

Norges miljø- og biovitenskapelige universitet

Masteravhandling 2021 30 stp Fakultet for miljøvitenskap og naturforvaltning

Deponering och rotupptag av ²³⁸U, ²³²Th, ²²⁶Ra och ²²⁸Ra i bär och tillhörande bladverk från områden med förhöjda nivåer av naturligt förekommande radioaktivitet

Deposit and rootuptake of ²³⁸U, ²³²Th, ²²⁶Ra and ²²⁸Ra in berries and their foliage from areas with elevated levels of naturally occurring radioactivity

Deponering och rotupptag av ²³⁸U, ²³²Th, ²²⁶Ra och ²²⁸Ra i bär och tillhörande bladverk från områden med förhöjda nivåer av naturligt förekommande radioaktivitet



Fakultet for miljøvitenskap og naturforvaltning (MINA) Norges Miljø- og biovitenskapelige universitet (NMBU) Ås, Norge

Carina Elin Sophie Ohlin

Förord

Denna masteravhandling på 30 studiepoäng är det avslutande arbetet på den femåriga utbildningen Master i Teknologi (civilingenjör) - kemi och bioteknologi med inriktning miljökemi och oorganisk analys. Avhandlingen utfördes vid Fakultet for miljøvitenskap og naturforvaltning (MINA) vid Norges Miljø- og biovitenskapelige universitet (NMBU) i samarbete med Direktoratet for strålevern og atomsikkerhet (DSA).

Först vill jag uttrycka min uppriktiga tacksamhet till mina handledare, professor Lindis Skipperud, PhD. Hallvard Haanes och PhD. Jelena Mrdakovic Popic, för god vägledning och allt ni lärt mig. Mitt intresse för radioekologi har verkligen fått blomstra. Ett extra tack till Hallvard vars passion och engagemang både inspirerat och utmanat mig, tack för ditt gedigna tålamod och att du svarade på alla mina frågor och funderingar i tid och otid. Tack till Louise Kiel Jensen för det fantastiska fältarbetet vid vackra Orrefjellet, det är en resa jag sent ska glömma. Stort tack till DSA, som genom Centre for Environmental Radioactivity (CERAD) gjorde resan möjlig.

Karl-Andreas, Yet och Marit förtjänar tack för all hjälp i laboratoriet och för allt stöd i processen, ni fick mig att alltid känna mig välkommen till isotoplaboratoriet.

Ett hjärtligt stort tack till mina nära och kära för att ni uppmuntrat mig under hela studietiden. Speciellt Thomas och Emma som alltid stöttat mig, bollat idéer och lyssnat på både funderingar och frustrationer. Tack för all eran hjälp och ert enorma stöd.

> Carina Elin Sophie Ohlin NMBU, Ås 01.06.2021

Sammandrag

Naturliga radionuklider förekommer med varierande koncentrationer i jordmånen och kan överföras till vegetation genom rotupptag eller deponering. Överföringen estimeras vanligen genom transferfaktorn, en väletablerad parameter inom radioekologi, som inte skiljer mellan rotupptag och deponering. Forskning på konstgjorda radionuklider visar att jordpartiklar som deponerar på vegetation kan bidra med betydande mängder radionuklider, något som kan bidra med osäkerhet till transferfaktorn.

Målet med denna studie var att undersöka hur stor andel av den totala koncentrationen av de naturligt förekommande radionukliderna torium-232 (²³²Th), uran-238 (²³⁸U), radium-226 (²²⁶Ra) och radium-228 (²²⁸Ra) i blåbär (*Vaccinium myrtillus*), smultron (*Fragaria vesca*) och tillhörande bladverk, som beror på deponering via jordpartiklar. Mängden deponerade jordpartiklar estimerades genom spårmetallerna skandium (Sc) och titan (Ti), två vanliga jordmineraler som i liten grad tas upp av rotsystemet till växter. Jorddeponeringsestimatet användes för att korrigera transferfaktorn. Proverna plockades från två områden med dokumenterade förhöjda koncentrationer av naturlig radioaktivitet; ²³⁸U-rika Orrefjell och ²³²Th-dominerade Fensfältet. Aktivitetskoncentrationen till ²²⁸Ra bestämdes med en high purity germanium (HPGe) detektor, och med induktivt kopplat plasma-massa spektrometri (ICP-MS) bestämdes koncentrationen av ²³⁸U, ²³²Th och ²²⁶Ra. Enligt studiens första hypotes är aktivitetskoncentrationen av ²³⁸U, ²³²Th, ²²⁸Ra och ²²⁶Ra som deponerat på bär och tillhörande blad genom jordpartiklar inte signifikant mätbar och kan därför negligeras vid beräkning av transferfaktor. Enligt studiens andra hypotes är det ingen skillnad mellan andelen deponerade naturligt förekommande radionuklider i bär jämfört med tillhörande bladverk.

Andelen deponerade radionuklider var högst för den minst mobila radionukliden ²³²Th, där 40-100% av totala aktivitetskoncentrationen i både bär och bladverk berodde på deponering. De moderat mobila radionukliderna ²²⁶Ra och ²²⁸Ra visade minst andel deponerad (0-10%), och ²³⁸U med varierande mobilitet varierade också i andelen deponerad (9-100%). Radionukliderna var heterogent fördelade i jordmånen vid Fensfältet och Orrefjell. Koncentrationen av ²³²Th och ²²⁸Ra i jordmånen från Fensfältet, och ²²⁶Ra i jordmånen från Orrefjell översteg gränsvärdet i norsk lag om miljöförorening på 1000 Bq/kg (Forurensningsloven, 2010). Mängden deponerade jordpartiklar var högre i bladverk, men på grund av högre rotupptag av radionukliderna i bladverken utgjorde de deponerade radionukliderna en mindre andel av den totala aktivitetskoncentrationen. Resultaten gav därför grundlag till att kunna förkasta båda hypoteserna.

Studien visar att jordpartiklar som deponerar på vegetation kan bidra med betydliga mängder naturligt förekommande radionuklider, vilket bidrar till osäkerhet vid beräkning av transferfaktorn. Genom att korrigera transferfaktorn med andelen deponerade radionuklider är det möjligt att minska denna osäkerhet.

Abstract

Natural radionuclides occur with varying concentrations in the soil and can be transferred to vegetation through root uptake or deposition. The transfer is usually estimated by a transfer factor, a well-established parameter in radioecology, which does not differentiate between root uptake and deposition. According to previous research on artificial radionuclides, soil particles deposited on the vegetation surface can contribute with considerable amounts of radionuclides, which can contribute with uncertainty to the transfer factor.

The aim of the study was to investigate the naturally occurring radionuclides thorium-232 (²³²Th), uranium-238 (²³⁸U), radium-226 (²²⁶Ra) and radium-228 (²²⁸Ra) in blueberries (*Vaccinium myrtillus*), wild strawberries (*Fragaria vesca*) and separate the proportion of deposited radionuclides from the radionuclides taken up by the root system. The amount of deposited soil particles was estimated by the trace metals scandium (Sc) and titanium (Ti). The soil deposition estimate was used to correct the transfer factor. The samples were taken from two areas with elevated concentrations of natural radioactivity; Orrefjell and Fensfältet. The activity concentration of ²²⁸Ra was determined with a high purity germanium (HPGe) detector, and the concentration of ²³⁸U, ²³²Th, ²²⁸Ra and ²²⁶Ra was determined by inductively coupled plasma-mass spectrometry (ICP-MS). According to the hypotheses, the activity concentration of ²³⁸U, ²³²Th, ²²⁸Ra in the amount of deposited soil particles on berries and their leaves is not significantly measurable and can therefore be neglected when calculating the transfer factor. In addition, no difference is expected between the proportion of naturally occurring radionuclides deposited in berries compared with associated foliage.

The proportion of deposited radionuclides was highest for the least mobile radionuclide ²³²Th, where 40-100% of the total activity concentration in both berries and foliage was due to deposition. The moderately mobile radionuclide ²²⁶Ra and ²²⁸Ra showed the least proportion deposited (0-10%), and ²³⁸U with varying mobility also varied in the proportion deposited (9-100%). The radionuclides were heterogeneously distributed in the soil from both Fensfältet and Orrefjell. The activity concentration of ²³²Th and ²²⁸Ra in the soil from Fensfältet, and ²²⁶Ra in the soil from Orrefjell exceeded the limit in the Norwegian Pollution Control of 1000 Bq/kg (Forurensningsloven, 2010). The proportion of deposited soil was higher in leaves, but due to a higher total concentration of the radionuclides in the leaves than in the berries, the deposited radionuclides accounted for a smaller proportion of the total activity concentration. The corrected transfer factor show a higher uptake in leaves than in berries. The results shows that both hypotheses could be rejected.

This study shows that soil particles deposited on vegetation can contribute with considerable amounts of naturally occurring radionuclides, which contributes with uncertainty to the transfer factor. By correcting the transferfactor with the proportion of deposited radionuclides it is possible to significantly reduce this uncertainty.

Lista över akronymer

CERAD	Centre for Environmental Radioactivity
CRM	Certified Reference Material
DOI	Digital Object Identifier System
DSA	Direktoratet for strålevern og atomsikkerhet
H ₃ PO ₄	Fosforsyra
HBF ₄	Flourborsyra
HNO ₃	Salpetersyra
HPGe	High Purity Germanium
IAEA	International Atomic Energy Agency
ICP-MS	Iductively Coupled Plasma – Mass Spektrometer
ICRP	International Commission on Radiological Protection
LOD	Limit of Detection
LOQ	Limit of Quantification
NMBU	Norges miljø- og biovitenskapelige universitet
NORM	Naturally Occurring Radioactive Material
RSD	Relative Standard Deviation
SD	Standard Deviation
TF	Transferfaktor
t.v.	Torrvikt
u.å.	Utan årtal
VV	Volym volym
w/V	Vikt/volym
w/w	Vikt/vikt

Lista över Figurer

Figur 1: Sönderfallet av ²³² Th och ²³⁸ U och deras dotterisotoper	2
Figur 2: Karta över delar av Fensfältet där station 1, 2, 3 och 4 markerats	8
Figur 3: Karta över Orrefjell där station 5, 6, 7 och 8 markerats	9
Figur 4: Linjär regression mellan jorddeponeringsestimat av Sc och Ti	17
Figur 5: Transferfaktor för ²³² Th	25
Figur 6: Transferfaktor för ²³⁸ U	25
Figur 7: Transferfaktor för ²²⁶ Ra	
Figur 8: Transferfaktor för ²²⁸ Ra	

Lista över Tabeller

Tabell 1: Provtagningskoordinater och tidpunkt (Fensfältet)	8
Tabell 2: Provtagningskoordinater och tidpunkt (Orrefjell)	9
Tabell 3: Detektionsgräns (LOD) och kvantifieringsgräns (LOQ)	16
Tabell 4: Crtifierat referensmaterial (CRM)	17
Tabell 5: Radionuklider i jordmån (Fensfältet)	
Tabell 6: Radionuklider i jordmån (Orrefjell)	20
Tabell 7: Radionuklider i vegetation från Fensfältet och Orrefjell	21
Tabell 8: Mängden deponerade jordpartiklar på vegetationen	22
Tabell 9: Transferfaktorer (TF) för ²³² Th, ²³⁸ U, ²²⁸ Ra och ²²⁶ Ra	24

