapautua esimerkiksi cesiumjodidina (CsI), joka on ulkoilman lämpötilassa aerosolihiukkasiin sitoutunutta eikä muunnu höyrystyviksi yhdisteiksi.

Tshernobylin onnettomuuden jälkeen eri puolilla pohjoista pallonpuoliskoja tehdyissä mittauksissa 20–30 prosenttia nuklideista <sup>131</sup>I ja <sup>133</sup>I havaittiin olevan hiukkasissa ja loput kaasumaisena. Lyhytikäisestä <sup>132</sup>I:stä ( $T_{1/2} = 2,3$  h, liite 3) sen sijaan jopa kaksi kolmasosaa oli hiukkasissa. <sup>132</sup>I oli muodostunut pääasiassa vasta päästön kulkeutuessa ilmassa, koska ennen onnettomuutta muodostunut <sup>132</sup>I oli ehtinyt hajota. Sen äitinuklidi <sup>132</sup>Te ei ole kaasumaisena, joten ulkoilman <sup>132</sup>I oli muodostuessaan aerosolihiukkasiin sitoutuneena. Kaasuna havaittiin vain se osuus, joka oli ehtinyt desorboitua.

Ydinaseen räjähtäessä ilmakehässä myös <sup>131</sup>I ja muut pitkäikäisemmät jodi-isotoopit ovat pääosin hiukkasiin sitoutuneena. Pitkäikäisiä isotooppeja muodostuu vasta räjähdysten jälkeen peräkkäisten beeta-hajoamisten seurauksena. Jodin emoaine tellurium tiivistyy räjähdysten jälkeen aerosolihiukkasten pintaan, joten jodi on muodostuessaan hiukkasissa. Aikaa myöten sitä kuitenkin desorboituu hiukkasista.

## Hiukkaset kasvavat kiinnittymällä toisiinsa

Ilmassa olevat hiukkaset koaguloituvat eli törmäävät ja takertuvat toisiinsa (kuva 3.2). Tärkein syy törmäyksiin on aerosolihiukkasten Brownin liike. Se on hiukkasten satunnaisliikettä, joka johtuu jatkuvasta eri suunnista törmäävien kaasumolekyylien pommituksesta. Kyseessä on terminen koagulaatio, kun hiukkasten väliset törmäykset johtuvat Brownin liikkeestä. Törmäyksiä voi tapahtua myös ulkoisten voimien kuten gravitaation tai ilman turbulenttien pyörteiden vaikutuksesta. Tällöin on kyseessä kinemaattinen koagulaatio.

Jos hiukkaset jaetaan koon perusteella  $n$  eri kokoluokkaan, koaguloituu kokoluokkaan  $i$  kuuluvia hiukkasia muiden hiukkasten kanssa taajuudella  $J_i$  ( $1/(m^3s)$ )

$$J_i = c_{ni} \sum_{j=1}^n K_{ij} c_{nj}, \quad (3.4)$$

missä  $K_{ij}$  on koagulaatiokerroin ( $m^3/s$ ) ja  $c_{ni}$  on kokoluokan  $i$  hiukkasten lukumääräpitoisuus eli yksikkötilavuudessa olevien hiukkasten lukumäärä ( $1/m^3$ ). Kahden samankokoisen hiukkasen termistä koagulaatiota kuvaava koagulaatiokerroin  $K_{ii}$  on ulkoilman olosuhteissa  $3 \cdot 10^{-16} m^3/s$ , kun  $d_i > 1 \mu m$ . Alle  $1 \mu m$  pienhiukkasille se on suurempi, maksimissaan  $10^{-15} m^3/s$ . Jos kaikki aerosolihiukkaset ovat samankokoisia, eli aerosoli on monodispersiivistä, on hiukkasten lukumääräpitoisuus hetkellä  $t$

$$c_n(t) = \frac{c_n(0)}{1 + c_n(0)Kt}. \quad (3.5)$$

Alkuperäistä hetkellä  $t = 0$  vallinnutta lukumääräpitoisuutta  $c_n(0)$  ei useinkaan tiedetä. Yhtälöstä 3.5 voidaan kuitenkin päätellä, että pitoisuus hetkellä  $t$  on korkeintaan  $1/(Kt)$ , jos kokonaan uusia hiukkasia ei hetken  $t = 0$  jälkeen synny. Muutamia sekunteja hiukkasten muodostumisen jälkeen lukumääräpitoisuus on alle  $10^{15} \text{ kpl}/m^3$  ja tunnin kuluttua alle  $10^{12} \text{ kpl}/m^3$  riippumatta siitä, kuinka suuri oli alkuperäinen lukumääräpitoisuus. Koagulaation vuoksi kaukana olevasta päästölähteestä kulkeutuneet hiukkaset eivät voi olla miten pieniä tahansa. Pääosa hiukkasten massasta ja niiden sisältämistä radioaktiivisista aineista on yleensä suuremmissa kuin  $0,1 \mu m$  hiukkasissa. Toisaalta radioaktiivisia aineita voi ilmassa olla jatkuvasti jopa alle  $0,01 \mu m$  molekyyliyrppäinä, jos uusia yrppäitä muodostuu sitä mukaa, kun vanhat koaguloituvat suurempien aerosolihiukkasten kanssa. Radonin hajoamistuotteet käyttäytyvät tällä tavalla (luku 4).

Erikokoisten kokoluokkiin  $i$  ja  $j$  kuuluvien hiukkasten keskinäinen termien koagulaatiokerroin  $K_{ij}$  on aina suurempi kuin samankokoisten hiukkasten koagulaatiokertoimet  $K_{ii}$  ja  $K_{jj}$ . Ulkoilman pienhiukkasten koagulaatio suurten hiukkasten kanssa on kuitenkin hyvin hidasta, koska suurta hiukkasia on ilmassa lukumääräisesti hyvin vähän.

Sateella hiukkasten kinemaattinen koagulaatio kookkaksiin vesipisaroihin on merkittävää. Pisaroiden nopea putoaminen nostaa koagulaationopeutta erittäin paljon verrattuna siihen, että pisara olisi paikallaan. Sadepisara kerää mukaansa käytännössä kaikki reittinsä varrella olevat yli  $20 \mu m$  hiukkaset. Pienemmät hiukkaset pyrkivät seuraamaan pisaran tieltä väistyvää ilmapirtausta. Sadepisaran ja hiukkasen välinen koagulaatio on

vähiten tehokasta, kun hiukkasen halkaisija on 0,1–1  $\mu\text{m}$ . Tätä pienemmät hiukkaset kerääntyvät pisaroihin termisen koagulaation avulla.

Jos hiukkaset ovat nestemäisiä tai muodostavat keskenään liuoksen (vaikkapa vesipisara ja CsOH-hiukkanen), syntyy koagulaation seurauksena pallomainen nestehiukkanen. Sitä vastoin kiinteät hiukkaset eivät törmätessään täysin sulaudu toisiinsa, vaan muodostavat toisiinsa kiinnittyneistä hiukkasista koostuvan rakenteen eli agglomeraatin. Kiinteiden hiukkasten koagulaatiota kutsutaankin agglomeraatioksi.

### 3.2 Aerosolihiukkasten pitoisuus ja kokojakauma

#### Pitoisuus

Ilmassa olevien aineiden määrä ilmoitetaan usein massapitoisuutena  $c_m$ . Sen yksikkö on tavallisesti  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  tai  $\text{mg}/\text{m}^3$ . Kuitenkin radioaktiivisten aineiden määrä ilmoitetaan yleensä aktiivisuuspitoisuutena  $c_A$  ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ ). Tietyn nuklidin  $i$  aktiivisuuspitoisuuden  $c_{A,i}$  ja kyseisen nuklidin massa-  
pitoisuuden  $c_{m,i}$  suhde on

$$\frac{c_{A,i}}{c_{m,i}} = \frac{\ln 2 \cdot N_A}{T_{1/2} \cdot M}, \quad (3.6)$$

missä  $T_{1/2}$  on nuklidin puoliintumisaika,  $N_A$  on Avogadron luku ( $6,02 \cdot 10^{23}$  1/mol) ja  $M$  on nuklidin moolimassa (g/mol).

#### ESIMERKKI 3.2

Ulkoilmassa  ${}^7\text{Be}$ :n aktiivisuuspitoisuus on Suomessa tyypillisesti  $10^{-3}$   $\text{Bq}/\text{m}^3$ . Mikä on vastaava massapitoisuus? Entä mikä on  ${}^{222}\text{Rn}$ :n aktiivisuuspitoisuutta 200  $\text{Bq}/\text{m}^3$  vastaava massapitoisuus?

Puoliintumisaajat ovat 53,3 d ( ${}^7\text{Be}$ ) ja 3,82 d ( ${}^{222}\text{Rn}$ ) sekä moolimassat 7 g/mol ( ${}^7\text{Be}$ ) ja 222 g/mol ( ${}^{222}\text{Rn}$ ), katso liite 1. Yhtälöstä 3.6 saadaan

$$c_m({}^7\text{Be}) = \frac{10^{-3} \text{ Bq}/\text{m}^3 \cdot (53,3 \cdot 86400 \text{ s}) \cdot 7 \text{ g/mol}}{4,17 \cdot 10^{23} \text{ 1/mol}} = 8 \cdot 10^{-20} \text{ g}/\text{m}^3$$

$$c_m({}^{222}\text{Rn}) = \frac{200 \text{ Bq}/\text{m}^3 \cdot (3,82 \cdot 86400 \text{ s}) \cdot 222 \text{ g/mol}}{4,17 \cdot 10^{23} \text{ 1/mol}} = 4 \cdot 10^{-14} \text{ g}/\text{m}^3.$$

Aerosolihiukkasten lukumääräpitoisuus  $c_n$  on yksikkötilavuudessa olevien aerosolihiukkasten lukumäärä (yksikkö  $1/m^3$ , usein myös  $1/cm^3$ ). Jos hiukkaset ovat pyöreitä ja samankokoisia, on massapitoisuuden ja lukumääräpitoisuuden välinen yhteys

$$c_m = c_n \frac{\pi \cdot \rho \cdot d^3}{6}, \quad (3.7)$$

missä  $d$  on hiukkasten halkaisija ja  $\rho$  on niiden tiheys.

Pitoisuudet ilmoitetaan usein normitettuna esimerkiksi NTP-olosuhteisiin ( $0^\circ\text{C}$  lämpötilaan ja  $101,325\text{ Pa}$  paineeseen), jolloin pitoisuutta laskettaessa käytetään vallitsevan ilman tilavuuden sijasta sitä tilavuutta, joka ilmalla olisi NTP-olosuhteissa. Ilman tiheys on 11 prosenttia suurempi  $0^\circ\text{C}$ :ssa kuin  $30^\circ\text{C}$ :ssa, joten  $1\text{ m}^3$  kolmekymmenasteista ilmaa kutistuu tilavuuteen  $0,90\text{ m}^3$  jäähtyessään  $0^\circ\text{C}$ :een. Jäähtymisen seurauksena ilman hiukkasten normittamaton – eli ilman todelliseen tiheyteen perustuva – massapitoisuus kasvaa 11 prosenttia, mutta normitettu pitoisuus ei muutu.

Höyryn massapitoisuuden (normitettuna lämpötilaan  $T_0$  ja paineeseen  $P_0$ ) ja osapaineen  $p$  välinen yhteys on

$$c_m = \frac{M}{R \cdot T_0} \cdot \frac{P_0}{P} p, \quad (3.8)$$

missä  $R$  on kaasuvakio ( $8,314\text{ J}/(\text{mol K})$ ) ja  $P$  on vallitseva ilmanpaine. Normitettu lämpötila on ilmoitettava Kelvineinä.

## Aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraali

Hengityksen kautta saatava sisäisen säteilyn annos on verrannollinen aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraaliin (yksikkö  $\text{Bq s}/\text{m}^3$ ). Integroimisväli alkaa siitä hetkestä, jolloin saastuneen ilman hengittäminen alkaa ja päättyy siihen hetkeen, jolloin ilma on puhdistunut. Annos voidaan laskea kertomalla aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraali altistusajana ihmisen hengitysnopeudella (yksikkö  $\text{m}^3/\text{s}$ ) ja annosmuuntokertoimella ( $\text{Sv}/\text{Bq}$ ). Kertoimen arvo on nuklidikohtainen ja riippuu myös kemiallisesta olomuodosta (luku 7).

## Aerosolihiukkasten kokojakauma

Aerosolihiukkasten kokojakaumia esitettäessä käytetään yleensä logaritmisista asteikkoja hiukkasen halkaisijalle  $d$ , kuten on tehty kuvassa 3.1.

Tällöin y-akselilla esitettävä suure on logaritminen tiheysfunktio  $f$ . Ko-koalueella  $d_1 \dots d_2$  olevien hiukkasten pitoisuus  $c(d_1 \dots d_2)$  saadaan integroimalla tiheysfunktio välin  $\log(d_1) \dots \log(d_2)$  yli,

$$c(d_1 \dots d_2) = \int_{\log(d_1/d_0)}^{\log(d_2/d_0)} f \cdot d(\log(d/d_0)). \quad (3.9)$$

Normitusvakion  $d_0$  arvoksi on kätevintä valita  $1 \mu\text{m}$ , jos halkaisijat on ilmoitettu mikrometreinä (laskun tulos on sama, vaikka  $d_0$ :n arvo olisi joku muu). Funktio  $f$  esitetään usein muodossa

$$f = \frac{dc}{d(\log(d))}, \quad (3.10)$$

missä  $c$  on esitettävä pitoisuus, esimerkiksi massapitoisuus  $c_m$  tai aktiivisuuspitoisuus  $c_A$ . Hiukkasten pitoisuus (kaiken kokoiset hiukkaset mukana) saadaan kun integroimisväli on  $d = 0 \dots \infty$ , eli sijoittamalla yhtälöön 3.9 arvot  $\log(d_1/d_0) = -\infty$  ja  $\log(d_2/d_0) = \infty$ . Kokojakauma voidaan esittää myös histogrammina, jolloin logaritmissen tiheysfunktion sijasta esitetään kuitenkin kokoluokan hiukkasten pitoisuus.

## Aerosolihiukkasen kokoa kuvaavat tunnusluvut

Aerosolin hiukkaskokoa kuvaavia tunnuslukuja on useita. Lukumäärämediaanihalkaisija (CMD = Count Median Diameter) on halkaisija, jota pienempiä puolet hiukkasista on. Vastaavasti puolet massasta on hiukkasissa, joiden halkaisija on pienempi kuin massamediaanihalkaisija (MMD = Mass Median Diameter); ja puolet aktiivisuudesta on hiukkasissa, joiden halkaisija on pienempi kuin aktiivisuusmediaanihalkaisija (AMD = Activity Median Diameter). Mediaanihalkaisijat voidaan esittää myös aerodynaamisen halkaisijan (katso luku 3.3) avulla. Esimerkiksi AMAD (Activity Median Aerodynamic Diameter) on se aerodynaaminen halkaisija, jota pienemmissä hiukkasissa on puolet aktiivisuudesta. Kuvassa 3.1 b AMAD:n arvot ovat  $0,36 \mu\text{m}$  ( $^{131}\text{I}$ ) ja  $0,63 \mu\text{m}$  ( $^{137}\text{Cs}$ ).

Lukumääräjakauman aritmeettinen keskihalkaisija  $\bar{d}$  on hiukkasten halkaisijoiden keskiarvo. Geometrinen keskihalkaisija  $\bar{d}_g$  on

$$\bar{d}_g = (d_1^{n_1} d_2^{n_2} d_3^{n_3} \dots d_i^{n_i})^{1/N}, \quad (3.11)$$

missä hiukkaset on jaettu kokoluokkiin 1, 2, 3, ...  $I$  siten, että kussakin kokoluokassa  $i$  on  $n_i$  kappaletta halkaisijaltaan  $d_i$  olevia hiukkasia. Hiukkasten kokonaislukumäärä on  $N$ . Hiukkasten geometrinen keskihalkaisi-

ja on aina pienempi kuin aritmeettinen keskihalkaisija, paitsi jos kaikki hiukkaset ovat samankokoisia.

Kokojakauman leveyttä kuvataan geometrisen keskihajonnan  $\sigma_g$  avulla. Lukumääräkokojakauman geometrinen keskihajonta on

$$\log(\sigma_g)^2 = \frac{\sum_i n_i (\log(d_i) - \log(\bar{d}_g))^2}{N - 1}, \quad (3.12)$$

missä

$$\log \bar{d}_g = \frac{\sum n_i \log d_i}{N}. \quad (3.13)$$

Jos kaikki hiukkaset ovat samankokoisia,  $\sigma_g = 1$ . Muulloin se on suurempi kuin yksi.

Mallinnettaessa aerosolin käyttäytymistä jakaumat oletetaan usein lognormaaleiksi, jolloin hiukkasen halkaisijan logaritmi (oikeastaan suureen  $d/d_0$  logaritmi, missä  $d_0 = 1 \mu\text{m}$ ) noudattaa normaalijakaumaa. Logaritmisella x-akselilla esitettynä lognormaalijakauman muoto on samanlainen kuin normaalijakauman muoto lineaarisella x-akselilla. Jos aerosolin lukumääräkokojakauma on lognormaali, niin silloin myös massakokojakauma on lognormaali siten, että geometrinen keskihajonta on kummallekin jakaumalle sama. Lognormaalin jakauman logaritminen tiheysfunktio on muotoa

$$f(d) = \frac{c}{\sqrt{2\pi} \log(\sigma_g)} \exp\left(-\frac{(\log d - \log \text{MD})^2}{2(\log \sigma_g)^2}\right), \quad (3.14)$$

missä  $c$  on pitoisuus (esimerkiksi  $c_n$ ,  $c_m$  tai  $c_A$ ) ja MD on vastaava mediaanihalkaisija (esimerkiksi CMD, MMD tai AMD). Lognormaalissa kokojakaumassa 95 prosenttia hiukkasista on kokoalueella  $\text{MD}/\sigma_g^2 \dots \text{MD} \cdot \sigma_g^2$ . Jos esimerkiksi AMD on  $1 \mu\text{m}$  ja  $\sigma_g$  on 2, on 95 prosenttia aktiivisuudesta halkaisijaltaan  $0,25 \dots 4 \mu\text{m}$  hiukkasissa.

### 3.3 | Hiukkasten liike ilmassa

Aerosolihukkaset kulkeutuvat kaasumaisten aineiden tavoin ilmvirtausten mukana, mutta niiden liikkeeseen vaikuttaa myös muita tekijöitä. Ne vaikuttavat muun muassa siihen, kuinka nopeasti ulkoilman hiukkaset deponoituvat maahan tai kuinka suuri osa hengitysilman hiukkasista deponoituu hengityselimistöön. Tässäkin suhteessa suuret hiukkaset eroavat

pienhiukkasista. Maan vetovoima sekä hiukkasten hitaus eli inertia vaikuttavat merkittävästi hyvin suurten hiukkasten liikkeeseen. Toisaalta Brownin liike on sitä voimakkaampaa, mitä pienempi hiukkanen on. Kokoalueen 0,1–1 µm hiukkasat deponoituvat yleensä heikoimmin, koska ne ovat niin suuria, etteivät koe merkittävää Brownin liikettä. Toisaalta ne ovat liian pieniä deponoituakseen impaktion tai maan vetovoiman seurauksena.

## Brownin liike ja diffuusio

Aerosolihiukkasat ovat seisovassakin ilmassa jatkuvassa liikkeessä, koska kaasumolekyylit törmäävät niihin. Törmäyksiä tapahtuu kaikista suunnista, joten pienhiukkasen liikeradassa on jatkuvia epäsäännöllisiä suunnan muutoksia. Ajan  $t$  kuluessa Brownin liikkeen aiheuttama hiukkasen keskineliösiirtymä  $x_{rms}$  on

$$x_{rms} = \sqrt{2Dt}. \quad (3.15)$$

Diffuusiokerroin  $D$  (m<sup>2</sup>/s) on sitä suurempi, mitä pienempi hiukkanen on

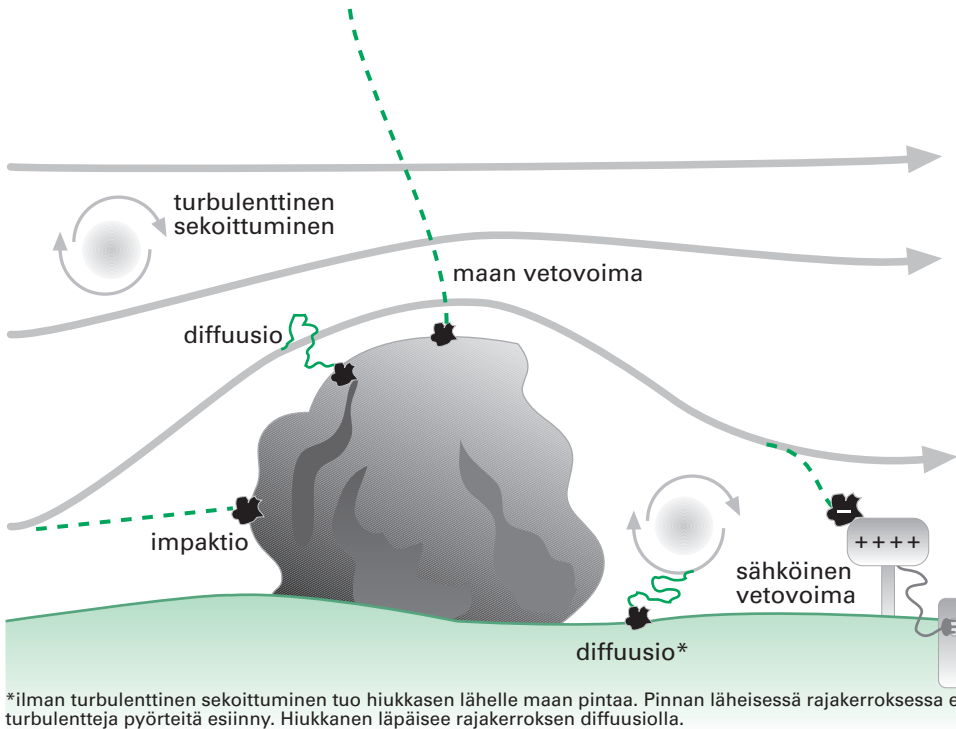
$$D = \frac{kTC_c}{3\pi\eta d}, \quad (3.16)$$

$$C_c = 1 + \frac{\lambda}{d} \left( 2,34 + 1,05 \cdot \exp\left(-0,39 \frac{d}{\lambda}\right) \right),$$

missä  $C_c$  on niin sanottu liukukorjaustekijä ja  $\lambda$  on kaasumolekyylien keskimääräinen vapaa matka (normaalipaineisessa ilmassa 20 °C:ssä  $\lambda = 0,066$  µm). Diffuusio kertoimen arvo 20 °C lämpötilassa on  $5 \cdot 10^{-8}$  m<sup>2</sup>/s, kun  $d = 0,01$  µm ja  $3 \cdot 10^{-11}$  m<sup>2</sup>/s, kun  $d = 1$  µm. Yhtälö 3.15 pätee myös kaasumolekyyleille, joille diffuusio kertoimen arvo on tyypillisesti luokkaa  $10^{-5}$  m<sup>2</sup>/s. Kiinnittymättömille radonin tyttärille  $D = 0,25 - 8 \cdot 10^{-6}$  m<sup>2</sup>/s.

Alussa samassa pisteessä olleet hiukkasat tai kaasumolekyylit hajaantuvat siten, että niiden etäisyydet lähtöpisteestä hetkellä  $t$  muodostavat normaalijakauman keskiarvonaan 0 ja keskihajontanaan  $x_{rms}$ . Jos hiukkasten pitoisuus ei ole kaikkialla yhtä suuri, pyrkii hiukkasten hajaantuminen tasoittamaan pitoisuuseroja. Terminen (molekulaarinen) diffuusio on Brownin liikkeestä aiheutuva hiukkasten tai kaasujen netto-siirtymä kohti aluetta, jossa niiden pitoisuus on pienempi. Brownin liike aiheuttaa myös lähellä pintaa olevien hiukkasten depositiota pintoihin (kuva 3.3).





**KUVA 3.3 Mekanismeja, joilla hiukkaset törmäävät pintoihin.**

Terminen diffuusio vaikuttaa hiukkasen liikkeeseen merkittävästi, kun tarkasteltava kulkeutumisetäisyys on pieni – esimerkiksi kun on kyse hengitettävien pienhiukkasten depositiosta ihmisen keuhkoissa. Ulkoilmassa tuulen mukana kulkeutuvien hiukkasten terminen diffuusio on sitä vastoin hyvin vähäistä verrattuna turbulentiin diffuusion eli ilman pyöriteilyn aiheuttamaan leviämiseen ja sekoittumiseen.

### Maan vetovoima ja impaktio

Tyynen ilmaan leijumaan asetettu hiukkanen putoaa alaspäin maan vetovoiman vaikutuksesta. Lepotilasta lähtevä hiukkanen kiihtyy sekunnin murto-osassa vapaaseen putoamisnopeuteen  $v_{TS}$ . Nopeudella  $v_{TS}$  putoavaan hiukkaseen kohdistuva ilmanvastus on yhtä suuri, mutta vastakkais-suuntainen kuin maan vetovoima. Hiukkasten vapaa putoamisnopeus on

$$v_{TS} = \frac{\rho_p \cdot d^2 \cdot g \cdot C_c}{18\eta}, \quad (3.17)$$

missä  $\rho_p$  on hiukkasen tiheys,  $g$  on gravitaatiovakio ( $9,81 \text{ m/s}^2$ ) ja  $\eta$  on kaasun dynaaminen viskositeetti (ilmalle  $20^\circ\text{C}$ :ssä  $\eta = 1,8 \cdot 10^{-5} \text{ Ns/m}^2$ ). Yhtälö 3.17 pätee muutamaa kymmentä mikrometriä pienemmille hiukkasille. Yli mikrometrin hiukkasille liukukorjauskerroin  $C_c \approx 1$ . Ulkoilman olosuhteissa kokoalueen  $1 \mu\text{m} < d < 80 \mu\text{m}$  hiukkasille pätee

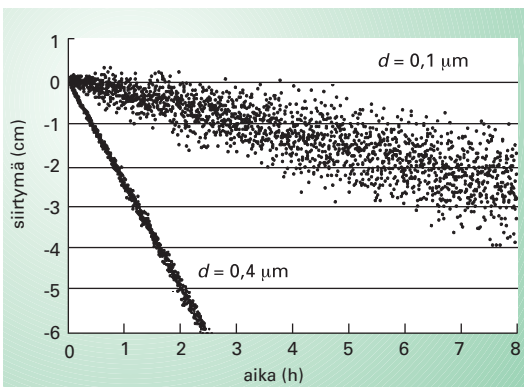
$$v_{TS} \approx 30\,000 \frac{\text{m}^2}{\text{s} \cdot \text{kg}} \cdot \rho_p \cdot d^2. \quad (3.18)$$

Hiukkasen aerodynaaminen halkaisija  $d_{ae}$  on määritelty muillekin kuin pyöreille hiukkasille. Se on sama kuin sellaisen pyöreän hiukkasen halkaisija, jolla on sama  $v_{TS}$  kuin tutkittavalla hiukkasella ja jonka tiheys on  $1 \text{ g/cm}^3$  (veden tiheys). Jos hiukkanen on pyöreä ja halkaisijaltaan yli  $1 \mu\text{m}$ , on sen aerodynaaminen halkaisija

$$d_{ae} = d \sqrt{\frac{\rho_p}{1 \text{ g/cm}^3}}. \quad (3.19)$$

Aerodynaamista halkaisijaa käytetään erityisesti silloin, kun tarkastellaan suurten hiukkasten liikerataa ilmassa tai kun koko on mitattu laitteella, joka perustuu hiukkasten aerodynaamisiin ominaisuuksiin.

Kuvassa 3.4 on verrattu maan vetovoiman ja Brownin liikkeen aiheuttamaa hiukkasten pystysuoraa liikettä seisovassa ilmassa. Halkaisijaltaan  $0,1 \mu\text{m}$  hiukkaset ovat ensimmäisten minuuttien ajan lähes yhtä suurella todennäköisyydellä alkuperäisen paikkansa ylä- tai alapuolella, alle millimetrin päässä alkuperäisestä paikastaan. Pitkällä aikavälillä maan veto-



**KUVA 3.4** Seisovassa ilmassa olevien aerosolihiukkasten pystysuora siirtymä ajan funktiona

Vain diffuusion ja maan vetovoiman vaikutus on otettu huomioon. Hiukkaset ovat pyöreitä ja niiden tiheys on  $1 \text{ g/cm}^3$ .

voiman vaikutus korostuu, koska sen aiheuttama siirtymä on suoraan verrannollinen aikaan, mutta diffuusion aiheuttama keskineliösiirtymä vain ajan neliöjuureen.

Kun ilmavirtauksen tiellä on este, tekee virtaus mutkan kiertääkseen esteen. Kaasun mukana kulkeutuvat suuret hiukkaset eivät täysin kykene seuraamaan mutkaista virtausta, vaan jatkavat suoraviivaisesti eteenpäin törmäten eli impaktoituen esteeseen (kuva 3.3). Hiukkasen todennäköisyys impaktoitua esteeseen on sitä suurempi, mitä suurempi on hiukkasen aerodynaaminen halkaisija ja mitä suurempi on virtausnopeus. Ulkoilmassa impaktio on merkittävää lähinnä muutamaa mikrometriä suuremmille hiukkasille.

### Sähköisen vetovoiman vaikutus liikkeeseen

Hiukkaset voivat varautua sähköisesti esimerkiksi radioaktiivisen hajoamisen aiheuttaman itsevarautumisen avulla. Sekä alfa- että beetahajoaminen jättävät aerosolihiukkaseen yleensä positiivisen varauksen; alfa-hajoaminen siksi, että hiukkanen menettää positiivisen alfahiukkasen lisäksi valenssielektroneja.

Ulkoilman aerosolihiukkaset varautuvat törmätessään ilman ioneihin. Toisaalta voimakkaasti varauksisten hiukkasten varaus pienenee ulkoilmassa, koska ne törmäävät enimmäkseen vastakkaismerkkisesti varautuneiden ionien kanssa. Törmäykset ionien kanssa johtavat lopulta niin sanottuun Boltzmannin tasapainotilaan, jossa positiivisesti varautuneiden hiukkasten keskimääräinen varaus on

$$\bar{q} \approx 2,37 \cdot e \sqrt{\frac{d}{1 \mu\text{m}}}, \text{ kun } d > 0,2 \mu\text{m}, \quad (3.20)$$

missä  $e$  on alkeisvaraus ( $1,6 \cdot 10^{-19}$  C). Boltzmannin tasapainovarausjakauma on symmetrinen eli hiukkasia, joilla on tietty positiivinen varaus  $q$  on yhtä paljon kuin hiukkasia, joilla on vastaava negatiivinen varaus  $-q$ .

Erittäin aktiivisilla ”kuumilla” hiukkasilla voi itsevarautumisen takia olla suurikin sähkövaraus. Toisaalta ionisoiva säteily kasvattaa ilman ionipitoisuutta, joten voimakkaassa säteilykentässä olevat hiukkaset neutraloituvat nopeasti. Kuumen hiukkasen varaus onkin suurempi, jos hiukkasen lähellä on vain vähän muita aktiivisia hiukkasia.

Sähköisen vetovoiman aiheuttama kulkeutumisnopeus  $v_{TE}$  on analoginen maan vetovoiman aiheuttaman vapaan putoamisnopeuden  $v_{TS}$  kanssa. Sähkökentässä nopeudella  $v_{TE}$  liikkuvaan hiukkaseen kohdistuva ilmanvastus on yhtä suuri ja vastakkaissuuntainen kuin sähköinen vetovoima. Nopeus  $v_{TE}$  on sitä suurempi mitä suurempi on sähkökentän voimakkuus  $E$  (yksikkö V/m), mitä suurempi on hiukkasen sähkövaraus ja mitä pienikokoisempi hiukkanen on

$$v_{TE} = \frac{qEC_e}{3\pi\eta d}. \quad (3.21)$$

Sähköisen vetovoiman vaikutusta hiukkasten liikkeeseen on yleensä vaikea arvioida, koska hiukkasen varausta ja sähkökentän voimakkuutta harvoin tunnetaan. Sähköisellä vetovoimalla on vaikutusta erityisesti 0,1–1  $\mu\text{m}$  hiukkasten käyttäytymiseen. Tätä pienempien ja suurempien hiukkasten liikkeeseen vaikuttavat muut tekijät – lähinnä Brownin liike, impaktio ja maan vetovoima – niin paljon, että sähköisen vetovoiman vaikutus on niiden rinnalla yleensä vähäinen.