Lista över Appendix

Appendix A: Provpreparering av provmaterial och arbete i laboratorium	35
Appendix B: Instrumentala inställningar, standardlösningar och husstandard	36
Appendix C: Detaljer i dataanalys	38
Appendix D: Detektionsgräns (LOD) och kvantifieringsgräns (LOQ)	40
Appendix E: Mätresultat av CRM	41
Appendix F: Totalkoncentration av radionuklider och spårmetaller i bär, blad och	
jordproverna	42
Appendix G: Andel av den totala aktiviteten eller koncentrationen som beror på	
deponering	43

Innehållsförteckning

1.	Inledning	1
1	.1 Hypoteser och studiemål	5
	Hypoteser	5
2.	Metod och material	6
2	.1 Beskrivning av studieområde	6
	2.1.1 Studieområde 1: Fensfältet, Nome	6
	2.1.2 Studieområde 2: Orrefjell, Salangen	6
2	2.2 Fältarbete	7
	2.2.1 Fältarbete i Fensfältet, Nome	7
•	2.2.2 Fältarbete i Orrefjell, Salangen	9
2	.3 Kvantitativ analys	10
	2.3.1 Gammaspektrometri	10
	2.3.2 Provpreparering for analys med ICP-MS	11
\mathbf{r}	2.5.5 Induktivi koppiat plasma mass spektrometri (ICP-MIS)	12
2	2.4 Dataformatering our statistisk analys	13
	2.4.1 Dataformatering av mattesunat	13
	2.4.2 Indisterior sestimat	15
	2.4.4 Liniär regression och korrelationsanalys	15
2	Description of distances	16
3.	Kesullal och alskussion	10
3	3.1.1 Metodvalidering (HPGe)	16
	3.1.2 Metodvalidering (ICP-MS)	10 16
	3.1.2 Vietod vandering (TeT 1415)	10
3	2.2 Totalkoncentrationer och aktiviteter av radionuklider	18
J	3.2.1 Jordanalys från Fensfältet	18
	3.2.2 Jordanalys från Orrefjell	20
	3.2.3 Totalaktivitet av radionuklider i bär och bladverk	21
3	.3 Andel radionuklider som deponerat på bär och bladverk	22
3	.4 Transferfaktorer	24
4.	Konklusion	28
5	Poforonslista	20
5.		49
App	pendix A: Provpreparering av provmaterial och arbete i laboratorium	35
App	pendix B: Instrumentala inställningar, standardlösningar och husstandard	36
App	pendix C: Detaljer i datanalys	38
App	pendix D: Detektionsgräns (LOD) och kvantifieringsgräns (LOQ)	40
App	pendix E: Mätresultat av CRM	41
App	pendix F: Totalkoncentration av radionuklider och spårmetaller i bär, blad och jord	42
App	pendix G: Andel av den totala aktiviteten som beror på deponering	43

1. Inledning

Det finns flera existerande och potentiella källor till radioaktiv strålning i naturen. Både i form av naturliga radionuklider i jordmån, berggrund och atmosfär, men också i form av konstgjorda radionuklider från bland annat nukleära vapentester och olyckor i förbindelse med kärnkraft. Radioaktiv strålning kan leda till både akuta och kroniska skador i organismer och vegetation (Singh et al., 2020; ATSDR, 1990; IAEA, 2014). Det är speciellt de kontgjorda radionukliderna som bidragit till mest bekymmer för den biologiska responsen (UNSCEAR, 2018), men under de senaste decennierna har även fokus riktats mot de naturligt förekommande radionukliderna (Betti et al., 2004).

Tillsammans med kosmisk strålning består den naturliga radioaktiviteten av strålning från sönderfallet av de ostabila isotoperna i berggrunden, också kallat de primordiala radionukliderna. De primordiala radionukliderna härstammar från jordklotets upprinnelse och har en så lång halveringstid att de är tillstädes än idag, där uran-238 (²³⁸U) och torium-232 (²³²Th) är de mest förekommande (Choppin et al., 2013). Vid sönderfall av ²³⁸U och ²³²Th bildas deras dotterisotoper (Figur 1), varav flera med radio- och/eller kemiskt toxiska egenskaper. Radium (Ra) är av särskild betydelse då ämnet är en analog till det essentiella ämnet kalcium (Ca), som vid intag ackumuleras i benvävnader (IAEA, 2014). Radium ingår i sönderfallskedjan till både ²³⁸U (²²⁶Ra) och ²³²Th (²²⁸Ra), där ²²⁶Ra har en halveringstid på 1600 år i skillnad mot ²²⁸Ra med en halveringstid på cirka 6 år.

I publikationen till International Commission on Radiological Protection (ICRP) i 1999 erkändes uttrycket naturligt förekommande radioaktivt material (NORM), och har sedan dess utvecklats och använts för att beskriva material utan betydande mängder radionuklider annat än de naturligt förekommande (IAEA, 2018). Behovet för internationella rättningslinjer av hantering med NORM växte fram i takt med ökad kunskap om NORMs påverkan på både människor och miljön (IAEA, 2003). I 2011 inkluderades NORM, som efter mänsklig aktivitet orsakat en strålexponering av människan eller miljö som överskrider gränsvärdena, i den norska lagen om miljöförorening (Forurensningsloven, 2010).

Med vittring och erosion fördelas primordiala radionuklider från berggrund till jordmån, vilket gör jordmånen till en av det största källorna till NORM (UNSCEAR, 2008). Koncentrationen av NORM i jordmånen är beroende på den lokala geologiska sammansättningen, då vissa bergarter innehåller högre koncentration av radionuklider än andra (IAEA, 2014). Bergarter innehållandes NORM är ofta rika på andra spårmetaller som sällsynta jordartsmetaller och tungmetaller, vilket sedan länge varit av intresse för människan och industri. Genom gruvbedrift och mineralutvinning kan NORM ackumuleras i malmrester och avfall och orsaka nivåer av NORM som överstiger gränsvärdena. I tillägg kan naturliga aktiviteter som magmatiska och sedimentära processer bidra till en förhöjd nivå av NORM. Jordmånen är inte bara en reservoar av metaller och radionuklider, det är en fundamental resurs av näring för vegetation. Flera studier rapporterar om ett ökat upptag av NORM i vegetation som växer vid områden med förhöjda nivåer i jordmånen (Popic, 2014; Thørring et al., 2020; Azeez et al., 2019).



Figur 1: Sönderfallet av ²³²Th och ²³⁸U och deras dotterisotoper. Halveringstiderna markeras med d för dagar, h för timmar, m för minuter, s för sekunder och y för år. Vilken energi som frigörs vid sönderfall markeras med alfa och beta (Nelson et al., 2015).

Överföringen av NORM från jordmån till vegetation kan föregå via två mekanismer; via rotupptag och via deponering. Rötternas huvudsakliga uppgift är att ta upp och transportera näring, och för ett stort upptag av näring krävs ett stort rotsystem (Sundgren, 2009). Eftersom växters yta är negativt laddade fungerar de som en katjonbytare (IAEA, 2014), men flera faktorer påverkar radionuklidernas affinitet till växternas yta. Ackumuleringen av radionuklider på växters rotsystem kan variera med en faktor på 100 mellan olika växtarter (IAEA, 2010). Det biogeokemiska beteendet till radionukliderna varierar med atomnumret och valenstalet, därmed varierar även radionukliders mobilitet och biotillgänglighet. I tillägg påverkar jordmånens fysiokemiska tillstånd mobiliteten till radionukliderna där viktiga parametrar är pH, katjonbytarkapacitet, koncentrationen av andra joner och innehållet av organiskt material (Popic et al., 2020; IAEA 2010).

Radionuklider som ²³⁸U förekommer i naturen med flera valenstillstånd, vilket spelar en betydande roll för dess beteende i jordmånen (Landa, 2007). Det geokemiska beteendet till U är ett välstuderat tema, men det finns få studier på upptaget i vegetation. Studien till Ebbs et al. (1998) visar att absorption av U till rötter är beroende av valenstillståndet och egenskaperna till jordmånen. Studien visar också att växter lättast tog upp U i form av komplexet uranyl (UO_2^{2+}) när jordmånens pH var mellan 5.0-5.5. Flera studier rapporterar om att innehållet av U i växter var högst i växters rötter i jämförelse med andra delar av växten (AECL, 1980; Boghi, Roose, och Kirk, 2018). Något som Mitchell et al. (2013) menar vara pH-beroende där translokation av U från rot till bär är störst vid lägre pH i jordmånen. I naturen dominerar U⁴⁺ och U⁶⁺ under respektive reducerande och oxiderande tillstånd (Bird, 2012). Studien till Dong et al. (2006) upplyser om vikten av jordmånens innehåll av Ca, där stabilt U⁴⁺ kan oxidera till den mer mobila formen U6+. Världens genomsnittskoncentration i jordmånen av 238U är 3 mg/kg (Choppin et al., 2013). Förekomsten av ²³⁸U i jordmånen är cirka en tredjedel av förekomsten till ²³²Th, men på grund av den höga specifika aktiviteten till ²³⁸U vill den totala aktivitetskoncentrationen vara likvärdig; 41 Bq/kg för ²³²Th och 37 Bq/kg för ²³⁸U (Choppin et al., 2013).

Världens genomsnittskoncentration av ²³²Th i berggrunden är 10 mg/kg (Choppin et al., 2013). Torium-232 förekommer i flera mineralkomplex som granit och monazite, med valenstillstånd (4+) och är väldigt lite mobilt i normala pH-förhållanden (IAEA, 2009b). I studien till Popic et al. (2020) visas att överföring av ²³²Th från jordmån till vegetation är väldigt liten, något som antas bero på att den största delen av ²³²Th var starkt bundet i mineralkomplex.

Radium är moderat löslig och biotillgänglig i jordmånen vid naturliga förhållanden (National Research Council (US), 1999). Världens genomsnittsinnehåll av radium-226 (²²⁶Ra) i jordmån är 32 Bq/kg (IAEA, 2014). Radium-228 förekommer i jämförbar koncentration som ²²⁶Ra om än något mer (IAEA, 2010). I luften kan Ra förekomma med en aktivitetskoncentration nere på μ Bq/m³, där kolförbränning, flygaska och damm innehållandes organisk material är bidrag till luftburen Ra (IAEA, 2014). Valenstillståndet till Ra är (2+) och därför uppför sig Ra²⁺ i både vatten och jordmån likt de andra ämnena tillhörande grupp 2 i det periodiska systemet (IAEA, 2014). Radium kan forma olösliga komplex med sulfat, karbonat och kromatsalter. Processer som katjonbyteskapaciteten i jordmånen spelar stor roll för mobiliteten till Ra, då Ra²⁺ konkurrerar om adsorptionsplatser med de andra ämnena i grupp 2. Om jordmånen är rik på joner, från exempelvis gödsel eller kalk alternativt till högt eller lågt pH-värde, tävlar näringsämnena om platserna på växten vilket kan minska upptaget av Ra²⁺ (IAEA, 2014). Upptaget av Ra i växter är därför, likt U beroende av jordmånens innehåll av andra joner som Ca²⁺. Det är däremot behov för mer studier om transporten av Ra från jordmån till vegetation (IAEA, 2009b).