### 3.4 Radioaktiivisten aineiden kulkeutuminen ilmassa

Radioaktiiviset aineet kulkeutuvat ilmakehässä tuulen mukana. Kulkeutumisen aikana ne sekoittuvat yhä suurempaan ilmatilavuuteen. Aineita poistuu ilmasta kuiva- ja märkälaskeman kautta. Kulkeutumisen aikana radioaktiivisten aineiden aktiivisuuspitoisuus ilmassa muuttuu myös radioaktiivisen hajoamisen myötä. Päästöpaikalta maan pinnan läheltä mitatun tuulen suunnan ja nopeuden perusteella ei voi luotettavasti ennustaa minne ja kuinka nopeasti aineet kulkeutuvat, koska tuulen suunta ja nopeus riippuvat paikasta ja ovat lisäksi erilaisia eri korkeuksilla.

Ilmakehän alin kerros, keskimäärin noin 10 kilometrin korkuinen troposfääri voidaan jakaa vapaaseen ilmakehään ja rajakerrokseen. Vapaassa ilmakehässä, olosuhteista riippuen yli 100–2 000 metrin korkeudessa, vallitsee geostroofinen tuuli, jonka suunta määräytyy ilmanpaineen eroista sekä maan pyörimisliikkeen aiheuttamasta coriolisvoimasta. Tuulet suuntautuisivat korkeapaineen alueelta suoraan kohti matalapainetta, jos coriolisvoimaa ei olisi. Se kuitenkin kääntää tuulen suuntaa pohjoisella pallonpuoliskolla oikealle ja eteläisellä pallonpuoliskolla vasemmalle. Paine-eron ja coriolisvoiman vaikutuksesta tuuli kiertää pohjoisella pallonpuoliskolla korkeapaineen alueita myötäpäivään ja matalapaineen alueita vastapäivään.

Vapaan ilmakehän alla olevassa rajakerroksessa maanpinnan ja ilman väli-  
nen kitka hidastaa tuulen nopeutta ja kääntää sen suuntaa. Yleensä tuulen  
suunta kääntyy pohjoisella pallonpuoliskolla myötäpäivään korkeuden kas-  
vaessa. Tuulen suunnan korkeusvaihtelun vuoksi samaan aikaan mutta eri  
korkeudelta vapautuneet aineet kulkeutuvat eri suuntiin. Lisäksi samalta kor-  
keudelta vapautuneet suuret hiukkaset – jotka putoavat kulkeutumisen aika-  
na merkittäväällä nopeudella – voivat päätyä eri suuntaan kuin samalta kor-  
keudelta samanaikaisesti vapautuneet pienhiukkaset ja kaasut (kuva 3.5).

Pintatuulen nopeus mitataan 10 m korkeudelta. Tuulen nopeus korkeu-  
den funktiona rajakerroksessa on likimääräisesti

$$U(z) = U(10 \text{ m}) \left( \frac{z}{10 \text{ m}} \right)^l, \quad z \leq 200 \text{ m} \quad (3.22)$$

missä potenssin  $l$  arvo riippuu ilman stabiiliudesta ja maanpinnan rosoi-  
suudesta (taulukko 3.2). Maan pinnan läheltä mitattu tuulen nopeus yliar-  
vioi päästön kulkeutumiseen kuluva-aikaa varsinkin stabiilissa tilan-  
teessa, koska tuulen nopeus korkealla on suurempi.

Ulkoilmassa on myös merkittävää pystysuuntaista liikettä. Syvenevän  
matalapaineen alueella ilma nousee ylöspäin ja vastaavasti korkeapai-  
neen keskuksesta laskeutuu alaspäin. Nousu- ja laskunopeus on tyypilli-  
sesti noin 1–5 cm/s. Tietyissä olosuhteissa saattaa esiintyä myös niin sa-  
nottuja termiikkejä, joissa lämmin ilmassa kohoaa ylös suurella no-  
peudella (muutama metri sekunnissa) jopa 1 500 metrin korkeuteen.



**KUVA 3.5 Tshernobylin onnettomuudesta vapautuneiden kaasumaisten aineiden ja erikokoisten hiukkasten laskennallisia kulkureittejä – trajektoreita – ilmassa**

Aineiden oletetaan vapautuneen ilmaan räjähdysketkellä ja lähtökorkeuden oletetaan olevan 1 500 m. Deposiitiomeka-  
nismeista on otettu mukaan vain maan  
vetovoiman vaikutus. Aerodynaamiselta  
halkaisijaltaan 15–30 μm hiukkaset  
deponoituvat maahan kuvaan merkityissä  
kohdissa; sen sijaan pienemmät hiukkaset  
kulkeutuvat kauemmas.

	Pasquill-Gifford stabiiliusluokka	Kaupunki	Maaseutu
Erittäin labiili	A	0,15	0,07
Labiili	B	0,15	0,07
Lievästi labiili	C	0,20	0,10
Neutraali	D	0,25	0,15
Lievästi stabiili	E	0,40	0,35
Stabiili	F	0,60	0,55

**TAULUKKO 3.2** Tekijän *I* (yhtälö 3.22) arvo laskettaessa tuulen nopeutta korkeuden funktiona (Hanna et al. 1982)

## Ilmakehän stabiilius määrää päästöpilven leviämisen

Tuulen keskimääräisen suunnan vaihtelu yhdessä ilman pyörteilyn, turbulenssin, kanssa aiheuttaa päästöpilven dispersiota eli leviämistä. Pistemäisestä lähteestä vapautunut päästöpilvi leviää kulkeutumisen aikana vaakatasossa (sekä kulkeutumissuunnassa että tätä vasten kohtisuorassa suunnassa) ja pystytasossa.

Leviämisen voimakkuuteen vaikuttaa ratkaisevasti ilmakehän stabiilius, joka puolestaan riippuu voimakkaasti ilmakehän pystysuuntaisesta lämpötilajakaumasta. Ilman tiheys pienenee noustaessa maanpinnalta ylöspäin, joten ylöspäin nouseva ilmamassa laajenee. Jos laajeneminen tapahtuu adiabaattisesti – eli siten, ettei kyseisen ilmamassan ja ympäristön välillä siirry lämpöä – laskee ylöspäin nousevan ilman lämpötila. Adiabaattisesti laajenevan kuivan ilman lämpötila laskee 1 °C jokaista noustua sataa metriä kohti, kostean ilman lämpötila laskee vähemmän.

Säätilanne on termisesti epävakaa eli labiili, jos ulkoilman lämpötila pienenee korkeuden kasvaessa nopeammin kuin adiabaattinen laajeneminen edellyttää. Tällöin ylöspäin nouseva ilma on ympäröivää ilmaa lämpimämpää ja samalla tiheydeltään pienempää, mikä kiihdyttää ilman kohoamista. Vastaavasti alaspäin kulkeutuva ilma on ympäröivää ilmaa kylmempää, mikä pyrkii entisestään kiihdyttämään sen laskeutumista. Ilma sekoittuu labiilissa säätilanteessa voimakkaasti. Erityisesti labiilissa tilanteessa saattaa esiintyä edellä mainittuja termiikkejä.

Stabiilissa eli vakaassa säätilanteessa lämpötila pienenee korkeuden kasvaessa hitaammin kuin adiabaattinen laajeneminen edellyttäisi. Nouseva ilma on ympäröivää ilmaa kylmempää, mikä jarruttaa kohoamista. Stabiilissa säätilanteessa ilman sekoittuminen onkin vähäistä. Ääritapaus on inversioerros, jossa ilman lämpötila nousee korkeuden myötä.

Labiilin ja stabiilin säättilanteen välimuoto on neutraali, jolloin ilman lämpötila noudattaa adiabaattisen tapauksen korkeusriippuvuutta, ja pystysuunnassa liikkuvat ilmamassat pysyvät koko ajan samassa lämpötilassa kuin ympäröivät ilmamassat. Ilman stabiiliuden luokitteluksi on useita tapoja. Yleisesti käytetään Pasquill-luokittelua (taulukko 3.3).

Luokitus talvella (maanpinta lumen peitossa)									
Tuulen nopeus 10 m korkeudella (m/s)	Päivä	Päivä 35° < α < 60°		Päivä 20° < α < 35°		Päivä 5° < α < 20°		Yö α < 5°	
	N > 7	N ≤ 4	N > 4	N ≤ 4	N > 4	N ≤ 4	N > 4	N ≤ 4	N > 4
<2	D	C	C	F	E	F	E	F	F
2...3	D	C	D	E	D	F	D	F	E
3...5	D	D	D	D	D	E	D	E	D
5...6	D	D	D	D	D	D	D	D	D
>6	D	D	D	D	D	D	D	D	D

Luokitus lumettomana aikana									
Tuulen nopeus 10 m korkeudella (m/s)	Päivä	Päivä 35° < α < 60°		Päivä 20° < α < 35°		Päivä 5° < α < 20°		Yö α < 5°	
	N > 7	N ≤ 4	N > 4	N ≤ 4	N > 4	N ≤ 4	N > 4	N ≤ 4	N > 4
<2	D	A	B	B	C	C	D	F	F
2...3	D	B	C	C	D	D	D	F	E
3...5	D	B	C	C	D	D	D	E	D
5...6	D	C	D	D	D	D	D	D	D
>6	D	D	D	D	D	D	D	D	D

**TAULUKKO 3.3 Suomessa käytettävä Pasquill-leviämislukitus (Nordlund et al. 1976)**

Luokkien A–F lisäksi käytetään joskus luokkaa G (erittäin stabiili). Taulukossa α on auringon korkeuskulma ja N on pilvisyys ilmoitettuna 1/8-osina.

Alailmakehän olosuhteet vaikuttavat siihen, kuinka korkealle päästöpilvi – joko sisältämänsä lämpömäärän, kosteuden tai alkuimpulssin takia – nousee ja siihen, miten päästökohdan lähellä sijaitsevat rakenteet vaikuttavat pilven alkukäyttäytymiseen ja -leviämiseen.

Pistemäisestä lähteestä vapautuneiden radioaktiivisten aineiden aktiivisuuspitoisuus  $c_A(x, y, z)$  pilven ohikulkeutumisen aikana maanpinnalla ( $z = 0$ ) suoraan pilven keskilinjan alapuolella ( $y = 0$ ) on

$$c_A(x, 0, 0) = \chi(x, 0, 0) \cdot Q, \quad (3.23)$$

missä  $\chi$  on laimennuskerroin ( $\text{s/m}^3$ ) etäisyydellä  $x$  päästölähteestä ja  $Q$  on päästönopeus ( $\text{Bq/s}$ ). Yleisessä tapauksessa laimennuskerroin riippuu paitsi paikasta myös ajasta. Aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraali on

$$\int c_A(x,0,0) dt = \chi(x,0,0) \cdot \int Q dt, \quad (3.24)$$

missä yhtälön oikealla puolella oleva integraali on kokonaispäästö (Bq). Yhtälöissä 3.23 ja 3.24 ei ole otettu huomioon radioaktiivista hajoamista kulkeutumisen aikana eikä laskeuman aiheuttamaa poistumaa pilvestä.

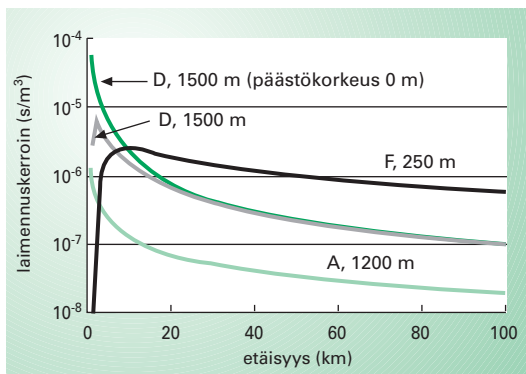
Pilvi on sitä leveämpi mitä labiilimpi on säätilanne ja mitä suurempi on etäisyys päästölähteestä (taulukko 3.4 ja kuva 3.6). Laimennuskertoimen arvo on sitä pienempi mitä suurempi on olosaika eli sen ajanjakson pituus, jonka aikaista keskiarvoa tarkastellaan. Labiileissa oloissa pilvi leviää maanpinnan tasolle nopeammin kuin stabiilissa tilanteessa.

Etäisyys (km)	Stabiiliusluokka ja sekoituskorkeus					
	A, 1 200 m	B, 1 500 m	C, 1 800 m	D, 1 500 m	E, 500 m	F, 250 m
1	$1,2 \cdot 10^{-6}$	$5,8 \cdot 10^{-6}$	$9,4 \cdot 10^{-6}$	$2,7 \cdot 10^{-6}$	$3,4 \cdot 10^{-7}$	$1,6 \cdot 10^{-11}$
2	$4,7 \cdot 10^{-7}$	$1,3 \cdot 10^{-6}$	$4,6 \cdot 10^{-6}$	$6,0 \cdot 10^{-6}$	$3,6 \cdot 10^{-6}$	$8,2 \cdot 10^{-8}$
5	$2,1 \cdot 10^{-7}$	$2,2 \cdot 10^{-7}$	$1,2 \cdot 10^{-6}$	$3,4 \cdot 10^{-6}$	$4,3 \cdot 10^{-6}$	$1,8 \cdot 10^{-6}$
10	$1,2 \cdot 10^{-7}$	$1,2 \cdot 10^{-7}$	$3,8 \cdot 10^{-7}$	$1,5 \cdot 10^{-6}$	$2,5 \cdot 10^{-6}$	$2,4 \cdot 10^{-6}$
20	$6,6 \cdot 10^{-8}$	$6,7 \cdot 10^{-8}$	$1,3 \cdot 10^{-7}$	$6,3 \cdot 10^{-7}$	$1,3 \cdot 10^{-6}$	$1,9 \cdot 10^{-6}$
50	$3,1 \cdot 10^{-8}$	$3,1 \cdot 10^{-8}$	$3,6 \cdot 10^{-8}$	$2,0 \cdot 10^{-7}$	$4,8 \cdot 10^{-7}$	$9,4 \cdot 10^{-7}$
100	$1,7 \cdot 10^{-8}$	$1,7 \cdot 10^{-8}$	$1,9 \cdot 10^{-8}$	$8,1 \cdot 10^{-8}$	$2,3 \cdot 10^{-7}$	$5,2 \cdot 10^{-7}$

**TAULUKKO 3.4** Laimennuskertoimen arvoja ( $s/m^3$ ), kun päästökorkeus on 100 m, tuulen nopeus 1 m/s ja olosaika 1 h.

Laimennuskertoimen arvot muilla tuulen nopeuksilla  $u$  saadaan kertomalla taulukossa annettu arvo tekijällä  $u_{ref}/u$ , missä  $u_{ref} = 1$  m/s. Kahdeksan minuutin olosajalla laimennuskertoimen arvo on puolitoistakertainen, ja viiden tunnin olosajalla kaksi kolmasosaa taulukossa annetusta arvosta.

Laimennuskertoimen arvo on kääntäen verrannollinen tuulen nopeuteen, koska vapautuessaan ulkoilmaan aineet sekoittuvat sitä suurempaan ilmatilavuuteen, mitä suurempi on tuulen nopeus.



**KUVA 3.6** Laimennuskertoimen  $\chi$ , kun tuulen nopeus on 1 m/s ja päästökorkeus 100 m (ellei toisin mainittu).

Stabiiliusluokka ja sekoituskerroksen korkeus on mainittu kuvassa.



Usein oletetaan, että pystysuunnassa pilven leviämistä rajoittaa niin sanottu sekoituskorkeus, jonka yli aineita ei kulkeudu. Kaukana lähteestä aineet ovat pystysuunnassa likimain tasaisesti jakautuneet sekoituskorkeuden ja maanpinnan väliselle alueelle. Tällöin laimennuskertoimen arvo on sitä suurempi, mitä pienempi on sekoituskorkeus. Jos aineet nousevat sekoituskerroksen yläpuolelle – näin voi käydä esimerkiksi silloin, kun aerosoli on riittävän lämmintä – ne voivat kulkeutua pitkiäkin matkoja ennen sekoittumistaan pintailmaan.