Vid sidan om rotupptag kan även radionuklider deponera på vegetationens yta. Studier som avhandlar deponering av radionuklider på vegetation fokuserar huvudsakligen på konstgjorda radionuklider, där resultaten visar att jordpartiklar kan bidra med signifikanta koncentrationer (Oughton och Day, 1993; Hinton et al., 1995; Cook, McGonigle, och Inouye, 2009). Jordpartiklar kan överföras från mark till vegetation genom vind, regn, djur som betar och andra

fysiska processer (IAEA, 2010). Whicker et al. (2021) etablerar flera faktorer som påverkar frekvensen och varaktigheten av transporten av jordpartiklar till vegetation. Där klimatförhållanden som vindhastighet och nederbörd är huvudorsaker till följd av strukturen på vegetationen, jordkaraktärer, storlek på jordpartikel, topografi, eventuell agrikultur/jordbruk och andra störningar som gör jordmånen mer exponerad. Studier som dessa poängterar viktigheten av forskning på alla möjliga överföringar av radionuklider från jordmån till vegetation, och för närvarande saknas det studier på deponering av de naturligt förekommande radionuklider från jordmån till växt handlar uteslutande om rotupptag (IAEA, 2009b).

Överföringen av radionuklider från jordmån till växter estimeras vanligtvis enligt en väletablerad parameter inom radioekologi som kallas transferfaktor (TF) (IAEA, 2010; Higley, 2010). Definitionen av TF är enligt IAEA (2010) koncentrationen av en radionuklid i vegetation dividerad på koncentrationen av radionukliden i jordmånen. Transferfaktorn sammanfattar alla de komplexa faktorerna som spelar in i förhållandet mellan jordmån och vegetation. Enligt IAEA (2010) styrs TF huvudsakligen av rotupptaget av radionukliderna eftersom andra överföringar, som bladupptag och deponering oftast inte är i betydande mängd. IAEA (2010) har samlat över 1100 studier på transferfaktorer av radionuklider från jordmån till växter och presenterar rekommenderade TF-värden för olika växtarter. Resultaten visar att TF för de mer mobila radionukliderna U och Ra oftast är cirka 10 gånger högre än för den mindre mobila radionukliden Th.

Det är flera osäkerheter till TF, bland annat att parametern uteslutande visar till rotupptaget av radionuklider och negligerar andra möjliga överföringar. I tillägg uppges det i definitionen att TF bara kan appliceras i miljöer där jämnvikt i överföringen av radionuklider från jordmån till biota uppstått (IAEA, 2010). Sådan jämnvikt kan exempelvis bildas vid kontrollerade utsläpp av konstgjorda radionuklider från kärnkraftverk. Det är heller inte rekommenderat att använda TF i naturliga ekosystem där radionuklider är heterogent fördelade (IAEA, 2010). I definitionen till transferfaktorn föreligger en standardiserad provtagning i förhållande till jordmånens skikt alternativt rotdjup. Det är emellertid flera osäkerheter knutet till provinsamling, provpreparering och analysteknik, i tillägg till de naturliga variationerna i miljön där jordmånstyp, växtsort, växtstadium och radionuklid som kan orsaka variation i TF-värdet (IAEA, 2010). Att estimera hur stor andel av den totala koncentrationen av naturligt förekommande radionuklider i vegetation som beror på jorddeponering kan därför bidra till att minska osäkerheten vid användningen av TF för NORM i områden med förhöjda nivåer.

1.1 Hypoteser och studiemål

Studiemål

Det övergripande målet med denna studie var att undersöka hur stor andel av den totala koncentrationen av de naturligt förekommande radionukliderna ²³²Th, ²³⁸U, ²²⁸Ra och ²²⁶Ra i bär och tillhörande bladverk som beror på deponering av jordpartiklar. Detta adresserades genom att kvantifiera spårmetallerna Sc och Ti, två vanliga jordmineraler som i liten grad tas upp av rotsystemet till växter. Andelen deponerade radionuklider användes för att kunna korrigera transferfaktorn, ett vanligt verktyg för att beräkna överföring mellan jordmån och växt, men som inte skiljer på andel deponerat från andelen upptaget från rotsystemet. Baserat på litteratur om transferfaktorer i jord, bär och tillhörande bladverk, hypotiserar denna studien att;

Hypoteser

- Hypotes H01: Koncentrationen av ²³⁸U, ²³²Th, ²²⁸Ra och ²²⁶Ra som deponerat på bär och tillhörande blad genom resuspenderade jordpartiklar är inte signifikant mätbar och kan därför negligeras vid beräkning av transferfaktor.
- Hypotes H02: Det är ingen skillnad mellan andelen deponerade naturligt förekommande radionuklider i bär jämfört med tillhörande bladverk.

2. Metod och material

2.1 Beskrivning av studieområde

Provinsamling genomfördes vid två områden i Norge; Fensfältet, Nome och Orrefjell, Salangen. Båda områdena har tidigare dokumenterats med förhöjda nivåer av NORM, där Fensfältet är ett område dominerat av ²³²Th (Dahlgren, 1983; Popic et al., 2011) och Orrefjell är ett område rikt på ²³⁸U (Maina, 2018; Thørring et al, 2020). Följande avsnitt beskriver studieområdena.

2.1.1 Studieområde 1: Fensfältet, Nome

Fensfältet, beläget i sydöstra Norge (Figur 2) är ett område beståendes av intrusiva bergarter som bildats i följd av en aktiv kalkstensvulkan för 580 miljoner år sedan (Dahlgren, 1993). Geologin i området beskrevs för första gången av Waldemar Christofer Brøgger i 1921 och har sedan dess studerats i detalj (Brøgger, 1921; Dahlgren, 1983; Ramberg, 1973; Cagno et al., 2020). Sæther (1947) beskriver både de hydrotermala- och metasomatiska processer, också kallat "Fenittisiering", som bildade de mest förekommande bergarterna rödbergitt (hematit-kalcit-karbonatit) och rauhaugitt (dolomit-karbonatit) i området. Processer som gjort att bergarterna innehåller förhöjda nivåer av sällsynta jordartsmetaller och radioaktiva ämnen, där framför allt ²³²Th och dess döttrar dominerar (Dietzel et al., 2019). Fenittisering bidrar också till de höga innehållet av kalcium (Ca) och järn (Fe), där Fe är orsaken till den karakteristiska röda färgen i rödbergitt (Sæther, 1947).

Det har under tidigare århundranden utförts gruvbedrift för utvinning av Fe, niobium (Nb) och vissa sällsynta jordartsmetaller i delar av Fensfältet (Dahlgren, 1993). Gruvbedriften upphörde i slutet på 1960-åren, men gruvorna finns kvar än idag och flera ansamlingar med malmrester från den förflutna gruvbedriften kan observeras i området. Kombinationen av mänsklig aktivitet och de naturliga processerna har resulterat i lokala zoner berikade med både sällsynta jordartsmetaller och radionuklider (Heincke et al., 2008; Popic et al., 2020). Valle (2013) rapporterar om en ²³²Th-koncentration över 26 500 Bq/kg t.v. jord och en ²³⁸U-koncentration på 2160 mg/kg t.v. jord i Fensfältet. Dessa koncentrationer är 650 respektive 58 gånger högre än världens genomsnittsinnehåll på 41 respektive 37 Bq/kg (Choppin et al., 2013). Fensfältet är därför ett intressant område för studier på överföring av naturligt förekommande radionuklider från jordmån till vegetation.

2.1.2 Studieområde 2: Orrefjell, Salangen

Orrefjell ligger beläget i Salangens kommun i Nord-Norge (Figur 3). Fjället är uppbyggt av prekambriska bergarter som mobiliserats av den kaledoniska bergskedjebildningen (Lindahl et al., 1985). Bergarterna består till största del av granitpegmatit och gnejs, tillsammans med granit-, kalk- och glimmerskiffer (Rindstad, 1981). Granit, format av stelnat magma, och skiffer format i reducerande miljöer är bergarter som visats innehålla förhöjda koncentrationer av radionuklider som uran (Choppin et al., 2013; Swanson 1961). I oxiderande tillstånd bildas hexavalent uran (U⁶⁺), som komplexbinder med karbonater och sulfater och är mobilt i lösning

(Choppin et al., 2013). Magmatiska vätskor som penetrerat sprickor och porer i bergen har transporterat U till fjällets ytor (Lindahl et al., 1985). Vid reducerande tillstånd bildar tetravalent uran som är mindre lösligt och därför mindre mobilt, något som gör att lokala områden med reducerande egenskaper har ackumulerat uran.

Under 1950-talet upptäcktes uranförekomsten i Orrefjell av Henry Lund från Salangen, och under 60-, 70- och 80-talet dokumenterades den av Norges Geologiske Undersøkelse (NGU) (Rindstad, 1981; Lindahl et al. 1985). Genom radiometriska helikoptermätningar har kraftiga lokala uran-anomalier observerats, med aktiviteter upp till 18 gånger bakgrundsnivån (Rindstad, 1981). Thørring et al. (2020) rapporterar om lokala aktiviteter av ²³⁸U i jordmånen upp till 2000 Bq/kg t.v. jord, 54 gånger så hög aktivitetskoncentration än världens genomsnittsinnehåll på 37 Bq/kg (Choppin et al., 2013). Fjället är ett av Norges största uranavlagringar, men har inte blivit exploaterat för uran. Naturen framstår som orörd, och området används för närvarande som betesmark för djur under sommarhalvåret och för mänsklig rekreation. Därför är Orrefjell ett intressant oexploaterat område där överföringen av naturligt förekommande radionuklider som ²³⁸U från jordmån till vegetation kan studeras.

2.2 Fältarbete

Följande avsnitt beskriver fältarbete utfört under tre tillfällen i 2020. Vid två tillfällen samlades smultron och tillhörande bladverk in från Fensfältet. Vid ett tillfälle samlades blåbär och tillhörande blåbärsris in från Orrefjell. Fältarbetet följde huvudsakligen standardiserad provintagningsmetod för analys av radionuklider i ekosystemet i nordiska länder (Taipale, 1985) i tillägg till internationell standard (Barnekow et al., 2019), med undantag beskrivet nedan.

2.2.1 Fältarbete i Fensfältet, Nome

Första fältarbetet i Fensfältet utfördes 23. juni 2020 vid station 1-4 (Figur 2). Dagarna innan fältarbetet utsattes området för regn med vind uppemot 7 m/s (Yr.no, u.å.), något som kan orsakat att jordpartiklar resuspenderat på vegetation. Smultron och jord togs vid stationer i Grubehaugen och närmare Fensgruvorna i Fensfält enligt noterade koordinater (Tabell 1). För att inte eventuella deponerade jordpartiklar skulle falla från bären vid provbehandling, plockades de i samma provbehållare som vidare provbehandling utfördes i. Därför plockades bären också varsamt för att undgå att gräs eller annan vegetation skulle följa med proverna. De flesta bären som plockades var mogna, men några var omogna och delvis vita och bären separerades inte före placering i provbehållarna.