## Kulkeutumisen ja leviämisen mallintaminen

Päästön kulkeutumista kuvaavia tietokonemalleja voidaan hyödyntää tekemällä todennäköisyyspohjaisia riskianalyyskejä. Kysymykseen ”millä todennäköisyydellä tietyn suuruinen päästö paikassa A aiheuttaisi suojaustoimenpiteiden tarvetta paikassa B” voidaan vastata simuloimalla päästön kulkeutumista eri sääolosuhteissa ottaen huomioon olosuhteiden esiintymistiheys tarkasteltavalla alueella. Todennäköisyyteen vaikuttaa muun muassa tuulen suunnan epätasainen jakautuminen; maapallon pyörimisliikkeen suunnan takia lännestä tuulee useammin kuin idästä.

Malleja voidaan käyttää myös tietyn päästön kulkeutumisen laskemiseen. Jälkeenpäin voidaan säähavaintotietojen avulla laskea minne päästö kulkeutui (kuva 3.5). Päästön vasta uhatessa voidaan sääennusteiden avulla arvioida minne mahdollinen päästö tulisi kulkeutumaan. Kulkeutuminen jo 100 km etäisyyteen kestää vähintään useita tunteja. Kulkeutumisen aikana tuulen suunta saattaa muuttua huomattavasti, joten sääennusteiden tarkkuus on vaara-alueen tunnistamisessa keskeistä.

Yksinkertaisimmissa kulkeutumismalleissa käytetään vain yhdessä pisteessä – usein lähtöpisteessä ja lähtöhetkellä – vallitsevia säätietoja. Päästön oletetaan liikkuvan suoraviivaisesti annetulla nopeudella tiettyyn suuntaan. Korkealta tapahtuvan päästön oletetaan yleensä etenevän päästökorkeudella vallitsevalla tuulen nopeudella, mutta matalalta tapahtuvan päästön todellista kulkeutumisopeutta tämä oletus aliarvioi.

Leviäminen vaakatasossa oletetaan usein Gaussin jakauman (normaalijakauman) mukaiseksi, jolloin pitoisuus maanpinnalla on

$$c_A(x,y,0) = \chi(x,0,0) \cdot Q \cdot \exp(-0.5 \cdot (y/\sigma_y)^2), \quad (3.25)$$

missä  $y$  on kohtisuora etäisyys pilven keskilinjasta.

Päästön leveyttä  $y$ -suunnassa kuvaa dispersioparametri  $\sigma_y$ . Pisteessä  $(x, \sigma_y)$  on pitoisuus 60 prosenttia pisteessä  $(x, 0)$  vallitsevasta pitoisuudesta. Päästön leviämistä pystytasossa kuvaa dispersioparametri  $\sigma_z$ , joka yhdessä  $\sigma_y$ :n kanssa vaikuttaa yhtälössä (3.25) olevan laimennuskertoimen arvoon. Pystytasossa päästön muoto ei kaukana lähdepisteestä noudata Gaussin jakaamaa, koska leviämistä rajoittaa alhaalla maan pinta. Usein oletetaan lisäksi, että ylhäällä sitä rajoittaa sekoituskerroksen yläraja eli sekoituskorkeus. Maan pinnan ja sekoituskorkeuden vaikutus pystysuuntaiseen pitoisuusjakaumaan voidaan ottaa huomioon siten, että näillä rajapinnoilla oletetaan tapahtuvaksi pilven ”heijastuminen” ja lisätään tätä kuvaavat termit yhtälöön (3.25).

Dispersioparametrit  $\sigma_y$  ja  $\sigma_z$  riippuvat ilman stabiiliudesta ja ovat sitä suurempia, mitä suurempi on etäisyys päästölähteestä (taulukko 3.5). Mitä suurempi on otosaika, sitä suurempi on  $\sigma_y$ :n arvo. Parametrien  $\sigma_z$  arvo taas riippuu alla olevan maanpinnan laadusta ja karkeutta kuvaavasta rosaisuusparametrista – kaupunkialueella parametrien arvo on suurempi ja sekoittuminen siten voimakkaampaa kuin merellä. Pystysuuntaiseen leviämiseen ja sitä kautta  $\sigma_z$ -arvoon vaikuttavat myös pinnan lämpöominaisuudet. Esimerkiksi kaupungeissa ylöspäin suuntautuva lämpövuoto on suurempi kuin maaseudulla ja vastaavasti pystysuuntaisen sekoittuminen on tehokkaampaa.

Etäisyys (km)	Stabiiliusluokka					
	A	B	C	D	E	F
1	380	280	200	130	100	69
10	2 800	2 200	1 500	1 000	760	530
50	10 200	8 200	6 000	3 800	2 900	2 000
100	17 000	14 000	11 000	6 600	5 100	3 300

**TAULUKKO 3.5** Dispersioparametrien  $\sigma_y$  (m) riippuvuus ilman stabiiliudesta ja etäisyydestä  $x$  päästölähteestä, kun otosaika on 1 tunti (Hanna et al. 1982).

Kahdeksan minuutin otosajalla  $\sigma_y$ :n arvo on kaksi kolmasosaa, ja viiden tunnin otosajalla puolitoistakertainen taulukossa annettuun arvoon verrattuna.

Edellä esitellyn gaussisen leviämismallin teoriassa oletetaan, että tarkastelujakson aikana turbulenssin voimakkuus ei riipu paikasta eikä ajasta. Tämä oletamus ei useinkaan pidä paikkaansa. Lisäksi mallin dispersioparametrit pääsääntöisesti perustuvat mittauksiin, jotka on tehty enintään noin 10 kilometrin etäisyydellä päästöpiisteestä; tämän vuoksi kirjallisuudessa kehoitetaankin suhtautumaan kriittisesti mallin käyttämiseen kovin kaukana päästölähteestä. Näistä rajoituksista huolimatta gaussista le-

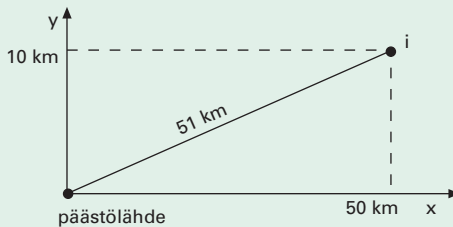
viämismallia käytetään suuruusluokka-arvioissa nykyäänkin melko paljon aina 100–200 kilometrin etäisyyteen asti.

ESIMERKKI 3.3

Maaseudulla olevasta pistemäisestä lähteestä vapautuu viiden tunnin aikana yhteensä  $10^{10}$  Bq  $^{137}\text{Cs}$ :ää. Cesiumia sisältävät hiukkaset kohoavat aluksi 100 m korkeuteen ja kulkeutuvat sitten x-akselin suuntaan (katso kuva). Arvioi aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraali pisteessä i, kun

- tuulen nopeus 10 m korkeudella on 7 m/s ja sekoituskorkeus 1500 m
- tuulen nopeus 10 m korkeudella on 1,5 m/s, päästö tapahtuu yöllä ja sekoituskorkeus on 250 m.

Piste i on 51 km etäisyydellä lähteestä ja 10 km sivussa päästön keskilinjasta. Oleta laskeuman aiheuttama poistuma pilvestä merkityksettömäksi.



Kyseessä on pitkäikäinen nuklidi, joten radioaktiivinen hajoaminen kulkeutumisen aikana ei ole merkittävää. Piste i koordinaatit ovat:  
 $x = ((51 \text{ km})^2 - (10 \text{ km})^2)^{0,5} = 50 \text{ km}$ ,  $y = 10 \text{ km}$ .

Taulukon 3.3 mukaan stabiiliusluokka on a) D ja b) F. Tuulen nopeus 100 m korkeudella voidaan arvioida yhtälöstä 3.22 (eksponentin arvot taulukosta 3.2)

$$a) \quad U(100 \text{ m}) = 7 \text{ m/s} \cdot \left( \frac{100 \text{ m}}{10 \text{ m}} \right)^{0,15} = 9,89 \text{ m/s}$$

$$b) \quad U(100 \text{ m}) = 1,5 \text{ m/s} \cdot \left( \frac{100 \text{ m}}{10 \text{ m}} \right)^{0,55} = 5,32 \text{ m/s}$$

Laimennuskertoimet 50 km etäisyydellä viiden tunnin otosajalla saadaan taulukosta 3.4,

$$a) \quad \chi = 2,0 \cdot 10^{-7} \text{ s/m}^3 \cdot \frac{1 \text{ m/s}}{9,89 \text{ m/s}} \cdot \frac{2}{3} = 1,35 \cdot 10^{-8} \text{ s/m}^3$$

$$b) \quad \chi = 9,4 \cdot 10^{-7} \text{ s/m}^3 \cdot \frac{1 \text{ m/s}}{5,32 \text{ m/s}} \cdot \frac{2}{3} = 1,18 \cdot 10^{-7} \text{ s/m}^3$$

Aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraali pisteessä (50 km, 0) on (yhtälö 3.24)

$$a) \quad \int c_A(50 \text{ km}, 0) dt = 1,35 \cdot 10^{-8} \text{ s/m}^3 \cdot 10^{10} \text{ Bq} = 135 \text{ Bq/s/m}^3$$

$$b) \quad \int c_A(50 \text{ km}, 0) dt = 1,18 \cdot 10^{-7} \text{ s/m}^3 \cdot 10^{10} \text{ Bq} = 1\,180 \text{ Bq/s/m}^3$$

Dispersioparametrin  $\sigma_y$  arvot viiden tunnin otosajalla saadaan taulukosta 3.5,

$$a) \quad \sigma_y = 1,5 \cdot 3\,800 \text{ m} = 5,7 \text{ km}$$

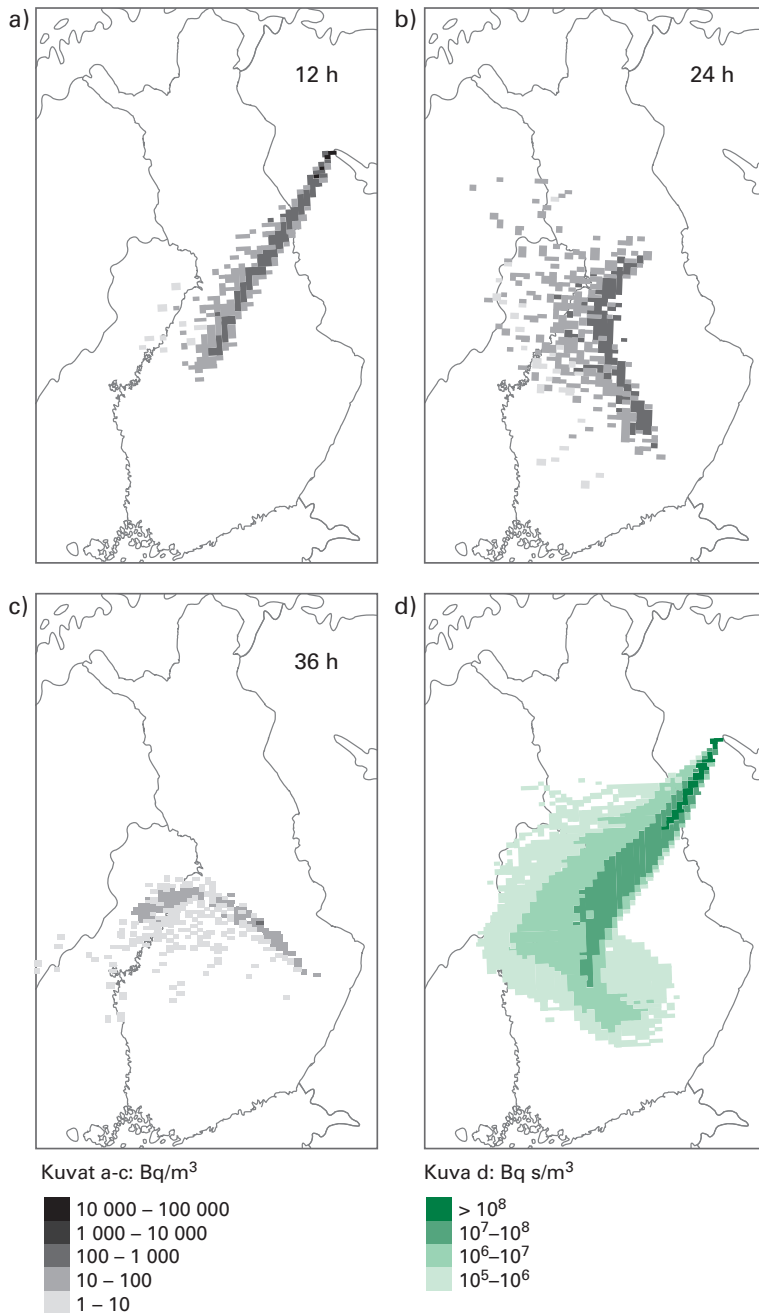
$$b) \quad \sigma_y = 1,5 \cdot 2\,000 \text{ m} = 3,0 \text{ km}$$

Aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraali pisteessä i on (yhtälö 3.25)

$$a) \quad \int c_A(50 \text{ km}, 10 \text{ km}) dt = 135 \text{ Bq s/m}^3 \cdot \exp(-0,5 \cdot (10/5,7)^2) = 29 \text{ Bq s/m}^3.$$

$$b) \quad \int c_A(50 \text{ km}, 10 \text{ km}) dt = 1\,180 \text{ Bq s/m}^3 \cdot \exp(-0,5 \cdot (10/3)^2) = 4,6 \text{ Bq s/m}^3.$$

Kehittyneemmissä malleissa on mahdollista käyttää hyväksi laajan alueen säätietoja. Suomessa kehitetty SILAM-ohjelmisto toimii kehiksenä toteutettaessa erilaisia leviämisen- ja annoslaskentamalleja. SILAMiin on toteutettu Monte Carlo -tyyppinen malli, jossa seurataan suurta määrää vallitsevassa tuulikentässä kulkeutuvia yksittäisiä partikkeleita ja lisätään niiden liikkeeseen sekoitusoloista riippuvan turbulenssin satunnaisvaikutus (kuva 3.7). Partikkeli voi tässä olla aerosolihiukkanen tai pieni ilmassa. Myös laskeuman aiheuttama aineiden poistuminen ilmasta (luku 3.5) huomioidaan. Ennustetarkkuuteen vaikuttaa muun muassa käytetyn säemallin hilakoko. Partikkelimallia voidaan soveltaa sekä lähi- että kaukokulkeutumiseen. Säätä ja ilmakehän ilmiöitä mallintavat tietokoneohjelmat ovat laskennallisesti raskaita ja kehittyneimpiä ohjelmia käytettäessä tarvitaankin supertietokonetta.



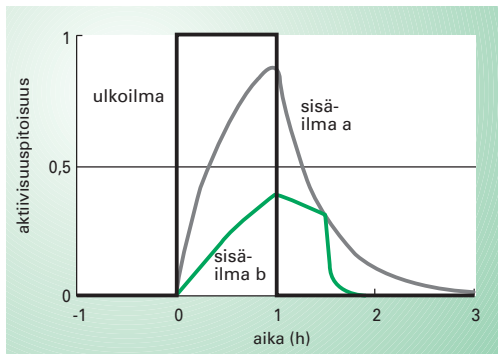
**KUVA 3.7** Ilmatieteen laitoksen ja VTT:n SILAM-ohjelmalla laskema <sup>131</sup>I:n aktiivisuuspitoisuus 12–36 tuntia päästön alkamisen jälkeen sekä <sup>131</sup>I:n aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraali kuvitteellisessa Kuolan ydinvoimalan onnettomuudessa.

Päästön suuruus on 10<sup>17</sup> Bq, kesto 12 h ja vapautumiskorkeus 100 m. Vastaavia laskelmia on tehty myös kotimaisille ja muille lähialueen ydinvoimaloille.