Jordprover togs med hjälp av en jordborr med en inre diameter på 6 cm, från det översta skiktet i jordmånen på ett djup av 0-3 cm under bärets växtområde. Detta gjordes för att jordproverna skulle representera den jord som smultron upptar näring ifrån (Yokoya et al., 2017). Vegetationen på markytan togs bort innan jordprovet togs. Tre stycken jordprov togs från området där smultronen plockades, som "samlat jordprov" enligt de internationella riktlinjerna för provtagning (Barnekow et al., 2019). Jordproverna samlades i varsina zip-påsar. På grund av olika tillgång på provmaterial skiljde sig storleken på stationerna något åt. Proverna från station 1 och 2 plockades inom ett område på cirka 5x5 meter, där station 1 innehöll lokala områden med exponerad jord och lite gräs i jämförelse med station 2 som var täkt med mer gräs och annat organiskt material. Station 4 var placerat på en mindre stenhäll med lite innehåll av jord, gräs och annat organiskt material. Smultron plockades från små hyllor på stenhällen och jordproverna togs från ett område på cirka 3x3 meter. Station 3 var täckt med vegetation och smultronen var gömda under bladverk, provmaterialen därifrån plockades inom ett område på cirka 10x10 meter.



Figur 2: Karta över delar av Fensfältet där station 1, 2, 3 och 4 markerats enligt koordinaterna i Tabell 1 (Bakgrundskarta: Norgeskart.no, 2021; Karta över Norge hämtat från Google maps (2021)).

Vid det andra fältarbetet i Fensfältet som utfördes 07. Juli 2020 plockades smultronblad. Två provbehållare med smultronblad fylldes, och bladen plockades från hela området vid station 1 och 2 (Tabell 1), inte från varje enskild station. Resterande provinsamling följde samma tillvägagångssätt som vid första fältarbetet.

Station	Datum	Klockslag	Koordinater (DMS)	Provtyp
1	2020-06-23	10:45	59°16'26.3"N 9°18'26.4"E	Jord, Bär Fragaria vesca
1	2020-07-09	12:30	59°16'26.3"N 9°18'26.4"E	Blad
2	2020-06-23	10:15	59°16'26.3"N 9°18'26.6"E	Jord, Bär Fragaria vesca
2	2020-07-09	12:30	59°16'26.3"N 9°18'26.6"E	Blad
3	2020-06-23	10:00	59°16'23.0"N 9°18'29.5"E	Jord, Bär Fragaria vesca
4	2020-06-23	13:00	59°16'33.7"N 9°18'12.8"E	Jord, Bär Fragaria vesca

Tabell 1: Provtagningskoordinater och tidpunkt. Karta över stationerna visas i Figur 2.

2.2.2 Fältarbete i Orrefjell, Salangen

Den 10. september 2020 genomfördes fältarbetet vid Orrefjell. Prover med bär, blad och jord samlades in från stationer vid fjällets västra sida (Figur 3) enligt noterade koordinater (Tabell 2). Flera prover av bär, blad och svamp plockades under fältarbetet, men mätresultaten skulle senare visa att inte alla prover innehöll mätbara kvantiteter av de naturligt förekommande radionukliderna och/eller spårmetallerna Sc och Ti. Med resultaten som grundlag valdes station 5 som provtagningsområde för bär, blad och jord, i tillägg till station 6, 7 och 8 för enbart jord.



Figur 3: Karta över Orrefjell där station 5, 6, 7 och 8 med koordinater enligt Tabell 2 markerats (Bakgrundskarta: Norgeskart.no, 2021, Karta över Norge hämtat från Google maps, (2021)).

Blåbär och blåbärsris plockades i varsina plasthinkar. För att fylla plasthinkarna plockades proverna i ett område på 10x10 meter. Tre stycken jordprov togs inom samma radie med hjälp av en jordborr på ett djup av 0-3 cm som samlat jordprov enligt de internationella riktlinjerna för provtagning (Barnekow et al., 2019). Vid insamling av jord delades proverna längst jordborrens diameter till två lika stora halva cylinderformer. För att undgå insamling av för stor mängd provmaterial blev enbart ena halvdelen av jordprovet insamlat. Jordproverna från station 6, 7 och 8 (Tabell 2) togs enligt samma metod. Under fältarbetet kom lättare regnskurar och vindbyar, men jordmånen var torr och samtliga blåbär var mogna.

Station	Datum	Klockslag	Koordinater (DMS)	Provtyp
5	2020-09-10	12.00	68°53'32.7"N 18°05'44.8"E	Jord, Bär Vaccinium myrtillus
5	2020-09-10	11:45	68°53'32.7"N 18°05'44.8"E	Blåbärsris
6	2020-09-10	09:50	68°53'28.5"N 18°05'44.0"E	Jord
7	2020-09-10	14:30	68°53'11.6"N 18°06'06.8"E	Jord
8	2020-09-10	15:00	68°53'08.3"N 18°06'13.7"E	Jord

Tabell 2: Provtagningskoordinater och tidpunkt. Karta över stationen visas i Figur 3.

2.3 Kvantitativ analys

Flera analystekniker användes för att bestämma koncentration eller aktivitet till radionukliderna och spårmetallerna i denna studie. Enligt studien till Hou och Roos (2008) bestäms radionuklider med lång halveringstid bäst med spektrometiska analystekniker, och radionuklider med kort halveringstid bestäms bäst med radiometriska metoder. I denna studie användes gammaspektrometri för att bestämma aktivitetskoncentrationen till ²²⁸Ra, och med induktivt kopplat plasma-massa spektrometri (ICP-MS) bestämdes koncentrationen till ²³⁸U, ²³²Th och ²²⁶Ra, i tillägg till spårmetallerna arsenik (As), kadmium (Cd) och bly (Pb).

En del av provprepareringen utfördes vid laboratoriet till DSA Tromsø (för proverna från Orrefjell) och DSA Østerås (för proverna från Fensfältet), därför skiljde sig provprepareringen något åt mellan laboratorierna. Vegetationsproverna från Orrefjell rensades från oönskat material som exempelvis gräs, därefter torkades dem i ett torkskåp (Termaks) på 105 °C i ett dygn och homogeniserades i en blandare. Jordproverna siktades genom en 2 mm sikt och homogeniserades med en sked. Vegetationsproverna från Fensfältet frystorkades i en Alpha 1-4 från Christ, och jordproverna torkades i torkskåp (Termaks) i 80 °C i tre dygn i samma behållare som de plockats i. Inget vegetationsprov blev tvättat för att behålla eventuella jordpartiklar som resuspenderat. För att uppnå sekulär likavikt mellan morder- och dotterisotoperna omslöts samtliga provbehållare i aluminiumfolie och lagrades i minst 3 veckor innan analys med gammaspektrometri. För detaljer kring provpreparering, instrument och instrumentala inställningar hänvisas till Tabell A1 i appendix A.

2.3.1 Gammaspektrometri

Gammaspektrometri är en analysteknik som mäter gammastrålning från radioaktiva källor (Joel et al., 2016). En High Purity Germanium (HPGe) detektor från Mirion Technologies Canberra användes för att bestämma aktivitetskoncentrationen till ²²⁸Ra i samtliga bär-, blad- och jordprov. En HPGe-detektor utnyttjar ledaregenskaperna till halvmetallen germanium (Ge) för att bestämma intensitet och energi till gammastrålningen. När joniserande gammastrålning träffar en germaniumkristall i en HPGe-detektor skapas de fria elektronerna som krävs för att leda ström, ström som blir proportionell till gammastrålningens energi (Lind och Maset-Reinoso, 2020). Hur effektivit instrumentet är till att detektera gammastrålningen beror på flera faktorer som detektorns form och storlek, i tillägg till energin till gammastrålningen. Effektivitet mättes strålningen från en certifierad kalibreringsstandard innehållandes en blandning av radionuklider med känd aktivitet. Efter att bakgrundsstrålningen är subtraherad och aktiviteten är korrigerad med radionuklidens halveringstid räknades effektiviteten enligt framgångsättet beskrivet av Alnour et al. (2014).

För att skydda provet mot bakgrundsstrålning är detektorn omsluten av ett tjockt lager med bly (Lindberg, 2018). Flytande nitrogen håller temperaturen till germaniumkristallen så låg att inga elektroner får energi till att excitera i frånvaro av radioaktiv strålning (Bargholtz et al., 1997). Bakgrundsstrålning är signaler som träffar detektorn från bland annat kosmisk strålning, elektriska signaler och så kallad Compton strålning. Om gammastrålningen (fotonen) från den

radioaktiva källan förlorar en del av sin energi till en elektron i germaniumkristallen, sprids fotonen och elektronen i en annan vinkel än den inkommande (Lehto, 2016). Fördelningen av energin mellan fotonen och elektronen bidrar till bakgrundsstrålning som kallas Compton kontinuum. Bakgrundskorrektion måste därför utföras för att undgå falskt positiva mätresultat. Bakgrundskorrektion utfördes av DSA enligt metoden till Mauring et al. (2014). Energin i gammastrålningen till ²²⁸Ra är så låg att det är svårt att urskilja från eventuellt hög Compton kontinuum, därför mäts aktiviteten av dotterisotopen aktinium-228 (²²⁸Ac) som är i likavikt med ²²⁸Ra (Hult et al., 2019). Aktiviteten till ²²⁸Ac bestämdes på energilinjen 911 keV.

2.3.2 Provpreparering för analys med ICP-MS

Efter analys i HPGe transporterades proverna från DSA till NMBU för provpreparering och analys med ICP-MS. Samtliga jordprover pulveriserades med hjälp av en kvartsmortel. För att undgå krysskontaminering tvättades morteln med etanol (70% vv) samt borstades med pensel och blev dammsugen mellan varje prov. Från varje jordprov vägdes tre replikat på 0,25 \pm 0,05 gram upp i varsitt teflonrör. Tre certifierade referensmaterial (CRM); IAEA-448, NCSDC73324 och NCSZC73007 (IAEA 2009a; NACIS, 2004; NACIS, 2003) vägdes upp i varsitt teflonrör. Vegetationsproverna homogeniserades med en mortel utanpå en zip-påse. Från varje bladprov vägdes tre replikat på 0,25 \pm 0,05 gram upp och från bärproverna vägdes tre replikat på 0,35 \pm 0,05 gram upp i varsitt teflonrör. Tre CRM; SRM1570a (bladspenat), NCSZC73013 (spenat) och NCSZC73014 (te) vägdes upp i varsitt teflonrör (NIST, 2008; NACIS, 2010). I varje teflonrör tillsattes 5 mL HNO₃ och 2,5 mL destillerat och avjoniserat vatten (Milli-Q-vatten).

Med en Milestone UltraWave utfördes mikrovågsassisterad nedbrytning av samtliga bär-, bladoch jordprover. Processen kallas uppslutning, där syra och mikrovågor bryter ned de fasta proverna till en homogen lösning med lågt innehåll av organiskt material (Jensen, 2016). Vattenbadet som omsluter teflonrören i UltraWave bestod av 130 mL Milli-Q-vatten och 5 mL HNO₃. När mikrovågor tränger igenom lösningen skapar de polara och dipolara molekylerna en jonisk migration och dipolrotation efter det elektriska fältet. Friktion mellan molekylerna ger friktionsvärme och en snabb temperaturökning. Vattenbad användes för att få en jämn temperaturökning i varje provrör. Proverna uppslöts i 40 minuter med en gradvis ökning av temperaturen till 260 grader och ett tryck på 80 bar. Maxtemperaturen på 260 grader varade i 10 minuter före nedkylning.

Enligt studierna till Melgård (2017) kan ²²⁶Ra vara så hårt komplexbundet till sulfater i lösningen att det krävs en kombination av fosforsyra (H₃PO₄), salpetersyra (HNO₃) och fluorborsyra (HBF₃) för att bryta ned proverna till närmast 100%. Därför uppslöts ytterligare tre replikat av alla jordprover med 4 mL H₃PO₄, 2 mL HNO₃, 2 mL HBF₄. För denna nedbrytning användes ett program i UltraWAVE där temperaturen ökas snabbare till 260 grader och håller sig konstant på maxtemperaturen i 40 minuter innan avkylning. Efter uppslutningen fördes samtliga prover över till varsitt certifugrör och förtunnades till 50 mL med Milli-Q-vatten. Proverna som bröts ned med syreblandning förtunnades ytterligare genom att pipettera ut 1 mL till ett nytt centrifugrör som fylldes till 10 mL med Milli-Q-vatten. Förtunning gjordes för att inte instrumentet skulle tätas vid eventuellt för koncentrerade prover.

2.3.3 Induktivt kopplat plasma mass spektrometri (ICP-MS)

Induktivt kopplat plasma - mass spektrometri (ICP-MS) separerar isotoper i en provlösning genom att använda förhållandet mellan isotopens massa och laddning (m/z) (Jensen, 2020). De instrumentala betingelserna bestäms i instrumentets tillhörande dataprogram, och presenteras i Tabell B1 i appendix B.

En Agilent ICP-MS QQQ – 8900 (Agilent Technologies) användes för kvantifiering av ²³⁸U, ²³²Th, ²²⁶Ra, As, Pb, Cd, Sc och Ti. Joniseringskällan i en Agilent ICP-MS QQQ – 8900 består av delvis joniserad argon gas som bildar ett plasma med en temperatur på cirka 6000 °C. I plasman evaporeras, atomiseras och joniseras provet. Med hjälp av jonlinser blir de laddade jonerna separerade från fotoner och de neutrala atomerna. Om de neutrala atomerna fäster sig på känsliga delar i instrumentet kan drift skapas, medan fotonerna kan skapa hög bakgrund och därmed högre detektionsgräns (PerkinElmer, 2001). Drift i instrumentet korrigerades med hjälp av en standardlösning med känt innehåll som analyserades regelbundet genom hela analysen¹. Standardlösningen tillagades enligt Tabell B2 och B2 i appendix B. Effekter i instrumentet kontrollerades med hjälp av en online internstandard med känt innehåll som injicerades samtidigt som proverna. Internstandarden innehöll 20 µg/L rodium (Rh) i 2% (vv) HNO₃ och 30% (vv) etanol. Med ett blandningsförhållande på 1 del internstandard och 16 delar provlösning blir koncentrationen av Rh cirka 1,2 µg/L in i instrumentet.

Agilent ICP-MS QQQ – 8900 har en masspektrometer innehållandes två kvadropoler och en oktapol. Kvadropolerna filtrerar ut önskat förhållande mellan m/z och oktapolen avlägsnar interferenser med hjälp av en kollisionsgas eller en reaktionsgas. Beroendes på isotopen som bestämdes och möjliga interfererande ämnen användes antingen kollisionsgasen helium (He) eller reaktionsgaserna oxygen (O₂) eller ammoniak (NH₃). En reaktionsgas reagerar med antingen interferenserna eller analyten och ändrar förhållandet mellan m/z, vilket gör det möjligt för den andra kvadropolen att selektera ut nytt önskat förhållande mellan m/z. En kollisionsgas kolliderar med större molekyler och minskar dess kinetiska energi vilket reducerar deras hastighet (Jensen, 2020). Instrumentets detektor mäter signalens intensitet mot en kalibreringskurva med kända koncentrationer för att konvertera intensiteten till koncentration (PerkinElmer, 2001). Kalibreringskurvan bestod av en kalibreringsblank och två standardlösningar, för med detaljer kring innehåll i standardlösningar hänvisas till Tabell B2 och B3 i appendix B.

För att undgå kontaminering i instrumentet fick en tvätt-lösning först genomgå instrumentet beståendes av samma syra eller syreblandning som proverna innehöll. I tillägg användes en tvätt-lösning som tvättade sonden som automatiskt suger upp proverna för att undgå krysskontaminering. Denna tvättlösning bestod av cirka 5% HNO₃. Cirka 5% på grund av att HNO₃ tillsattes allteftersom analysen pågick. En bärlösning beståendes av 5% HNO₃ användes för att upprätthålla en jämn ström av provlösningarna in i instrumentet. En tuningslösning beståendes av cirka 0,6 µg/L litium (Li), kobolt (Co), yttrium (Y), indium (In), cerium (Ce), tallium (Tl), Th och U i 2% HNO₃ fick genomgå instrumentet för att avlägsna eventuell oxygen.

¹ Drift i instrumentet beräknades med ekvation (5) i appendix C.

ICP-MS metodens precision bestämdes genom provreplikatens relativa standardavvik (RSD)². Metodens noggrannhet värderades utifrån CRM, där avvik från det certifierade värdet beräknades genom bias³. Inget krav på metodens precision eller noggrannhet sattes. Instrumentets precision kontrollerades genom att analysera varje prov tre gånger. En husstandard kontrollerade noggrannheten i kalibreringen av instrumentet⁴. Genom att analysera blankprover kunde bakgrundsnivåer och kontaminering i proverna upptäckas, i tillägg används blankproverna till att bestämma detektionsgräns (LOD) och kvantifieringsgräns (LOQ)⁵. LOD är den lägsta koncentrationen som ICP-MS kan utskilja från blankproverna och därmed detektera, och LOQ är den lägsta koncentrationen som kan kvantifieras med tillfredställande säkerhet.

2.4 Dataformatering och statistisk analys

Följande avsnitt beskriver dataformatering och de statistiska analyserna som utfördes med mätresultaten från ICP-MS och HPGe. Samtliga beräkningar gjordes i Microsoft Excel.

2.4.1 Dataformatering av mätresultat

Agilent ICP-MS QQQ – 8900s tillhörande data program Masshunter Software presenterade analysresultaten i µg/L och counts per sekund (CPS). CPS är antal signaler per sekund som instrumentets detektor registrerar. Vid konvertering från µg/L (w/V) till mg/kg (w/w) användes invikten av provmaterialet^{6,7}. Den specifika aktiviteten på 4,06 Bq/mg för ²³²Th och 12,35 Bq/mg för ²³⁸U användes för att konvertera koncentration [mg/kg] till aktivitetskoncentration [Bq/kg] (Choppin et al., 2013). För mätresultat i mg/kg hänvisas till Tabell F1 och F2 i appendix F. Gammaspektrum genererades av HPGe detektorns tillhörande dataprogram Ortec Maestro. Tillsammans med CPS och detektorns effektivitet beräknades aktivitetskoncentrationen till radionukliderna utfört av DSA.

2.4.2 Transferfaktor

Transferfaktor beräknades för radionukliderna ²³²Th, ²³⁸U, ²²⁶Ra och ²²⁸Ra i både bär och tillhörande bladverk med koncentration [mg/kg] eller aktivitet [Bq/kg] i torrvikt, där koncentrationen eller aktiviteten till en radionuklid i växten (bär eller blad) på torrviktsbasis divideras på koncentrationen eller aktiviteten för samma radionuklid i jorden på torrviktsbasis enligt definitionen till IAEA (2010):

(1)
$$TF_{[Aktivitet]} = \frac{\frac{Bq}{kg}(l \ torrvikt \ v\ddot{a}xt)}{\frac{Bq}{kg}(l \ torrvikt \ jord)}$$

² Ekvation (6) i appendix C användes för uträkning av RSD.

³ Ekvation (7) i appendix C användes för uberäkning av bias.

⁴ Resultat av husstandard presenteras till Tabell B4 i appendix B.

⁵ Ekvation (8) och (9) i appendix C användes uträkning av LOD och LOQ.

⁶ För att konvertera μ g/L till mg/kg användes ekvation (10) i appendix C.

⁷ Mätresultatet för ²²⁶Ra konverterades från pg/L till Bq/kg enligt formel (11) i appendix C.

(2)
$$TF_{[Koncentration]} = \frac{\frac{g}{kg}(l \ torrvikt \ v\ddot{a}xt)}{\frac{g}{kg}(l \ torrvikt \ jord)}$$

2.4.3 Jorddeponeringsestimat

För att estimera andelen av den totala aktivitetskoncentrationen [Bq/kg] naturligt förekommande radionuklider i vegetationen som beror på deponering användes jorddeponeringsestimat med utgångspunkt i metoden till Hinton et al. (1995). Spårmetallerna Sc och Ti användes som jorddeponeringsestimat eftersom båda metallerna är svårt lösliga och stationära i jordmånen. I tillägg saknar de någon känd biologisk roll i vegetation (Friberg, 2012; Kabata-Pendias, 2004). Därmed antogs 0% rotupptag av Sc och Ti. Dessutom kan Sc och Ti, med hjälp av sensitiva analystekniker kvantifieras i väldigt låga koncentrationer (Oughton och Day, 1993).

Mängden jordpartiklar på bär och tillhörande bladverk beräknades enligt ekvation (3). Där koncentrationen av Sc och Ti bestämdes i varje bär- och bladprov för att sedan divideras på koncentrationen av samma ämne i tillhörande jordprov. Detta för att estimera antal gram jord på gram växt på torrviktsbasis:

(3)
$$\frac{\frac{g \, Sc}{kg} (l \, torrvikt \, v \ddot{a}xt)}{\frac{g \, Sc}{kg} (l \, torrvikt \, jord)} = \frac{g \, jord}{g \, torkad \, v \ddot{a}xt}$$

Koncentrationen [Bq/kg eller mg/kg] av ²³²Th, ²³⁸U, ²²⁶Ra och ²²⁸Ra bestämdes i varje bär-, blad-, och jordprov från varje station. Det förutsattes att jordpartiklarna som resuspenderat på vegetationsproverna kom från samma station. Detta förutsattes för att kunna beräkna mängden radionuklider i de gram jord på växt som estimerats med ekvation (3). Resultatet från ekvation (3) multiplicerades med mängden av radionukliden i tillhörande jordprov. Följande exempel använder aktivitetskoncentrationen till ²²⁸Ra:

(4)
$$\frac{g \text{ jord}}{g \text{ torkad växt}} \ge \frac{Bq \frac{228}{88}Ra}{kg \text{ jord}} = \frac{Bq \frac{228}{88}Ra}{kg \text{ torkad växt}}$$

Resultaten från ekvation (4) visar aktiviteten av ²²⁸Ra i jordpartiklarna som deponerat på vegetationen. Genom att dividera resultatet på den totala aktivitetskoncentrationen av ²²⁸Ra i vegetationsprovet och sedan multiplicera med 100 visas hur stor andel av den totala aktiviteten på växten som beror på deponering av jord.

Små avvik i mätresultaten kan orsaka differens i beräkningen av jorddeponering. För att ta hänsyn till eventuell differens användes genomsnittet av mätresultaten beräknade utifrån Sc och Ti. Andelen av den totala koncentrationen av radionukliderna på vegetationen som beror på deponering användes för att korrigera transferfaktorn beräknad med ekvation (1) eller (2).