## Radioaktiivisten aineiden kulkeutuminen sisätiloihin

Ulkoilman hiukkaset ja kaasut kulkeutuvat ilmanvaihdon myötä sisätiloihin. Asunnon ilmanvaihtuvuus määrää sisäilman aktiivisuuspitoisuuden kasvun (pitoisuus ulkona suurempi kuin sisällä) tai pienenemisen (pitoisuus ulkona pienempi kuin sisällä). Ulkoilman puhdistuttua keinoitekoisista radioaktiivisista aineista myös sisäilma alkaa vähitellen puhdistua (kuva 3.8). Aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraali on sisätiloissa sama kuin ulkoilmassa, jos a) radioaktiivisia aineita ei jää tuloilman suodattimeen, b) sisälle päästyään aineita ei deponoidu lattiaan tai seiniin, c) ilmanvaihtuvuus on vakio niin kauan kuin radioaktiivisia aineita on sisäilmassa ja d) radioaktiiviset aineet ovat riittävän pitkäikäisiä (lyhytikäisten aineiden tapauksessa aikaintegraali sisätiloissa on pienempi kuin ulkona).

Jalokaasujen ja metyylijodidin tapauksessa ehdot a) ja b) toteutuvat, joten niiden osalta sisätiloihin suojautumisen ei ole apua – paitsi jos ilmanvaihtuvuutta muutetaan (taulukko 3.6). Alkuainemuodossa oleva jodi ( $I_2$ ) ei kaasumaisena jää tuloilman suodatukseen käytettäviin, vain hiukkasia poistaviin suodattimiin.  $I_2$  kuitenkin deponoituu pintoihin huomattavasti nopeammin kuin metyylijodidi (katso luku 3.5), mikä pienentää aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraalia erityisesti asuinrakennuksissa.



**KUVA 3.8** Aktiivisuuspitoisuus sisäilmassa, kun ulkoilmassa on radioaktiivisia aineita yhden tunnin ajan.

Tapauksessa a) ei ole tehty suojaustoimenpiteitä. Tapauksessa b) ilmastointi on pysäytetty ja rakennus tiivistetty ennen ulkoilman saastumista sekä sisätilat tuuletettu puoli tuntia ulkoilman puhdistumisen jälkeen. Suojautuminen olisi ollut vieläkin tehokkaampaa, jos tuuletus olisi tehty heti ulkoilman puhdistuttua.

Ajoneuvojen ja asuinrakennusten ilmansuodattimet poistavat tehokkaasti vain suuria hiukkasia, mutta pienhiukkasia vastaan niistä ei ole juuri-kaan apua. Toimistorakennuksissa sekä kaupoissa, kirjastoissa ja muissa vastaavissa julkisissa rakennuksissa käytettävät tehokkaammat tuloilman suodattimet sitä vastoin suodattavat pienhiukkasistakin merkittävän osan. Hiukkasten depositio pienentää aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraalia asunnoissa merkittävästi.

Radioaktiivisten aineiden kulkeutumista sisälle voidaan torjua rajoittamalla ulkoilman pääsyä sisätiloihin (kuva 3.8 ja taulukko 3.6). Paras suojaus saavutetaan, kun ilmastointi on pysäytetty ja ovet, ikkunat sekä ilmanvaihtoaukot on kunnollisesti tiivistetty. Sisälle suojaautuminen voi olla tarpeen muutamien tuntien ajaksi. Jos ilmanvaihtoa rajoitetaan pitkään, on huolehdittava, ettei sisäilman hiilidioksidipitoisuus nouse vaarallisen korkeaksi. Päästöpilven mentyä ohi sisätilat tulisi tuulettaa huolellisesti, jotta sisälle päässeet radioaktiiviset aineet kulkeutuisivat ulos. Suojaustoimenpiteiden tehokkuus riippuu ajoituksesta. Tuuletusajankohdan valintaa vaikeuttaa se, että ulkoilman tarkkaa puhdistamisajankohtaa ei tiedetä. Suurin epäonnistumisriski on siinä, että ilmanvaihto katkaistaan liian myöhään. Tällöin aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraali sisällä saattaa olla jopa suurempi kuin ulkona, jos myös tuulettaminen tehdään myöhässä.

	Jalokaasut ja metyylijodidi	I <sub>2</sub> ja muut reaktiiviset kaasut	Hiukkaset (0,1–2,µm)
a) Ei aktiivisia suojaustoimenpiteitä			
Ajoneuvot	1	≈1	0,9
Asuinrakennukset	1	0,3–0,5	0,6–0,8
Toimistot ja julkiset rakennukset (koneellinen ilmanvaihto)	1	0,8	0,4
Teollisuushallit, työpajat	1	0,9	0,9
b) Aktiiviset suojaustoimenpiteet*			
Ajoneuvot	0,8	0,3	0,6
Asuinrakennukset	0,8	0,3	0,6
Toimistot ja julkiset rakennukset (koneellinen ilmanvaihto)	0,5	0,2	0,2
Teollisuushallit, työpajat	≈1	0,7	0,9

\* Ulkoilman aktiivisuuspitoisuus kohonnut kuuden tunnin ajan, jolloin ilmastointi on pois päältä sekä ovet ja ikkunat suljettu. Tehokas tuuletus tunnin kuluttua siitä, kun ulkoilma on puhdistunut.

**TAULUKKO 3.6 Aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraali sisäilmassa, kun se on ulkoilmassa 1 (Brenk ja De Witt 1987).**

### 3.5 | Laskeuma

Aerosolihiukkaset siirtyvät ilmasta maahan kuiva- ja märkälaskeuman myötä. Kuivalaskeumassa hiukkaset kulkeutuvat ilmavirtauksen mukana pinnan välittömään läheisyyteen ja tarttuvat pintaan. Vesipisaroiden, sumun tai lumen mukana tapahtuva märkälaskeuma tuo hiukkasia maahan huomattavasti tehokkaammin kuin kuivalaskeuma. Sateella laskeuman suuruus voikin olla satakertainen ennen sateen alkua vallinneeseen kuivalaskeumaan verrattuna.

Sekä kuiva- että märkälaskeumassa voi olla ilmassa kaasuihin olleita aineita. Kaasujen vesiliukoisuus sekä niiden kemiallinen reaktiivisuus pinnan materiaalin kanssa ovat laskeuman suuruuden kannalta ratkaisevia tekijöitä.

#### Kuivalaskeuma

Kuivalaskeuman vuo  $F_k$  (Bq/(m<sup>2</sup>s)) radioaktiivisia aineita sisältävästä pilvestä on verrannollinen deponoituvan aineen aktiivisuuspitoisuuteen  $c_A$  pintailmassa,

$$F_k = v_d \cdot c_A, \quad (3.26)$$

missä  $v_d$  on depositionopeus. Laskeuman vuo ilmoitetaan maanpinnan pinta-alaa kohti eikä siinä olevan kasvillisuuden tai rakenteiden todellista pinta-alaa kohti. Tietyn päästön aiheuttaman laskeuman suuruus on aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraali kerrottuna depositionopeudella.

Hyvin suurten hiukkasten ( $d \gtrsim 10 \mu\text{m}$ ) depositio tapahtuu maan vetovoiman vaikutuksesta, joten niiden depositionopeus  $v_d$  on sama kuin putoamisnopeus  $v_{TS}$  (kuva 3.9). Suurten hiukkasten kulkeutumisetäisyys voidaan arvioida laskemalla se vaakasuora etäisyys  $x$ , jonka hiukkanen ehtii kulkeutua ennen kuin maan vetovoima tuo sen maahan

$$x = \frac{U \cdot h}{v_{TS}}, \quad (3.27)$$

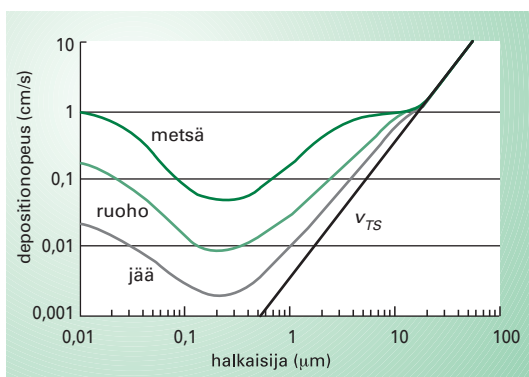
missä  $h$  on lähtökorkeus,  $U$  on keskimääräinen tuulen nopeus korkeusväliä  $0 \dots h$  ja  $v_{TS}$  on vapaa putoamisnopeus (yhtälö 3.17). Yhtälö 3.27 ei ota huomioon ilman pystysuuntaista liikettä, joten siitä laskettu etäisyys on vain karkea arvio. Esimerkiksi termiikkiin joutuvan hiukkasan kulkeutumisetäisyys voi olla paljon suurempi. Pienhiukkasten depositiossa ei



maan vetovoiman merkitys ole oleellinen, vaan hiukkasten on kulkeuduttava maan pinnan lähelle ilman turbulentin sekoittumisen myötä.

Pienten hiukkasten ja kaasujen kulkeutuminen pintaan, joka voi maan pinnan sijasta olla vaikkapa ruohon tai rakennuksen pinta, on kaksivaiheinen prosessi. Ensinnä hiukkaset ja kaasut kulkeutuvat pinnan läheisyyteen, tyypillisesti muutaman millimetrin päähän, ilman turbulenttien pyönteiden heittelemänä. Kulkeutuminen pinnan läheisyyteen on nopeinta, kun ilmakehä on epästabili ja pinta rosoinen. Kuivalaskeuma onkin yleensä voimakkainta päiväsaikaan, jolloin ilmakehä on epästabiliimpi kuin yöllä. Pinnan rosoisuus on hyvin suurta kaupunkialueilla ja metsissä (korkeuserot luokkaa 30 m), pienempää esimerkiksi pelloilla kasvukauden aikana ja hyvin vähäistä jäällä ( $10^{-3}$  m). Toisessa vaiheessa kaasut ja pienet hiukkaset kulkeutuvat viimeiset millimetrit pintaan diffuusion avulla; suuret hiukkaset impactoituvat pintaan. Hitaimmin pintaan kulkeutuvat  $0,1\text{--}1\ \mu\text{m}$  hiukkaset, joille diffuusio on hidasta, mutta jotka eivät myöskään impactoidu tehokkaasti (kuva 3.9).

Hiukkasten depositionopeus on sitä suurempi, mitä suurempi on tuulen nopeus ja pinnan epätasaisuus. Esimerkiksi lumelle depositionopeus on suuruusluokkaa  $0,01\ \text{cm/s}$  ja pellolle kasvukauden aikana  $0,1\ \text{cm/s}$ . Alle  $1\ \mu\text{m}$  hiukkasille kuivadepositionopeus on enintään  $1\ \text{cm/s}$ . Ilman turbulentit pyörteet eivät kuljeta pienhiukkasia pinnan läheisyyteen niin nopeasti, että tätä suurempia pienhiukkasten depositionopeuksia voisi esiintyä.



**KUVA 3.9** Kuivadepositionopeus erilaisille pinnoille hiukkaskoon funktiona (perustuu lähteeseen Sehmel 1980)

Depositionopeus on aina vähintään yhtä suuri kuin vapaa putoamisnopeus  $v_{TS}$ .

Pintaan osuessaan hiukkaset pidättyvät siihen. Sen sijaan kaasujen depositionopeutta rajoittava tekijä on yleensä nopeus, jolla pinnalle kulkeutuneet molekyylit adsorboituvat siihen. Tähän vaikuttavat muun muassa pinnan kosteus ja pH sekä kaasun reaktiivisuus ja liukoisuus. Kaasujen depositionopeudet ovat yleensä pienempiä kuin 1 cm/s, mutta mitaustuloksissa on suurta vaihtelua. Metyylijodidin depositionopeudelle on mitattu arvoja  $10^{-4}$ – $10^{-2}$  cm/s ja  $I_2$ :n depositionopeudelle 0,02–26 cm/s. Jalokaasun  $^{85}\text{Kr}$  depositionopeuden ruuhon on mitattu olevan korkeintaan luokkaa  $10^{-11}$  cm/s.

## Märkälaskema

Sadepilvessä olevat pienhiukkaset voivat kiinnittyä pilvessä oleviin lumikiteisiin Brownin liikkeen tai impaktion seurauksena. Pienhiukkanen voi myös toimia tiivistymisytimenä, jonka ympärille lumikide kasvaa. Lumikide alkaa pudota alaspäin kasvettuaan riittävän suureksi ja matkan varrella se sulaa vedeksi. Sadepilven alapuolella olevat suuret hiukkaset kiinnittyvät putoaviin pisaroihin kinemaattisella ja hyvin pienet hiukkaset termisellä koagulaatiolla. Kaasumaiset aineet puolestaan voivat liueta pisaroihin joko sadepilvessä tai sen alapuolella.

Märkälaskeman vuo  $F_m$  ( $\text{Bq}/(\text{m}^2\text{s})$ ) voidaan ilmaista sadeveden aktiivisuuspitoisuuden  $c_A$  (becquereliä kuutiometrissä vettä) ja sateen voimakkuuden  $I$  ( $\text{mm}/\text{h}$ ) avulla seuraavasti,

$$F_m = c_A \cdot I. \quad (3.28)$$

Se voidaan myös esittää pesukertoimen  $\Lambda$  ( $1/\text{s}$ ) avulla

$$F_m = \int_0^h c_A(z) \cdot \Lambda(z) dz, \quad (3.29)$$

missä  $h$  on pilven yläreunan korkeus ja  $c_A(z)$  on ilman radioaktiivisten aineiden aktiivisuuspitoisuus ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ ) ilmassa korkeudella  $z$ . Aktiivisuuspitoisuus korkeudella  $z$  ja hetkellä  $t$  on

$$c_A(z,t) = c_A(z,0) \cdot e^{-\Lambda(z)t}, \quad (3.30)$$

missä  $c_A(z,0)$  on pitoisuus korkeudella  $z$  sateen alkaessa. Pesukertoimen arvo tietylle aineelle on suurempi sadepilvessä kuin pilven alapuolella.

Arvo riippuu myös vesipisaroiden koosta sekä aktiivisten aineiden esiintymismuodosta (vesiliukoisina kaasumolekyyleinä, pienhiukkasina tai suurina hiukkasina).

Sadepilven alapuolella yli 20  $\mu\text{m}$  hiukkaset jäävät lähes varmasti jo ensimmäiseen kohdalle osuvaan vesipisaraan. Tällaisille hiukkasille pesukertoimen arvo on  $L = 1,5 I/d_v$ , missä  $d_v$  on vesipisaran halkaisija (mm) ja  $I$  on sateen voimakkuus (mm/h). Tyypillinen sadepisaran koko lähellä maan pintaa on 0,5–5 mm ja tihkusateella 0,1 mm. Pesukerroin pilven alapuolella on pienin 0,1–1  $\mu\text{m}$  hiukkasille, joille se on 100–1 000 kertaa pienempi kuin yli 20  $\mu\text{m}$  hiukkasille. Alle 0,1  $\mu\text{m}$  hiukkaset ja vesiliukoiset kaasumolekyylit törmäävät vesipisarioihin Brownin liikkeen seurauksena ja niiden pesukerroin on kahden edellä mainitun ääripään välissä.

Useiden Tshernobylin onnettomuudesta Suomeen kulkeutuneiden radionuklidien keskimääräinen pesukerroin oli

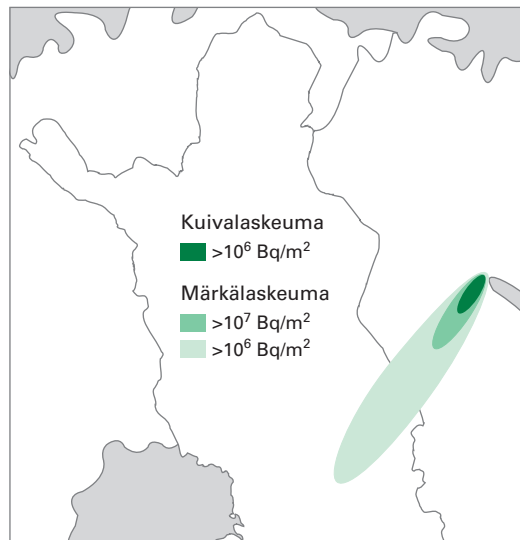
$$A = (8 \pm 2) \cdot 10^{-5} I^{0,65 \pm 0,02}, \quad (3.31)$$

missä  $A$  on yksikössä 1/s ja  $I$  yksikössä mm/h.