2.4.4 Linjär regression och korrelationsanalys

Pearsons korrelationskoefficient (r) användes för att analysera riktningen och styrkan i det linjära sambandet mellan två kontinuerliga numeriska variabler i ett datasätt. Det linjära sambandet analyserades mellan jordöverföringsestimat av Sc och Ti genererat från ekvation (3). Pearsons korrelationskoefficient varierar mellan -1 och 1. Ett värde av 1 är variationen till y beskrivet av x, ett värde av 0 betyder att y och x inte korrelerar alls, och ett negativt värde beskrives minskningen i y av ökningen av x. En tumregel vid korrelationsanalys är att ett värde av r>0,7 visar en stark korrelation, r<0,3 är en svag korrelation, och där emellan är korrelationen moderat (Ratner, 2009). Korrelationskoefficienten antyder ingenting om variablernas kausalitet, att exempelvis mätresultatet från Sc påverkas av mätresultatet av Ti (Frisk, 2018). Kravet på korrelationskoefficienten blev satt till 0,82 på grundlag av att studien till Hinton et al (1995) visar att jorddeponeringsestimat beräknat med Sc och Ti inte gav någon signifikant skillnad med en r=0,82.

För att uttrycka sambandet mellan jordöverföringsestimat beräknat med Sc och Ti användes linjär regressionsanalys, vilket innebär att sambandet mellan en beroende variabel (Y) och en oberoende variabel (X) beskrivs enligt y=ax+b (Næs, 2010).

3. Resultat och diskussion

3.1 Metodvalidering

För att säkra kvaliteten i metoden till HPGe och ICP-MS användes flera tekniker. I följande avsnitt blir resultaten till valideringen av de olika teknikerna analyserat.

3.1.1 Metodvalidering (HPGe)

Minimala detektionsbara aktiviteten (MDA) av ²²⁸Ra beror på faktorer som mättid, detektortyp, bakgrund och geometri, och varierar därför för varje prov. Beräkningen av MDA utfördes av DSA enligt ISO-standard (ISO 11929:2010), och var mellan 3,2-25 Bq/kg. För tabell över varje detektionsgräns hänvisas till appendix D1 i appendix D.

3.1.2 Metodvalidering (ICP-MS)

Totalt analyserades 18 blankprover för beräkning av LOD och LOQ till vegetation och 12 blankprov för jord, och resultaten presenteras i Tabell 3⁸. Mätresultat under LOQ användes inte för vidare analys. LOQ var högst för samtliga jordprover, där Ti erhöll högst LOQ på 260 mg/kg, vilket är 3300 gånger högre LOQ än till Sc på 0,079 mg/kg. Resultat som kan tyda på att koncentrationen av Ti i blankproverna påverkats av exempelvis laboratorieutrustning (Garçon et al., 2016).

	Bär och blad		Jo	ord
Ämne [mg/kg]	LOD	LOQ	LOD	LOQ
²²⁶ Ra	0,000001	0,0000041	0,000010	0,000049
²³² Th	0,0003	0,00094	0,2	0,78
²³⁸ U	0,0005	0,0017	0,05	0,17
Sc	0,0002	0,00073	0,02	0,079
Ti	0,007	0,022	80	260

Tabell 3: Detektionsgräns (LOD) och kvantifieringsgräns (LOQ) i ICP-MS-analysen. Samtliga i mg/kg.

Tabell 4 visar ett urval av resultat vid värdering av metodens noggrannhet. För fler mätresultat hänvisas till Tabell E1 och Tabell E2 i appendix E. Resultaten för CRM av jord visade på god noggrannhet utan några systematiska fel, med en bias <10% med få avvik. Systematiska fel som kontaminering av laboratorieutrustning kunde därför uteslutas. För analys av bär och blad användes tre CRM; två med spenat och ett med te på grund av brist på CRM för bär och tillhörande bladverk. Koncentrationen av jonerna i CRM för vegetation är lägre än för de i jord, något som kan orsaka stora variationer vid små avvik enligt The Horwitz Trumpet (Thompson, 2004). Då de flesta mätresultat visade en bias på 0% värderas noggrannheten till metoden vara god, med potential till förbättring genom att analysera fler replikat av CRM så att både systematiska och tillfälliga fel kan uteslutas.

⁸ För LOD och LOQ till As, Pb och Cd hänvisas till Tabell D2 i appendix D.

Certifierat referensm	²³² Th [mg/kg]	²³⁸ U [mg/kg]	Ti [g/kg]	
	CRM	$9,1\pm0,7$	$2,2 \pm 0,4$	$20{,}2\pm0{,}5$
Jord	Mätresultat	9,3	2,3	20,4
(NCS DC73325)	Bias [%]	0	0	0
	CRM	$0,1\pm0,19$	$0{,}089 \pm 0{,}011$	-
Те	Mätresultat	0,1	0,15	-
(NCS ZC73013)	Bias [%]	0	73	-
	CRM	$0{,}04\pm0{,}012$	$0,\!010\pm0,\!002$	-
Spenat	Mätresultat	0,04	0,010	-
(NCS ZC73014)	Bias [%]	0	0	-

Tabell 4: Resultat från mätningen av certifierat referensmaterial (CRM) till både jord och vegetation. De grönfärgade cellerna har en bias på 0% och den rödmarkerade cellen har en bias på 73%. Där certifierade värden saknades markeras "-".

Genom att analysera tre replikat från varje prov kunde metodens precision värderas. Variationen i mätresultaten beräknades med det relativa standardavviket (RSD) och resultaten visar en RSD på 1 - >100% (Tabell F1 och Tabell F2 i appendix F), något som avspeglar förekomsten av tillfälliga fel. Tillfälliga fel som kan orsakats av inhomogent provmaterial alternativt ofullständig utlakning av mineraler på grund av för svag syra vid provprepareringen för ICP-MS. För att minska påverkan på enskilda avvikande mätresultat kunde flera replikat från varje prov kvantifieras.

3.1.3 Linjär regression mellan jorddeponeringsestimat från skandium och titan

Korrelationskoefficienten till jordöverföringsestimaten av Sc och Ti var 0,87, beräknad utifrån R^2 genererat av enkel linjär regressionsanalys (Figur 4). Korrelationen värderades därför som stark. Genomsnittet av mätresultaten genererat av Sc och Ti kunde därför användas för beräkning av jordpartiklar deponerat på vegetation.



Figur 4: Den linjära regressionen mellan jorddeponeringsestimat av Sc och Ti. Där Ti = 0,7812(Sc) + 0,0001, enligt y = ax + b.

3.2 Totalkoncentrationer och aktiviteter av radionuklider

Följande avsnitt presenterar aktivitetskoncentrationen av radionukliderna ²³²Th, ²³⁸U, ²²⁸Ra och ²²⁶Ra i jord, bär och tillhörande bladverk från station 1-4 vid Fensfältet och station 5-8 vid Orrefjell. Samtliga mätresultat presenteras i Bq/kg torrvikt (t.v.).

3.2.1 Jordanalys från Fensfältet

Aktivitetskoncentrationen av de bestämda radionukliderna i jordmånen från station 1-4 vid Fensfältet presenteras i Tabell 5. Jordmånens ²³²Th-innehåll var mellan 1462-7142 Bq/kg t.v. jord (Tabell 5), vilket är flera magnituder över världens genomsnittsinnehåll på 41 Bq ²³²Th/kg (Choppin et al., 2013). Enligt norsk lag om miljöförorening är jordproverna att betraktas som radioaktivt avfall, då aktiviteten överstiger gränsvärdet på 1000 Bq/kg (Forurensningsloven, 2010). Detta är resultat som bekräftar studien till Popic et al. (2020) utfört vid samma område, som visar en aktivitetskoncentration mellan 1589-16 516 Bq ²³²Th/kg. Samma studie visar att under 1% av den totala aktivitetskoncentrationen till ²³²Th i jordmånen var mobil. Eftersom den största delen av ²³²Th i jord är adsorberad i olösliga mineralkomplex (Sheppard, 1980), kan det tyda på att ²³²Th inte är särskilt biotillgänglig för vegetation.

Jordmånen vid station 1 innehöll högst aktivitetskoncentration av ²³²Th och jordmånen vid station 4 lägst, med cirka en fjärdedel av aktiviteten i station 1. Resultat som reflekterar en heterogen ²³²Th-fördelning i området, vilket nyligen bekräftades i studien till Haanes och Gjelsvik (2021) och Cagno et al. (2020).

Fen		²³² Th	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra
Station 1	$Genomsnitt \pm SD$	6934 ± 214	154 ± 23	<lod< th=""><th>7370 ± 737</th></lod<>	7370 ± 737
Station 2	$Genomsnitt \pm SD$	5606 ± 717	115 ± 11	<lod< td=""><td>5755 ± 576</td></lod<>	5755 ± 576
Station 3	$Genomsnitt \pm SD$	3887 ± 214	76 ± 25	<lod< td=""><td>3890 ± 389</td></lod<>	3890 ± 389
Station 4	$Genomsnitt \pm SD$	1707 ± 200	102 ± 28	<lod< td=""><td>1790 ± 179</td></lod<>	1790 ± 179
Totalt: Station 1-4	Genomsnitt ± SD	4535 ± 2034	113 ± 34	<lod< td=""><td>4701 ± 2194</td></lod<>	4701 ± 2194
	Median	4534	109		4525
	Range	1462-7142	53-180		1570-7970

Tabell 5: Aktivitetskoncentrationen av radionuklider i jordmån [Bq/kg]. Tabellen visar genomsnitt ± SD för station 1-4 i tillägg till median och range för samtliga stationer.

Innehållet av ²²⁸Ra i jordmånen från de fyra stationerna följde liknande trend och aktivitetskoncentration som ²³²Th, där station 1 visade högst aktivitet och station 4 lägst. Aktivitetskoncentrationen av ²²⁸Ra var mellan 1570-7970 Bq/kg t.v. jord. En aktivitet, som i likhet med ²³²Th överstiger gränsvärdet i norsk lag om miljöförorening på 1000 Bq/kg (Forurensningsloven, 2010). Medianen på 4525 Bq ²²⁸Ra/kg t.v. jord var något lägre än genomsnittet på 4701 Bq ²²⁸Ra/kg t.v. jord, vilket troligtvis beror på att station 1-3 innehöll mellan 2-4 gånger högre ²²⁸Ra än station 4. Resultat som visar en heterogen ²²⁸Ra-fördelning i likhet till moderisotopen ²³²Th. Studien till Popic et al. (2020) rapporterar om en aktivitetskoncentration av ²²⁸Ra mellan 134-7300 Bq/kg t.v. jord, en median på 1684 och 1264 Bq/kg t.v. jord från Fen respektive Bolladalen. Vilket är något lägre än medianen i denna studien där medianen låg på 4525 Bq/kg t.v. jord.

Jordmånens ²³⁸U-innehåll var mellan 53-180 Bq/kg t.v. jord, en aktivitetskoncentration markant lägre än ²³²Th, men över världens genomsnittskoncentration på 37 Bq/kg (Choppin et al., 2013). Innehållet av ²³⁸U i samtliga stationer var under norsk lag om miljöförorening på 1000 Bq/kg (Forurensningsloven, 2010). Resultaten visar en heterogen ²³⁸U-fördelning i jordmånen från Fensfältet, i något mindre grad än ²³²Th-fördelningen. Resultat som stämmer överens med tidigare studie utfört i området av Valle (2013), som rapporterar ett ²³⁸U innehåll på 2,5-870 Bq/kg i t.v. jord från samma områden. Att koncentrationen till ²³⁸U varierar i större grad i studien till Valle i jämförelse med mätresultaten från denna studie beror med stor sannolikhet på antalet prover, då provantalet till Valle var över 45 stycken.

Innehållet av ²²⁶Ra i jordmånen var under tillhörande LOD på 10 ng/kg i samtliga jordprover, vilket motsvarar en aktivitetskoncentration på 538 Bq/kg. Studien till Popic et al. (2020) rapporterar om en koncentration av ²²⁶Ra mellan 77-251 Bq/kg t.v. jord, mätt med gammaspektrometri. Det kan därför tyda på att analysen med ICP-MS inte var sensitiv nog för att mäta ²²⁶Ra i jordproverna från Fensfältet, på grund av den förhöjda LOD. Radium-226 har liknande kemiska egenskaper som ²²⁸Ra och därför förväntades likt beteende i jordmånen. Att aktivitetskoncentrationen till ²²⁸Ra är magnituder högre än ²²⁶Ra kan i viss grad reflektera den ²³²Th-rika jordmånen i Fensfältet, med förbehåll att analysen med ICP-MS resulterade i en för hög LOD.

I tillägg till naturligt förekommande radionuklider innehöll jordmånen tungmetallerna Pb, Cd och As i en koncentration på 49-119 mg/kg, 0,5-3,5 mg/kg respektive 6-21 mg/kg samtliga i t.v. jord. Medianen på 88, 1,7 respektive 16 mg/kg visar att jorden innehåller tungmetaller i varierande koncentration. Enligt Forurensningsloven (2009) är gränsvärdet för Pb, Cd och As på 60, 1,5 respektive 8 mg/kg vid klassificering av förorenad mark. Samtliga tungmetaller i station 1-3 överstiger gränsvärdena vilket betyder att jorden härifrån kan utgöra en risk för både miljön och organismers hälsa (Salbu et al, 2019). Den heterogena fördelningen av både radionuklider och tungmetaller i Fensfältet visar att växter i området har olika växtvillkor i förhållande till jordmånens innehåll.

3.2.2 Jordanalys från Orrefjell

Aktivitetskoncentrationen av de bestämda radionukliderna i jordmånen från station 5-8 i Orrefjell presenteras i Tabell 6. Jordmånens ²³⁸U-innehåll var mellan 17 ± 1115 Bq/kg t.v. jord, med en median på 403 Bq/g vilket är cirka 4 gånger högre än innehållet i jorden från Fensfältet, och 11 gånger över världens genomsnittsinnehåll på 37 Bq/kg (Choppin et al., 2013). Aktivitetskoncentrationen av ²³⁸U översteg gränsvärdet på 1000 Bq/kg i lagen om miljöförorening vid station 6 (Forurensningsloven, 2010). I studien till Maina (2018) rapporteras om en aktivitetskoncentration av ²³⁸U på 10-1975 Bq/kg t.v. jord med en median på 444 Bq/kg, vilket är resultat som stämmer överens denna studie.

Orrefjell		²³² Th	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra
Station 5	$Genomsnitt \pm SD$	$4,5\pm0,15$	$663 \pm 9{,}0$	2709 ± 458	<16 (MDA)
Station 6	$Genomsnitt \pm SD$	$23 \pm 1,4$	1103 ± 11	3451 ± 397	<7,9 (MDA)
Station 7	$Genomsnitt \pm SD$	13 ± 0,89	$145 \pm 8,9$	4115 ± 196	$14 \pm 3,1$
Station 8	Genomsnitt \pm SD	$10 \pm 0,055$	$18 \pm 0,\!45$	<lod< td=""><td>$9,2 \pm 1,2$</td></lod<>	$9,2 \pm 1,2$
Totalt: Station 5-8	Genomsnitt ± SD	12 ± 7,6	482 ± 452	3425 ± 688	12 ± 3,6
	Median	11	403	3506	12
	Range	4 - 24	17 - 1115	2366 - 4317	<mda -="" 14<="" td=""></mda>

Tabell 6: Aktivitetskoncentrationen av radionuklider i jordmån [Bq/kg]. Tabellen visar genomsnitt ± SD för station 5-8 samt genomsnitt ± SD, median och range för samtliga stationer.

Innehållet av ²²⁶Ra i jordmånen från station 5-8 var tydligt förhöjd i samtliga stationer med en aktivitetskoncentration mellan 2366 - 4317 Bq/kg t.v. jord, vilket överstiger gränsvärdet i lagen om miljöförorening på 1000 Bq/kg (Forurensningsloven, 2010). Resultat som reflekterar den U-rika jordmånen i Orrefjell. Den högsta aktivitetskoncentrationen av ²²⁶Ra blev funnit vid station 7, samtidigt som koncentrationen av ²³⁸U var flera magnituder lägre i samma station. Detta är resultat som stämmer överens med liknande studier utförda i området (Thørring et al., 2020; Maina, 2018).

Jordmånen i Orrefjell innehöll ²³²Th och ²²⁸Ra mellan 4-24, respektive <MDA-14 Bq/kg t.v. jord, vilket är flera magnituder lägre än innehållet i samtliga stationer i Fensfältet. Med en median på 11 Bq ²³²Th/kg t.v. jord är innehållet av ²³²Th i jordmånen lägre än världens genomsnittsinnehåll på 41 Bq/kg (Choppin et al., 2013). Detta är resultat som bekräftas med tidigare studier utförda i området, som rapporterar en median på 14 Bq/kg t.v. jord (Thørring et al. 2020; Maina, 2018). Resultaten av ²²⁸Ra reflekterar den låga koncentrationen till ²³²Th, där station 5 och 6 innehöll en aktivitetskoncentration under tillhörande detektionsgräns på 16 respektive 7,9 Bq/kg.

I tillägg till naturligt förekommande radionuklider innehöll jordmånen från Orrefjell tungmetallerna Pb, Cd och As i en koncentration mellan 19-102 mg/kg, 0,076-0,55 mg/kg respektive 0,34-20 mg/kg samtliga i t.v. jord. Medianen på 24, 0,29 respektive 1,9 mg/kg t.v. jord visar att jordmånen innehåller tungmetaller i varierande koncentration, och något mindre koncentration i förhållande till Fensfältet. Dessutom är medianen lägre än gränsvärdena på 60 mg Pb/kg, 1,5 mg Cd/kg och 8 mg As/kg (Forurensningsloven, 2009). Station 6 skiljde sig något ut där innehållet av Pb och As var 101 \pm 1,0 respektive 19 \pm 1,4 mg/kg t.v. jord, vilket överstiger gränsvärdena i Forurensningsloven (2009). Jorden vid station 6 klassificeras av den orsaken som förorenad.

3.2.3 Totalaktivitet av radionuklider i bär och bladverk

Totala aktivitetskoncentrationen av de bestämda radionukliderna i smultron och tillhörande bladverk, samt blåbär och blåbärsris visas i (Tabell 7). Högst aktivitetskoncentration kan observeras i blåbären och tillhörande blåbärsris av radionukliden ²²⁶Ra, vars aktivitet är flera magnituder högre än resterade radionuklider i samtliga prover. Det är få studier som rapporterar om naturligt förekommande radionuklider i smultron och blåbär på världsbasis, men Popic et al. (2020) rapporterar om en aktivitetskoncentration av ²³²Th på mellan 8-21 Bq/kg t.v. i tvättade smultron från Fensfältet. Thørring et al. (2020) visar en aktivitetskoncentration av ²²⁶Ra på upp till 5800 Bq/kg t.v. i blåbärsris och 1000 Bq/kg t.v. i blåbär, vilket är resultat som bekräftas av mätresultaten i denna studie.

Resultaten visar en något förhöjd aktivitetskoncentration av radionukliderna i bladverken i jämförelse med bären, med fåtal undantag (Tabell 7). Någon tydlig trend mellan blåbär och smultron kan inte observeras, förutom den förhöjda aktivitetskoncentrationen av ²²⁶Ra i blåbären och blåbärsriset från Orrefjell.

			8 5	3	55 1 1 81
		Genomsnitt ± SD [Bq/kg t.v.]			
Bär/Blad	Station	²³² Th	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra
Smultron	1	$3,5 \pm 4,5$	$0,\!038\pm0,\!027$	<lod< th=""><th>$13,9 \pm 3,2$</th></lod<>	$13,9 \pm 3,2$
Blad	1	$2,1 \pm 0,14$	$0{,}56\pm0{,}84$	<lod< td=""><td>176 ± 18</td></lod<>	176 ± 18
Smultron	2	$0,035 \pm 0,012$	$0,058 \pm 0,026$	<loq< td=""><td>$27 \pm 2,7$</td></loq<>	$27 \pm 2,7$
Blad	2	$0,\!78\pm0,\!035$	$0,050 \pm 0,0027$	<lod< td=""><td>189 ±1,9</td></lod<>	189 ±1,9
Smultron	3	$0,31 \pm 0,053$	<loq< td=""><td><loq< td=""><td>42 ± 13</td></loq<></td></loq<>	<loq< td=""><td>42 ± 13</td></loq<>	42 ± 13
Smultron	4	$1,1 \pm 0,49$	$0,093 \pm 0,038$	<lod< td=""><td><lod< td=""></lod<></td></lod<>	<lod< td=""></lod<>
Blåbär	5	<loq< th=""><th>$0,\!27 \pm 0,\!34$</th><th>1399 ± 64</th><th>9,3 ± 1,9</th></loq<>	$0,\!27 \pm 0,\!34$	1399 ± 64	9,3 ± 1,9
Blåbärsris	5	$0,0066 \pm 0,0022$	3,0 ± 0,26	5201 ± 104	38 ± 4,3

Tabell 7: Aktivitetskoncentration av radionuklider i vegetation från Fensfältet och Orrefjell [Bq/kg].

3.3 Andel radionuklider som deponerat på bär och bladverk

Mängden deponerade jordpartiklar per gram bär och blad visas i Tabell 8, i tillägg visas aktiviteten i de deponerade jordpartiklarna, och hur stor andel av den totala aktivitetskoncentrationen som orsakats av jorddeponeringen. Jorddeponeringen är beräknad utifrån genomsnittet av jorddeponeringsestimat genererat av Sc och Ti (Tabell G1 i Appendix G). Resultaten visar hur mycket jorddeponering kan påverka den totala aktiviteten av radionuklider i vegetation. Baserat på mängden deponerade jordpartiklar på vegetationens yta (utan att ta hänsyn till den heterogena fördelningen av radionukliderna i jordpartiklarna) kan jorddeponering bidra med upp till 100% ²³²Th, 100% ²³⁸U, <0,1% ²²⁶Ra och 11% ²²⁸Ra.