Märkälasseuman suuruuden laskeminen yhtälöstä (3.29) edellyttää, että aktiivisuuspitoisuus tunnetaan myös pintailmaa ylempänä. Jos näin ei ole, voidaan pintailman pitoisuuden ja laskeuman suhdetta arvioida olettamalla pitoisuuden olevan sääolosuhteiden perusteella arvioituun sekoituskorkeuteen asti sama kuin pintailmassa, ja nolla sen yläpuolella. Vielä yksinkertaisemmin arviointi voidaan suorittaa 1960-luvulla tehdyistä ydinkoelaskeuman havainnoista. Niiden mukaan yksi litra sadevettä sisältää karkeasti arvioiden saman verran kaukokulkeuman pienhiukkasissa esiintyviä aineita kuin 1 000  $\text{m}^3$  pintailmaa. Tämä vastaa sitä, että märkälasseuman suuruus määritetään kuivalasseumalle tarkoitetusta yhtälöstä (3.26) käyttäen depositionopeutta  $v_d = 0,3 \text{ m/s} \cdot I$ , missä sademäärä  $I$  on annettava yksikössä mm/h.

Joissakin tilanteissa pintailman aktiivisuusmittauksiin perustuvat arviot kuitenkin tuottavat hyvinkin virheellisiä tuloksia. Esimerkiksi Tshernobylin onnettomuuden alkuvaiheen päästöpilvi tuli Suomeen yli kilometrin korkeudella. Huhtikuun 29. päivänä 1986 mitattiin 1,5 km korkeudessa satoja kertoja suurempia aktiivisuuspitoisuuksia kuin pintailmassa. Kyseisenä iltana Helsingissä ollut tihkusade sisälsi  $^{137}\text{Cs}$ :ää arviolta saman verran kuin miljoona kuutiometriä pintailmaa.

Kuvassa 3.10 on verrattu kuivalaskeumaa ja märkälasseumaa kuvitteellisessa päästöttilanteessa. Päästön leviäminen on laskettu Gaussisen mallin mukaisesti siten, että laskeuman aiheuttama radioaktiivisten aineiden poistuminen ilmasta on otettu huomioon aktiivisuuspitoisuutta pienentävänä tekijänä. Tässä tapauksessa  $2,8 \cdot 10^7 \text{ Bq s/m}^3$  suuruinen aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraali (keskiarvo maanpinnan ja sekoituskorkeuden väliseltä alueelta) aiheuttaa  $10^6 \text{ Bq/m}^2$  suuruisen märkälasseuman. Aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraalin pintailmassa on oltava peräti  $10^9 \text{ Bq s/m}^3$ , jotta saataisiin  $10^6 \text{ Bq/m}^2$ :n suuruinen kuivalaskeuma. Laskeuman suuruus voi siis vaihdella huomattavasti kahden lähellä toisiaan olevan pisteen välillä, jos vain toisessa niistä satoi päästön ylikulkeutumisen aikana.



**KUVA 3.10.** Kuiva- ja märkälasseuman suuruus ( $\text{Bq/m}^2$ ) Gaussisen leviämismallin mukaan arvioituna. Päästön suuruus ja päästöpaikan sääolosuhteet muistuttavat kuvan 3.7 tapausta (päästö  $10^{17} \text{ Bq}$  12 tunnin aikana, sekoituskorkeus 450 m, tuulen nopeus 11 m/s ja stabiiliusluokka D).

Märkälasseuma on laskettu olettaen pesukertoimen arvoksi kaikkialla  $8 \cdot 10^{-5} \text{ 1/s}$ , joka vastaa sateen voimakkuutta 1 mm/h. Kuivalaskeumatapauksessa depositionopeudeksi on oletettu 0,1 cm/s.

Olkoon tietyn radioaktiivisen aineen aktiivisuuspitoisuus  $1 \text{ Bq/m}^3$  korkeudella  $0\text{--}1\,000 \text{ m}$ , ja ylempänä  $0$ . Sademäärä on  $0,5 \text{ mm/h}$  ja sadeepisaroiden halkaisija  $1 \text{ mm}$ . Arvioi märkälaskeuman suuruus olettaen, että

- aktiiviset aineet ovat yli  $20 \mu\text{m}$  hiukkasissa,
- $\Lambda = 8 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1} I^{0,65}$ ,
- $1 \text{ litra}$  sadevettä sisältää saman määrän aktiivisia aineita kuin  $1\,000 \text{ m}^3$  pintailmaa.

Laske kussakin tapauksessa kertyneen laskeuman suuruus, kun sade on kestänyt minuutin ja tunnin ajan.

a) ja b) kohdan mukainen laskeumavuo

$$F_m = \int_0^{1000 \text{ m}} 1 \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} \cdot e^{-\Lambda z} \Lambda dz = 1000 \frac{\text{Bq}}{\text{m}^2} \cdot \Lambda e^{-\Lambda z}$$

$$\text{Ajassa } t \text{ kertynyt laskeuma } \int_0^t F_m dt = 1000 \frac{\text{Bq}}{\text{m}^2} (1 - e^{-\Lambda t})$$

Pesukertoimen arvo a- ja b-kohdassa on

- $\Lambda = 1,5 \text{ I}/d_v = 0,75 \text{ h}^{-1} = 2,1 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  ja
- $\Lambda = 8 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1} I^{0,65} = 5,1 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ .
- Tunnissa neliömetrille sataa puoli litraa vettä, joka sisältää saman määrän radioaktiivisia aineita kuin  $500 \text{ m}^3$  pintailmaa.

Laskeuman suuruudeksi ( $\text{Bq/m}^2$ ) saadaan

	Minuutin sade	Tunnin sade
a)	13	530
b)	3	168
c)	8	500

### 3.6 Radioaktiiviset hiukkaset vakavista reaktori-onnettomuuksista ja ydinasekoikeista

#### Tshernobylin onnettomuus

Radioaktiivisten aineiden laskeuma Tshernobylin turmasta vuonna 1986 jakautui tuulten ja sateen vaikutuksesta hyvin epätasaisesti eri puolille

Eurooppaa. Aineita havaittiin myös Euroopan ulkopuolella aina Japanissa ja Pohjois-Amerikassa asti. Neljä prosenttia reaktorin polttoaineesta vapautui ympäristöön räjähdyksessä huhtikuun 26. päivänä ja tulipalossa sitä seuraavien päivien aikana (katso kirja 5, Ydinturvallisuus, luku 6). Kokonaispäästöstä noin neljäsosa vapautui ensimmäisen vuorokauden aikana. Seuraavien yhdeksän päivän aikana höyrystyi ydinpolttoaineen, grafiitin ja muiden rakennemateriaalien muodostamasta sulasta muun muassa cesiumia, jodia sekä osittain myös vaikeammin höyrystyviä aineita kuten ruteniumia ja telluuria.

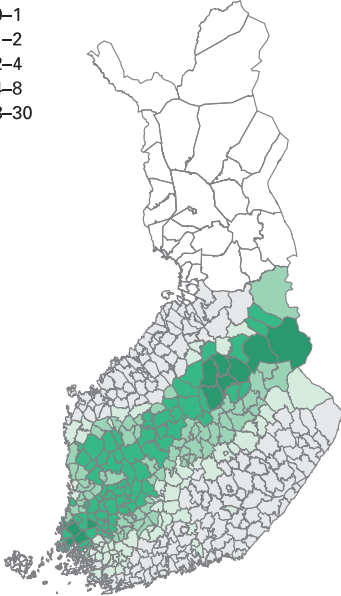
Alkuvaiheen räjähdyksessä vapautunut radioaktiivisten aineiden pilvi kulkeutui huhtikuun 27. päivän aikana eteläisen Suomen yli lounaasta koilliseen. Suomessa esimerkiksi  $^{95}\text{Zr}$ :n laskeuma noudatti varsin tarkkaan alkuvaiheen päästöpilven reittiä (kuvat 3.5 ja 3.11). Palavasta reaktorista höyrystymällä vapautuneiden radioaktiivisten aineiden laskeuma tuli maahan sateiden mukana pääasiassa 29–30. huhtikuuta.  $^{137}\text{Cs}$  deponoituiakin selvästi eri alueille kuin vaikeasti höyrystyvä Zr (kuva 3.11).  $^{103}\text{Ru}$ :n maantieteellinen jakauma muistuttaa sekä  $^{137}\text{Cs}$ :n että  $^{95}\text{Zr}$ :n jakaumaa; ruteniumia tulikin sekä alkuperäisestä räjähdyksestä että sen jälkeisestä tulipalosta. Kylmä pohjoinen ilmavirtaus levisi koko Suomeen 30.4–1.5 ja puhdisti ilmakehän keinotekoisista radioaktiivisista aineista.

Ilmatieteen laitoksen mittausten mukaan pintailman aktiivisuuspitoisuus oli selvästi korkein eteläisimmässä Suomessa sijainneilla havainnointiasemilla (Nurmijärvi, Helsinki ja Maarianhamina). Beetasäteilyä lähettävien aineiden pitoisuus ilmassa oli selvästi kohonnut yhtenä tai kahtena 0,5–1 vuorokauden mittaisena jaksana 27.–29.4.1986. Säteilyturvakeskuksen mittausten mukaan  $^{131}\text{I}$ :n aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraali oli 4 500 Bq h/m<sup>3</sup> Nurmijärvellä. Suurin mitattu  $^{131}\text{I}$ :n aktiivisuuspitoisuus oli 220 Bq/m<sup>3</sup> (7 tunnin keskiarvo 28.4.1986 klo 15:10–22:10). Vastaavasti  $^{137}\text{Cs}$ :n aktiivisuuspitoisuuden aikaintegraali oli kokonaisuudessaan 140 Bq h/m<sup>3</sup> ja keskimääräinen aktiivisuuspitoisuus kyseisen 7 tunnin jakson aikana 12 Bq/m<sup>3</sup>.

Laskeuma oli suurinta Keski-Suomessa, vaikka aktiivisuuspitoisuus pintailmassa oli siellä hyvin vähäistä eteläisimpään Suomeen verrattuna. Radioaktiiviset aineet olivatkin pääasiassa 0,5–1,5 km korkeudessa, josta ne tulivat sateiden mukana alas. Suomessa havaittiin laskeumanäytteistä yli 30 radionuklidia. Nykyisin saatavan annoksen kannalta tärkein laskeuman sisältämä radioaktiivinen aine on  $^{137}\text{Cs}$ . Pohjois- ja Itä-Suomeen  $^{137}\text{Cs}$ -laskeumaa tuli vähiten.

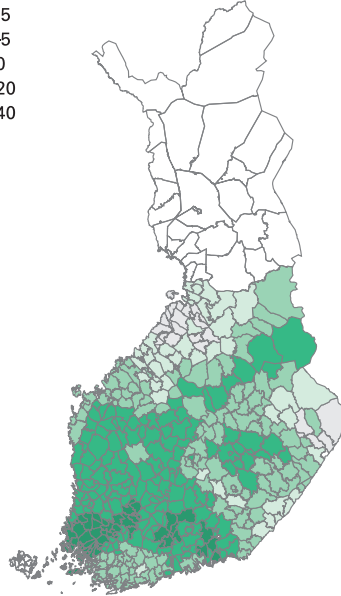
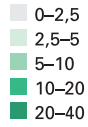
<sup>95</sup>Zr-laskeuma

kunnittain 26.4.1986 (kBq/m<sup>2</sup>)



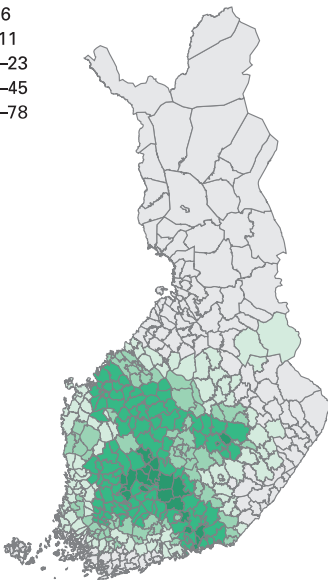
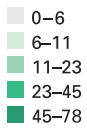
<sup>103</sup>Ru-laskeuma

kunnittain 26.4.1986 (kBq/m<sup>2</sup>)



<sup>137</sup>Cs-laskeuma

kunnittain 1.10.1987 (kBq/m<sup>2</sup>)



**KUVA 3.11** <sup>95</sup>Zr-, <sup>103</sup>Ru- ja <sup>137</sup>Cs-laskeuma Suomessa (kBq/m<sup>2</sup>) Tshernobylin onnettomuudesta

Lukuarvot on ilmoitettu ottaen huomioon radioaktiivinen hajoaminen kuvassa esitettyyn päivämäärään asti.

## ”Kuumat” hiukkaset

Ulkoilmassa on aerosolihiukkasia tyypillisesti  $10^{10}$  kappaletta kuutiometrissä. Jos tietyn nuklidin aktiivisuuspitoisuus on  $100 \text{ Bq/m}^3$ , on yksittäisen hiukkasen keskimääräinen aktiivisuus tällöin  $10^{-8} \text{ Bq}$ . Yleensä radioaktiiviset aineet jakautuvat suureen määrään hiukkasia, jolloin samassa paikassa olevat henkilöt altistuvat yhtä suurelle hengityksen kautta tulevalle sisäiselle säteilylle, ja altistusta voidaan arvioida mittaamalla ilman aktiivisuuspitoisuus. Näin ei ole, mikäli radioaktiiviset aineet ovat jakautuneet verraten pieneen määrään yksittäisiä hiukkasia.

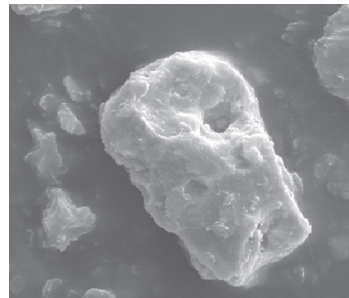
Tshernobylin onnettomuudessa sekä 1950- ja 1960-luvuilla ilmakehässä suoritetuissa ydinasekokeissa ilmaan vapautui runsaasti niin sanottuja ”kuumia” hiukkasia. Sanaa ”kuuma” käytetään synonyymina erittäin aktiivisille hiukkasille eikä se viittaa hiukkasen lämpötilaan. Kuumat hiukkaset – jotka Tshernobylin onnettomuuden tapauksessa olivat sirpaloituneita ydinpolttoaineen osia – voivat olla niin aktiivisia, että jopa yksittäinen hiukkanen joutuessaan pitkäksi aikaa kosketukseen kudoksen kanssa voi aiheuttaa deterministisiä haittavaikutuksia (katso luku 8.8 sekä kirja 4, Säteilyn terveystvaikutukset, luvut 4 ja 12).

Suurimmat ydinpolttoainehiukkaset putosivat lähelle räjähdyspaikkaa. Tshernobylin turman jälkeen satojen mikrometrien hiukkasia löydettiin vaurioituneen voimalan lähiympäristöstä. Niiden aktiivisuus oli jopa yli miljoona becquereliä. Vielä yli tuhannen kilometrin päässä havaittiin yli  $10 \mu\text{m}$  hiukkasia (kuva 3.12), joiden aktiivisuus oli enemmän kuin  $10 \text{ kBq}$ . Suomesta löytyneiden hiukkasten aktiivisuus oli alle tuhat becquereliä.

Tshernobylin onnettomuudesta mekaanisesti vapautuneiden ydinpolttoainehiukkasten nuklidikoostumus oli vaikeasti höyrystyvien aineiden osalta yleensä suunnilleen samanlainen kuin säteilytettyssä ydinpolttoaineessa. Hiukkasten aktiivisuusanalyysit tehtiin tyypillisesti viikkoja, jopa kuukausia onnettomuuden jälkeen, joten niissä havaittiin usein vain suhteellisen pitkäikäisiä isotooppeja kuten  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{141}\text{Ce}$  ja  $^{144}\text{Ce}$ .

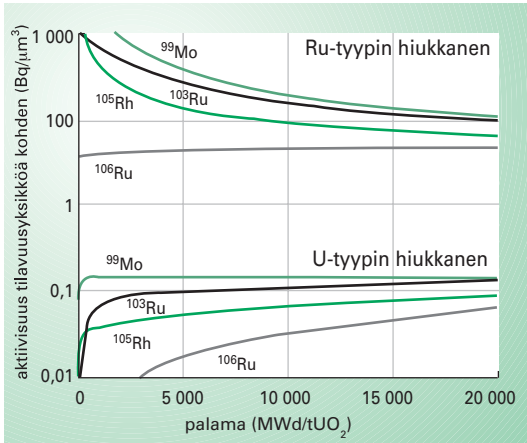
### KUVA 3.12 Itämeren pohjasta löytynyt Tshernobylistä peräisin oleva ydinpolttoainehiukkanen

Löytöhetkellä 1996 hiukkasessa oli enää jäljellä pitkäikäisiä radionuklideja, joiden aktiivisuuksien summa oli noin  $5 \text{ Bq}$ . Hiukkasen koko on noin  $18 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ .





Tshernobylistä vapautuneiden hiukkasten joukossa oli myös erittäin aktiivisia lähes pelkästään metalleista Mo, Tc, Ru, Rh ja Pd koostuvia hiukkasia. Kun esimerkiksi ruteniumin isotooppien keskimääräinen aktiivisuus ydinpolttoaineen tilavuusyksikköä kohti on luokkaa 0,05–0,2 Bq/μm<sup>3</sup> (keskimääräiseen palamaan säteilytetty polttoaine), voi samojen nuklidien aktiivisuus näissä niin sanotuissa Ru-tyyppin hiukkasissa olla jopa tuhatkertainen (kuva 3.13). Syynä on se, että ydinpolttoaineesta yli 90 prosenttia koostuu vähäaktiivisesta <sup>238</sup>U:sta, jota Ru-tyyppin hiukkasissa ei juuri ole.



**KUVA 3.13** Nuklidien <sup>99</sup>Mo, <sup>103</sup>Ru, <sup>105</sup>Rh ja <sup>106</sup>Ru laskennallinen aktiivisuus yksikkötilavuutta kohden U- ja Ru-tyyppin hiukkasissa polttoaineesta otetun energian – palaman – funktiona

U-tyyppin hiukkasten koostumus oletetaan samaksi kuin ydinpolttoaineen koostumus. Ru-tyyppin hiukkasissa on vain fission ja peräkkäisten beetahajoamisten kautta syntyneiden aineiden Mo, Tc, Ru, Rh ja Pd radionuklideja eikä lainkaan uraania.

Hiukkasessa olevien radioaktiivisten aineiden aktiivisuutta voidaan tiettyissä tapauksissa arvioida laskennallisesti. Nuklidin *i* aktiivisuus  $A_i$  pyöreässä halkaisijaltaan *d* olevassa hiukkasessa on

$$A_i = \frac{\pi}{6} \cdot d^3 \cdot \rho \cdot a_i, \quad (3.32)$$

$$a_i = f_i \frac{\ln 2 \cdot N_A}{T_{1/2} \cdot M_i},$$

jossa  $\rho$  on hiukkasen tiheys,  $a_i$  on nuklidin *i* aktiivisuus hiukkasessa (Bq/kg),  $f_i$  on nuklidin *i* osuus hiukkasen massasta,  $N_A$  on Avogadron vakio ( $6,02 \cdot 10^{23}$  1/mol) ja  $M_i$  on nuklidin *i* moolimassa. Ydinpolttoaineesta vapautuvien hiukkasten aktiivisuutta voidaan arvioida polttoaineen nuk-

lidikoostumuksen perusteella ottaen huomioon fissioreaktion pysähtymisen jälkeen tapahtuva radioaktiivisten aineiden hajoaminen. Esimerkiksi jos nuklidin  $i$  aktiivisuus ydinreaktorin polttoaineessa on  $10^{13}$  Bq/kg – kuten esimerkiksi  $^{95}\text{Zr}$  tai  $^{141}\text{Ce}$ -isotooppien aktiivisuus voi olla – ja tiheys  $10^4$  kg/m<sup>3</sup> (ydinpolttoaineen tiheys), on kyseisen nuklidin aktiivisuus mekaanisesti vapautuneessa halkaisijaltaan 10 µm hiukkasessa noin 50 Bq, ja juuri ja juuri silmin havaittavassa 100 µm hiukkasessa peräti 50 kBq.

Suurten ydinpolttoaineesta vapautuneiden hiukkasten koostumus voi kuitenkin poiketa polttoaineen koostumuksesta. Esimerkiksi jodia ja cesiumia on saattanut höyrystyä, jolloin niiden määrä suurissa hiukkasissa on vähäinen. Hiukkasten koostumus voi poiketa lähdemateriaalin koostumuksesta myös jos materiaali sulaa osittain ja sula kulkeutuu erilleen kiinteään olomuotoon jäävistä aineista. Hiukkasissa esiintyvien saman alkuaineen eri isotooppien välisen suhteen, esimerkiksi  $^{106}\text{Ru}/^{103}\text{Ru}$ , pitäisi kuitenkin vastata lähdemateriaalissa vallitsevaa isotooppisuhdetta, koska pääsääntöisesti saman alkuaineen eri isotoopit käyttäytyvät vapautumisprosessissa samalla tavalla.

Myös Windscalen onnettomuuden 1957 jälkeen (kirja 5 luku 6.2) lähiympäristöstä havaittiin mekaanisesti vapautuneita suuria ydinpolttoainehiukkasia. Kosmos 954 satelliitin pudottua Kanadaan tammikuussa 1978 levisi sen ydinreaktorista radioaktiivisia hiukkasia laajoille alueille. Suurimpien ympäristöstä löydettyjen ydinpolttoainehiukkasten aktiivisuus oli useita megabecquerelejä. Sosnovyi Borin ydinvoimalassa tapahtui vuonna 1992 vuoto, jossa pieniä määriä radioaktiivisia aineita vapautui ilmakehään. Tapahtuman jälkeen havaittiin Etelä-Suomen ulkoilman hiukkasissa radioaktiivisia aineita, joiden nuklidikoostumus vastasi ydinpolttoaineen koostumusta (katso kirja 1, Säteily ja sen havaiseminen, kuva 5.7). Havaittujen yksittäisten hiukkasten aktiivisuus oli korkeintaan muutamia becquerelejä, ja niiden laskennallisesti arvioitu koko enintään muutama mikrometri.

## Ydinaseräjähdyksen tuottamat radioaktiiviset hiukkaset

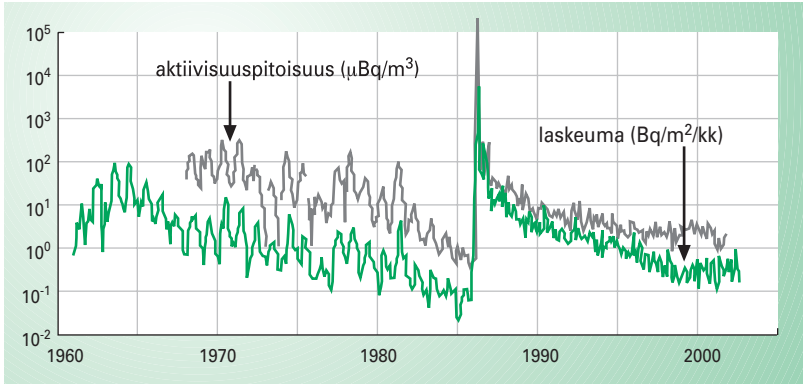
Ydinaseen räjähdyksessä lämpötila on niin korkea, että kaikki räjähteen osat höyrystyvät. Ilmakehässä tapahtuneessa räjähdyksessä radioaktiivisia aineita sisältävä pilvi nousee voimakkaasti ylöspäin, koska se on huomattavasti ympäröivää ilmaa kuumempaa. Kuumaan tulipalloon imeytyy kylmää ilmaa alhaalta. Jos räjähdys tapahtuu lähellä maan pintaa, vie

maasta ylöspäin nouseva ilma mukanaan kymmenien tai satojen mikrometrien hiukkasia tulipalloon. Sekä maaperä että tulipalloon nousseet hiukkaset aktivoituvat voimakkaan neutronisäteilyn vaikutuksesta. Jäähdyessään radioaktiiviset höyryt joko tiivistyvät maasta nousseiden hiukkasten pintaan tai nukleoituvat muodostaen kooltaan alle mikrometrin hiukkasia. Suuret hiukkaset nousevat aluksi muun pilven mukana, mutta pilven nousuvauhdin hiipuessä ne alkavat pudota kohti maata. Noin vuorokauden kuluessa ne muodostavat lähilaskeuman, joka saattaa ulottua satojen kilometrien päähän räjähdyspaikalta tuulen suuntaan.

Lähilaskeuman merkitys havaittiin vuonna 1954, jolloin Bikinillä räjäytetyn 15 megatonnin ydinräjähteen radionuklidit kiinnittyivät pääosin korallista ilmaan nousseisiin 20–500 µm hiukkasiin. Räjähdyspaikalta 130 km etäisyydellä ollut kalastusalus Fukuryu Maru (Onnellinen lohikäärme) jäi lähilaskeuman alle. Laivan saapuessa Japaniin osa sen miehistöstä kärsi tyypillisistä säteily sairauden oireista ja eräs heistä kuoli kuusi kuukautta myöhemmin.

Pienet hiukkaset muodostavat kaukolaskeuman. Kilotonniluokan räjähteessä pienhiukkaset jäävät troposfääriin, jossa ne viiptyvät muutamia viikkoja ja tulevat lopulta sateiden mukana maahan. Laskeuman määrä on usein suoraan verrannollinen sademäärään. Radioaktiiviset aineet kulkeutuvat pohjoisen pallonpuoliskon troposfäärissä yleensä itään. Kulkeutumisaika maapallon ympäri on 2–3 viikkoa.

Jos räjähte on megatonniluokkaa, hiukkaset voivat nousta troposfääriin yläpuolella olevaan stratosfääriin. Siellä ei ole sateita, joten hiukkaset saattavat deponoitua maahan vasta vuosien kuluttua räjähdyksestä. Suurin osa stratosfääriin joutuneista hiukkasista kulkeutuu troposfääriin 40.–50. leveysasteiden välille riippumatta siitä, miltä alueelta ne ovat peräisin. Troposfääriin ylärajalla – tropopausissa – on tällä alueella epäjatkuvuuskohta, josta epäpuhtaudet kulkeutuvat troposfääriin erityisesti keväisin. Siksi säteilyannosten kannalta tärkeillä pitkäikäisillä radionuklideilla  $^{137}\text{Cs}$  ja  $^{90}\text{Sr}$  oli Suomessakin havaittavissa laskeumassa ja ilman aktiivisuuspitoisuudessa selvä vuodenaikaisvaihtelu ennen Tshernobylin turmaa (kuva 3.14). Tshernobylin onnettomuudessa radionuklideja ei noussut merkittävästi stratosfääriin, joten vuodenaikaisvaihtelua ei enää havaita. Suomen alueella ydinkokeiden aiheuttama radioaktiivisten aineiden laskeuma oli melko tasainen. Kaikkien ilmakehässä suoritettujen ydinkokeiden aiheuttama  $^{137}\text{Cs}$ -laskeuma oli Suomessa noin 1 800 Bq/m<sup>2</sup> ja  $^{90}\text{Sr}$ -laskeuma noin 1 100 Bq/m<sup>2</sup>.



KUVA 3.14  $^{137}\text{Cs}$ :n aktiivisuuspitoisuus ilmassa ja laskeuma Helsingissä

Yhdistyneiden kansakuntien tieteellinen komitea UNSCEAR on arvioinut 1950–1960 luvuilla ilmakehässä tehtyjen yli 400 ydinasekokeen aiheuttaman kollektiivisen efektiivisen annoksen sitouman olevan  $3 \cdot 10^7$  manSv, josta yli 90 prosenttia saadaan vuoden 2000 jälkeen. Vaikka ydinasekokeista peräisin olevista nuklideista  $^{137}\text{Cs}$  ja  $^{90}\text{Sr}$  aiheuttavat tällä hetkellä eniten annosta, on pitkällä aikavälillä  $^{14}\text{C}$ :n osuus suurin. Pitkän puoliintumisaikansa (5 730 a, liite 1) vuoksi se aiheuttaa annosta kauan; vain kymmenesosa ydinasekokeiden tuottaman  $^{14}\text{C}$ :n aiheuttamasta annoksesta arvioidaan saatavan ennen vuotta 2200. Annos saadaan lähes yksinomaan ravinnon kautta, koska vain pari prosenttia maapallon  $^{14}\text{C}$ :stä on ilmakehässä.

### 3.7 Aerosolinäytteiden keruu- ja analyysimenetelmiä

Ulkoilman hiukkasten pitoisuuden, kokojakauman, alkuaine- ja nuklidi-koostumuksen, rakenteen ynnä muiden ominaisuuksien sekä kaasujen pitoisuuden määrittämiseen on olemassa lukuisia menetelmiä. Seuraavassa tarkastelussa rajoitutaan yleisimpiin keruu- ja analysointimenetelmiin. Radonin ja sen tytärnuklidien mittausten menetelmiä käsitellään luvussa 4.5.

Suodatus on yleisin ja yksinkertaisin menetelmä hiukkasten keräämiseksi ulkoilmasta. Yleensä käytetään kuitusuodattimia, jotka on valmistettu paksuudeltaan mikrometriluokkaa olevista kuiduista. Niissä hiukkaset kerääntyvät pääasiassa kuitujen väleihin. Tavallisin suodatinmateriaali on lasikuitu. Suuri näytemäärä lisää havaitsemisherkkyttä. Tämän takia ulkoilman sisältämien radioaktiivisten aineiden valvonnassa käytetään

keräimiä, joissa suodattimen läpi imettävä ilmamäärä on tyypillisesti 100–1 000 m<sup>3</sup>/h (kuva 3.15). Nuklidien <sup>137</sup>Cs ja <sup>131</sup>I havaitsemisrajat ovat Säteilyturvakeskuksen käyttämällä germaniumilmaisimilla suuruusluokkaa 1 µBq/m<sup>3</sup>, kun näytteenkeräysaika on viikko ja mittausaika vuorokausi. Myös kannettavia keräimiä voidaan käyttää, mutta niiden läpi imettävä ilmamäärä on pienempi ja havaitsemisrajat siksi suurempia.

Kuitusuodattimien sijasta voidaan käyttää kalvosuodattimia, kun halutaan mitata erityisesti alfasäteilyä lähettävien aineiden pitoisuutta suoraan suodattimelta. Kalvosuodattimessa ilma kulkee tasapintaiseen kalvoon tehtyjen pienten reikien läpi, jolloin hiukkaset jäävät suodattimen pintaan. Alfasäteilyn absorptio suodatimeen vältetään, koska kerättyjen hiukkasten ja alfailmaisimen välissä ei ole suodatinmateriaalia.

Impaktorilla voidaan kerätä kokoluokitettuja hiukkasnäytteitä. Yksittäinen impaktorin aste koostuu reikälevystä ja sen alapuolelle sijoitetusta keräysalustasta. Reikälevyn läpi imettävä ilma joutuu tekemään jyrkän mutkan kiertääkseen keräysalustan. Tiettyä aerodynaamista halkaisijaa suuremmat hiukkaset eivät pysty seuraamaan mutkaista virtausta, vaan jatkavat matkaa suoraviivaisesti ja törmäävät keräysalustaan. Monias-teimpaktorissa on useita asteita peräkkäin siten, että suurimmat hiukkaset kerätään ensin ja jokainen seuraava aste kerää pienempiä hiukkasia kuin edellinen. Viimeisenä asteena voidaan käyttää suodatinta. Impaktorin yksittäistä astetta voidaan käyttää myös esierottimena, esimerkiksi jos analysoitavaan näytteeseen halutaan vain pienhiukkasia.

Kaasumaisia jodiyhdisteitä voidaan kerätä aktiivihilisuodattimilla. Aktiivihiihi on erittäin huokoista ja sen ominaispinta-ala on hyvin suuri, luokkaa 1 000 m<sup>2</sup>/g. Epäorgaaninen jodi adsorboituu aktiivihiiheen. Aktiivihiihi täytyy kyllästää esimerkiksi trietyleenidiamiinilla (TEDA) tai kaliumjodidilla, jotta myös orgaaninen jodi adsorboituisi siihen. Tukkeutumisen estämiseksi aktiivihilisuodattimen edessä käytetään hiukkas-suodatinta.

Radioaktiivisia jalokaasuja, kuten esimerkiksi <sup>133</sup>Xe:a, voidaan kerätä jäähdytettyyn aktiivihilisuodatimeen ja analysoida esimerkiksi gammaspektrometrilla. Eräät laitteet käyttävät hyödyksi tuikeilmaisimia ja beeta-gammakoinssidenssia. Tyypillinen havaitsemisraja <sup>133</sup>Xe:lle on 1 mBq/m<sup>3</sup>.

Laskeumanäyte kerätään ylöspäin avonaiseen kartionmuotoiseen astiaan (kuva 3.15). Sadevesi valuu astian alla olevaan pulloon. Astiaan jääneet

hiukkaset kerätään talteen huuhtelemalla tai pyyhkimällä astian pinta. Laskeuman suuruus riippuu kaasujen ja pienhiukkasten kohdalla myös pinnan ominaisuuksista, joten keräimeen tullut laskeuma voi selvästi poiketa kerääjän lähelle maahan tulleesta laskeumasta.



**KUVA 3.15** Säteilyturvakeskuksen käyttämiä laitteita ilman (vasemmalla) ja laskeuman (oikealla) sisältämien radioaktiivisten aineiden keräämiseksi

Suodatin ja aktiivihilipatruuna ovat valkoisen kuvun sisällä. Kupu estää sadeveden pääsyn suodattimelle.

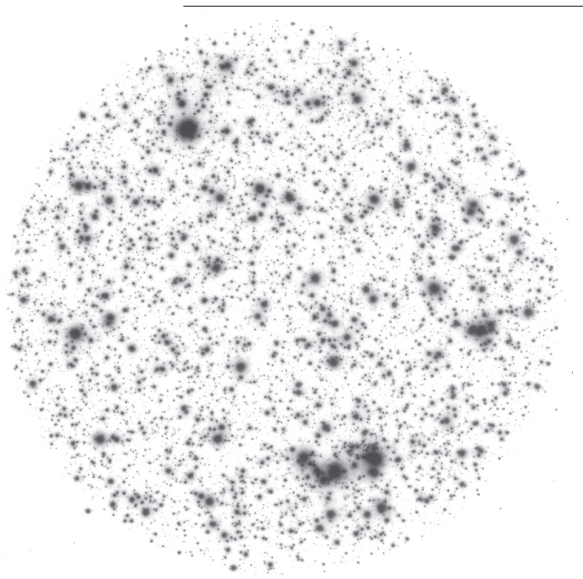
Näytteen nuklidikoostumuksen ja aktiivisuuden analysointiin on monia menetelmiä (kirja 1, luku 5). Tavallisin menetelmä on gammaspektrometria, jonka etuna on yksinkertainen näytteen esikäsittely. Myös alfa- ja beetaspektrometriaa käytetään, mutta analysoitavat aineet (esimerkiksi  $^{90}\text{Sr}$  sekä uraanin ja plutoniumin isotoopit) on ensin erotettava näytteestä esimerkiksi ekstraktiokromatografisesti. Ennen erottamista näyte konsentroidaan tuhittamalla ja/tai liuottamalla se happoihin, kuten esimerkiksi kloorivetyhapon ( $\text{HCl}$ ) ja typpihapon ( $\text{HNO}_3$ ) seokseen. Fluorivetyhappo ( $\text{HF}$ ) liuottaa myös lasikuitusuodattimet ja kvartsihiekkään sitoutuneet aineet. Orgaanisista aineista kuten polypropyleenista tai polyvinyylikloridista valmistetut suodattimet hajoavat tuhitettaessa, jolloin suodatinmateriaalista päästään eroon ilman happoliuotusta.

Havaitsemisrajat ovat nuklidikohtaisia ja riippuvat muun muassa suodatetusta ilmamäärästä, näytteen sisältämistä muista radioaktiivi-

sista aineista, näytteen iästä, mittausajasta, ilmaisimen havaitsemistehokkuudesta ja taustasuojasta. Kun vain pitkäikäiset nuklidit kiinnostavat, pidetään näytteenoton ja aktiivisuussmittauksen välissä tauko, jonka aikana radonin lyhytikäiset tytärnuklidit ehtivät hajota. Eräitä nuklideja voidaan toisaalta havainnoida sisäänkasvun perusteella.

Stabiilien sekä eräiden pitkäikäisten nuklidien havaitseminen edellyttää muiden kuin nuklidien spontaanisti emittoiman säteilyn havainnointiin perustuvien menetelmien käyttöä. Valittava menetelmä riippuu muun muassa siitä, mitä alkuaineita halutaan määrittää. Näytettä tuhoamattomia ovat esimerkiksi röntgenfluoresenssiin (XRF), protoni-indusoituun röntgenemissioon (PIXE) ja neutroniaktivointiin (NAA) perustuvat analyysimenetelmät. Näytteen liuotusta edellyttävät muun muassa ICP-atomiemissiospektrometria, ICP-massaspektrometria ja atomiabsorbtiospektroskopia (AAS).

Yksittäisiä voimakkaasti aktiivisia hiukkasia voidaan etsiä erilaisilta



**KUVA 3.16** Autoradiografiakuva suodattimesta (80 prosenttia luonnollisesta koosta), johon on kertynyt tuhansia radioaktiivisia hiukkasia.

Hiukkanen, joka tuotti suurimman pyöreän täplän, oli aktiivisuudeltaan noin 25 Bq. Näyte on kerätty ydinvoimalaitoksen sisätiloista huoltotöiden aikana.

pinnoilta esimerkiksi beeta-anturilla varustetun geigermittarin avulla. Kiinnostavia tutkimuskohhteita voivat olla vaikkapa ydinlaitosten seinäpinnat tai saastuneelta alueelta tulevat kulkuneuvot. Löydetystä aktiivisesta kohdasta otetaan pyyhkäisyinäyte. Voimakkaasti aktiivinen hiukkanen voidaan paikallistaa näytteestä autoradiografialla tai erilaisilla kuvantamislevyillä.

Autoradiografiassa näytteen päälle asetetaan röntgenfilmi, joka valottuu beetasäteilystä (kuva 3.16). Hiukkasten likimääräinen paikka voidaan tunnistaa filmille syntyvistä mustista täplistä, joiden koko on verrannollinen hiukkasen aktiivisuuteen ja beetasäteilyn energiaan. Filmin avulla näytteestä voidaan erottaa halutun radioaktiivisen hiukkasen sisältävä



osa ja mitata sen aktiivisuus esimerkiksi gammaspektrometrilla. Luonnon radioaktiivisten aineiden tausta on ositetussa kuuman hiukkasen sisältävässä näytteessä huomattavasti vähäisempi kuin alkuperäisessä näytteessä. Yleensä tarvitaan useita eristämisen- ja analyysivaiheita, jotta haluttu hiukkanen voidaan varmasti tunnistaa. Eristettyä näytettä (kuva 3.12) voidaan tutkia elektronimikroskooppilla. Alkuaineet voidaan tunnistaa mikroskoopin elektronisuihkun virittämien atomien lähettämän karakteristisen röntgensäteilyn perusteella.

### 3.8 Ilman ja laskeuman radioaktiivisten aineiden valvonta

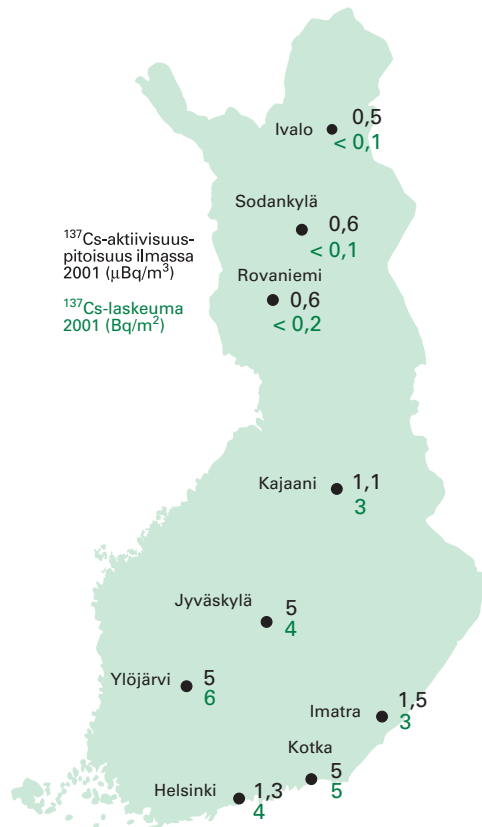
Säteilyturvakeskus valvoo pintailman aktiivisuuspitoisuutta hiukkaskeräimillä kahdeksalla ja puolustusvoimat yhdellä paikkakunnalla eri puolilla Suomea (kuva 3.17). Lisäksi ydinvoimalaitosten ympäristössä Loviisassa ja Olkiluodossa on neljä voimayhtiöiden kerääjää kummassakin. Useimmissa keräimissä on lasikuitusuodatin hiukkasia varten ja patruuna TEDAlla kyllästettyä aktiivihiiltä kaasumaisen (ja lasikuitusuodattimesta desorboituvan) radioaktiivisen jodin pidättämiseksi. Lasikuitusuodattimen läpi imetään ilmaa 150–900 m<sup>3</sup>/h ja aktiivihiilipatruunan läpi 12 m<sup>3</sup>/h. Lasikuitusuodattimet vaihdetaan tavallisesti kerran tai kaksi kertaa viikossa ja aktiivihiilipatruunat kerran kuussa. Suodatin ja aktiivihiili analysoidaan laboratoriossa gammaspektrometrillä. Lasikuitusuodattimet puristetaan napiksi ennen mittausta. Havaitsemisrajat gamma-säteilyä lähettävillä nuklideilla ovat laboratorio-olosuhteissa tyypillisesti luokkaa 1 µBq/m<sup>3</sup>.

Osa keräimistä on hälyttäviä. Niihin on asennettu tuikeilmaisain/geigermittari, joka mittaa suodattimeen kertyvien radionuklidien aktiivisuutta/annosnopeutta jatkuvasti. Laitteisto suorittaa hälytyksen, jos aktiivisuus/annosnopeus nousee ennalta määrätyn raja-arvon yli.

Ilmatieteen laitos seuraa ulkoilman beetasäteilyä lähettävien aineiden kokonaisaktiivisuutta kahdellatoista paikkakunnalla. Näytteet kerätään joko viikoittain tai päivittäin ja suodatettu ilmamäärä on 800–4 000 m<sup>3</sup>. Kokonaisaktiivisuus mitataan noin viisi päivää keräyksen lopettamisen jälkeen, jolloin <sup>222</sup>Rn:n lyhytikäiset tytärnuklidit ovat ehtineet hajota. Normaalitilanteessa havaittava aine on lähinnä <sup>210</sup>Pb, joka on <sup>222</sup>Rn:n pitkäikäinen tytärnuklidi. Mittaukset tehdään automaattisella alfa/beeta-analysaattorilla, jossa ilmaisimena käytetään verrannollisuuslaskureita.



Säteilyturvakeskus valvoo laskeuman radioaktiivisia aineita samoilla paikkakunnilla kuin ilman sisältämiä radioaktiivisia aineita (kuva 3.17). Näytteet kerätään ruostumattomasta teräksestä valmistetuilla laitteilla, joiden keräyspinta-ala on 0,07 m<sup>2</sup>. Keräysjakso on tavallisesti yksi kuukausi. Kuiva- ja märkälasseumaa ei eroteta toisistaan. Laitteissa on lämmitysvastus, mikä pitää laitteen talvella sulana ja varmistaa sen, että kaikki keräysastiaan satanut lumi tulee mukaan näytteeseen. Laboratoriossa näytteisiin lisätään Sr-Cs ja Ba-Ce -kantajia ja näytteet tehdään happamiksi typpihapolla. Näytteet konsentroidaan haihduttamalla ja haihdutusjäännökset tuhitetaan. Gammaspectrometrinen analyysi tehdään joko haihdutusjäännöksestä tai tuhitetusta näytteestä. <sup>90</sup>Sr erotetaan näytteestä ekstraktiokromatografisesti ja määritetään tytärnuklidinsa <sup>90</sup>Y kautta pienitaustaisella verrannollisuuslaskurilla.



KUVA 3.17 <sup>137</sup>Cs:n keskimääräinen aktiivisuuspitoisuus ja laskeuma vuonna 2001.

Liikkuvilla alustoilla sijaitsevien laitteiden avulla voidaan näytteiden keruu ja analysointi tehdä paikassa, jossa ei ole kiinteitä asemia (luku 8.9). Säteilyturvakeskus on varustanut auton liikkuvaksi laboratorioksi sekä valvonta- että valmiuskäyttöä varten. Autossa olevalla laitteistolla voidaan kerätä hiukkasnäytteitä ja analysoida näytteen sisältämät radioaktiiviset aineet auton liikkessa. Liikkuva laboratorio rekisteröi sijaintinsa GPS-paikantimen avulla ja kykenee lähettämään mittaustietoja tosiaikaisesti Säteilyturvakeskukseen. Puolustusvoimilla on käytössään laitteisto lentokoneesta tapahtuvaan aerosolinäytteenottoon.

## KIRJALLISUUTTA

Brenk H D, De Witt H. Indoor inhalation exposure after nuclear accidents. *Radiation Protection Dosimetry* 1987; 21: 117–123.

Chamberlain A C. *Radioactive aerosols*. Cambridge: Cambridge University Press, 1991.

Hanna S R, Briggs G A, Hosker Jr. R P. *Handbook on atmospheric diffusion*. U.S. Department of Energy, Technical Information Center, 1982.

Hinds W C. *Aerosol technology: Properties, behavior, and measurement of airborne particles*. 2<sup>nd</sup> ed. New York: Wiley-Interscience, 1999.

International Commission on Radiological Protection. *Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection*. *Annals of the ICRP*, Publication 66, Elsevier Science, Inc., Tarrytown, NY, 1994.

Jylhä K. *The Scavenging of Air Pollutants by Precipitation, and its Estimation with the Aid of Weather Radar*. Helsinki: Report No. 50, University of Helsinki, Department of Meteorology, 2000.

Kauppinen E, Hillamo R, Jokiniemi J, Aaltonen H, Sinkko K. Radioactivity size distributions of ambient aerosols in Helsinki, Finland during May 1986 after Chernobyl accident. *Discussions of accident scenario. Preliminary report*. VTT Tiedotteita 581, Valtion Teknillinen Tutkimuskeskus, Espoo 1986.

Mück K, Pröhl G, Likhtarev I, Kovgan L, Golikov V, Zeger J. Reconstruction of the inhalation dose in the 30-km zone after the Chernobyl accident. *Health Physics* 2002; 82: 157–172.

Nordlund G, Riekkinen A L, Tammelin B. Pasquill-tyyppinen ilman epäpuhtauksien leviämismalli. *Ilmatieteen laitoksen tiedonantoja No 31*. Helsinki: Ilmatieteen laitos, 1976.

Paatero J. Deposition of Chernobyl-derived transuranium nuclides and short-lived radon-222 progeny in Finland. *Finnish Meteorological Institute Contributions*, 28. Helsinki: Ilmatieteen laitos, 2000.

Porstendörfer J. Properties and behaviour of Radon and Thoron and their decay products in the air. *Journal of Aerosol Science* 1994; 25: 219–263.

Reineking A, Becker K H, Porstendörfer J, Wicke A. Air activity concentrations and particle size distributions of the Chernobyl aerosol. *Radiation Protection Dosimetry*, 1987; 19: 159-163.

Reineking A, Becker K H, Porstendörfer J. Measurements of the short-lived radon daughters in the indoor and outdoor environment. *Radiation Protection Dosimetry*, 1988; 24: 245-250.

Rinne J, Koistinen J, Saltikoff E. (Eds.) *Suomalainen sääkirja – etanasta El Niñoon*. Otavan Kirjapaino, Keuruu 1998.

Sehmel G A. 1980. Particle and gas dry deposition: a review. *Atmospheric Environment*, Vol. 14, s. 983–1011.

Seinfeld J H, Pandis S N. *Atmospheric chemistry and physics from air pollution to climate change*. New York: Wiley-Interscience Publication, 1998.

STUK-B-TKO 2. Mustonen R. (toim.) *Ympäristön säteilyvalvonta Suomessa*. Vuosiraportti 2000.

United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *Sources and Effects of Ionizing Radiation*. UNSCEAR 1993 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. United Nations, New York, 1993.

United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *Sources and Effects of Ionizing Radiation*. UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. United Nations, New York, 2000.

Willeke K, Baron P A. (Eds.) *Aerosol measurement: Principles, techniques, and applications*. New York: John Wiley & Sons, Inc., 1993.