		Deponerad jord [mg jord/g	Aktivitet i deponerad jord [Bq/kg t.v.] (% av totala aktivitetskoncentrationen i vegetationen)					
Prov	Station	vegetation t.v.]	²³² Th	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra		
Smultron	1	0,20	1,4 (40)	0,031 (82)	-	1,5 (11)		
Blad	1	0,59	4,1 (>100)	0,090 (16)	-	4,3 (3)		
Smultron	2	0,043	0,24 (>100)	0,0050 (9)	-	0,25 (1)		
Blad	2	0,56	3,1 (>100)	0,064 (100)	_	3,2 (2)		
Smultron	3	0,13	0,50 (>100)	-	_	0,50 (1)		
Smultron	4	0,32	0,54 (49)	0,033 (35)	-	-		
Blåbär	5	0,35	-	0,23 (85)	1 (0,07)	-		
Blåbärsris	5	2,2	0,010 (>100)	1,47 (48)	6 (0,12)	_		

Tabell 8: Mängden deponerade jordpartiklar på vegetationen [mg jord/g vegetation]. Aktiviteten till radionukliderna i mängden deponerad jord [Bq/kg t.v.] och hur stor andel av den totala aktivitetskoncentrationen (presenterat i Tabell 7) som jorddeponeringen bidrar till.

Mängden deponerade jordpartiklar var högre i bladverken i jämförelse med bären. Hur stor andel av den totala aktivtetskoncentrationen som de deponerade jordpartiklarna bidrog med varierade. Bland annat på grund av att den totala aktivitetskoncentrationen i bär- och bladproverna också varierade, något som tyder på högre rotupptag i vissa prover. Resultaten kan därför tyda på att jordpartiklar träffar bladverken i större grad än bären, men att radionukliderna i jordpartiklarna bidrar i en mindre grad till den totala aktivitetskoncentrationen i bladverket än det de gör i bären. Vilket antagligen beror på att de flesta bladverk innehöll en högre totalkoncentration av radionukliderna, än i tillhörande bär. Något som tyder på att en högre andel av radionukliderna i bladverk beror på rotupptag i jämförelse med bären.

Koncentrationen av jordpartiklar som deponerat på vegetationen var högst i blåbärsriset vid station 5 i Orrefjellet, med en koncentration på 2,2 mg jordpartiklar per gram blåbärsris. Denna

jorddeponering bidrog till 100% ²³²Th, 48% ²³⁸U och <1% ²²⁶Ra av de totala aktivitetskoncentrationerna i blåbärsriset (Tabell 8). Resultat som visar att jordmånens heterogena innehåll av radionuklider bidrar de med varierande aktivitetskoncentration till vegetationen. Vilket är en viktig upptäckt för framtida studier på jordbundna föroreningar som naturligt förekommande radionuklider. Om det dessutom är en torrperiod som resulterar i att jordpartiklar transporterats med vind över större områden, kan jordpartiklar långt från vegetationen bidra med en helt annan sammansättning av föroreningar på vegetation.

Lägst koncentration av deponerade jordpartiklar var i smultronen från station 2 i Fensfältet, med en koncentration på 0,043 mg jordpartiklar per gram smultron. Denna jorddeponering på smultron från ²³²Th-rika Fensfältet bidrog till 100% av ²³²Th, 9% av ²³⁸U och 1% av ²²⁸Ra av den totala aktivitetskoncentrationen i smultronen. Vid jämförelse mellan blåbärsriset från station 5 (Orrefjell) och smultronen från station 2 (Fensfältet), var koncentrationen av deponerade jordpartiklar 51 gånger högre på blåbärsrisen än på smultronen. Båda jorddeponeringarna bidrog med 100% av ²³²Th till den totala aktivitetskoncentrationen. Resultat som reflekterar den stora skillnaden i ²³²Th-innehållet i jorden, där ²³²Th-innehållet i jordmånen vid station 5 var under världens genomsnittsinnehåll på 41 Bq/kg (Choppin et al., 2013), och ²³²Th-innehållet i jordmånen vid station ord kan små mängder deponerade jordpartiklar bidra med höga aktivitetskoncentrationer, beroendes på sammansättningen i jordmånen.

Uran-238 visar varierande andel deponerade radionuklider i bär och bladproverna, mellan 9-100%. Resultaten visar ingen tydlig trend i andelen av den totala aktivitetskoncentrationen i bär i jämförelse med blad som beror på deponering. Exempelvis vid station 1 där 82% av innehållet av ²³⁸U i bären berodde på deponering, jämfört med 16% i bladverket. Resultaten från station 2 visar däremot att 9% av innehållet av ²³⁸U i bären berodde på deponering, jämfört med 100% i bladverken. Det kan poängteras att bladverken från station 1 innehöll cirka 10 gånger så hög koncentration av ²³⁸U än bladverken från station 2 (Tabell 7). Det kan därför tyda på rotupptag av ²³⁸U i station 1 eftersom jorddeponeringen bidrog med enbart 16% av den totala aktivitetskoncentrationen i jämförelse med 100% vid station 2.

Mellan <0,1-11% av totala aktivitetskoncentrationen till ²²⁸Ra och ²²⁶Ra i vegetationsproverna beror på deponering (Tabell 8). Vilket enligt mätresultaten skulle betyda att 89-100% beror på rotupptag. I studien till Marple (1980) var upptaget av radium i en planta negativt korrelerat med kalciuminnehållet i substratet, ett resultat som både bekräftas och motbevisas i nyare litteratur beroendes på typen växt som undersökes (IAEA, 2014). Studien till Popic et al. (2020) visar att den mobila fraktionen av ²²⁸Ra och ²²⁶Ra var 2,4% respektive 9,7% av den totala aktivitetskoncentrationen i Ca-rika Fensfältet.

För framtida användning av jorddeponeringsestimat skulle det kunna skiljas på provmaterial som tvättas och provmaterial som inte tvättats, för att observera eventuella skillnader. I tillägg skulle jordmånens sammansättning kunna analyseras för kontroll av radionuklidernas mobilitet och biotillgänglighet. Det är också viktigt att analystekniken kan mäta radionukliderna i tillräckligt låga koncentrationer för att inte mätresultaten påverkas av analystekniken.

3.4 Transferfaktorer

Tabell 9 presenterar transferfaktorerna för ²³²Th, ²³⁸U, ²²⁸Ra och ²²⁶Ra. TF1 är beräknad enligt definitionen till transferfaktorn av IAEA (2010), där det inte är skilt mellan andelen radionuklider från rotupptag och andel deponerade radionuklider. TF2 visar transferfaktorn där andelen deponerade radionuklider är exkluderat, vilket betyder att TF2 uteslutande visar rotupptag.

Baserat på aktivitetskoncentrationen i de deponerade jordpartiklarna presenterat i Tabell 7 korrigerades TF1 upp till 100%. Exempelvis bidrog 0,20 mg deponerade jordpartiklar, med en aktivitetskoncentration av ²³²Th på 1,4 Bq/kg per gram smultron från station 1, till 40% av den totala aktivitetskoncentrationen i bären. Vid beräkningen av TF2, subtraherades därför 40% på grund av jorddeponering. Korrigeringen av TF1 påverkas därför av aktiviteten av radionukliderna i de deponerade jordpartiklarna, som påverkas av fördelningen av radionukliderna i jordmånen. De 0,20 mg deponerade jordpartiklar per gram bär bidrog också till en aktivitetskoncentrationen av ²³⁸U i smultronen från station 1. TF1 av ²³⁸U från jordmån till smultron vid station 1 reducerades därför med 82% vid beräkning av TF2.

		232	Th	²³⁸ U		²²⁶ Ra		²²⁸ Ra	
Prov	Station	TF1	TF2	TF1	TF2	TF1	TF2	TF1	TF2
Smultron	1	$5,0 imes10^{-4}$	$3,0 imes10^{-4}$	$2,5 \times 10^{-4}$	$4,5 \times 10^{-5}$	-	-	1,9 × 10 ⁻³	$1,7 \times 10^{-3}$
Blad	1	3,1 × 10 ⁻⁴	0	3,7 × 10 ⁻³	3,1 × 10 ⁻³	_	_	$2,4 \times 10^{-2}$	$2,3 \times 10^{-2}$
Smultron	2	6,3 × 10 ⁻⁶	0	$5,1 \times 10^{-4}$	$4,7 \times 10^{-4}$	-	-	$4,7 \times 10^{-3}$	$4,7 \times 10^{-3}$
Blad	2	$1,4 imes 10^{-4}$	0	$4,\!4 \times 10^{-4}$	0	-	-	$3,3 imes 10^{-2}$	$3,2 \times 10^{-2}$
Smultron	3	$7,86 imes 10^{-5}$	0	_	_	-	_	$1,1 \times 10^{-2}$	$1,1 \times 10^{-2}$
Smultron	4	$6,6 imes 10^{-4}$	3,4 × 10 ⁻⁴	9,8 × 10 ⁻⁴	6,5 × 10 ⁻⁴	-	-	-	
Blåbär	5	-	-	$4,1 \times 10^{-4}$	6,2 × 10 ⁻⁵	0,53	0,53	-	
Blåbärsris	5	$1,5 \times 10^{-3}$	0	$4,6 \times 10^{-3}$	2,4 × 10 ⁻³	1,95	1,95	-	

Tabell 9: Transferfaktorer (TF) för ²³²Th, ²³⁸U, ²²⁸Ra och ²²⁶Ra. TF1 representerar TF utan korrigering av jorddeponering. TF2 representerar den TF där andelen deponerade radionuklider har exkluderats. (Genomsnitt).

Figur 5 visar differensen mellan TF1 och TF2 för ²³²Th. TF1 till ²³²Th varierar mellan 6,3 × 10^{-6} - 6,6 × 10^{-4} i bär och mellan 1,4 × 10^{-4} - 1,5 × 10^{-3} i blad. Resultat som bekräftas av TF-värdena till både IAEA (2010) och Popic (2014). TF2 för ²³²Th i bär vid station 1 och 4 var 3,0 × 10^{-4} respektive 3,4 × 10^{-4} . Vilket är en mindre variation i jämförelse med TF1, något som visar att osäkerheten minskar vid exkludering av andel deponerad. TF2 visar också att smultron kan ta upp en del ²³²Th via rotsystemet, men resultaten visar att överföringen av ²³²Th från jord till bär och blad huvudsakligen består av deponering (Figur 5). Att enbart analysera TF utan att ha korrigerat för andel deponering kan därför ge felaktiga konklusioner.



Figur 5: Transferfaktor (TF1) för 232 Th i bär och blad (a) vs. korrigerad TF (TF2) där andelen deponerad är exkluderad från grafen (b). (Genomsnitt ± SD).

Uran-238 har ingen känd essentiell roll i växter men studier visar ändå på ett upptag av rotsystemet (Mitchell et al., 2013). Resultaten i Figur 6 visar ett rotupptag av ²³⁸U även efter korrigering (TF2). Tidigare antydning om högre rotupptag i bladverken från station 1 bekräftas i resultaten presenterat i Figur 6b.



Figur 6: Transferfaktor (TF1) för ^{238}U i bär och blad (a) vs. korrigerad TF (TF2) där andelen deponerad är exkluderad från grafen (b). (Genomsnitt \pm SD).

Både TF1 och TF2 för ²²⁶Ra var 0,53 i bär och 1,95 (Figur 7). Eftersom aktiviteten i de deponerade jordpartiklarna bidrog med <1% av den totala aktiviteten till ²²⁶Ra i blåbären och blåbärsrisen var inte minskningen i TF2 märkbar. IAEA (2010) uppger en TF för ²²⁶Ra i bär på mellan 2.4×10^{-4} - 6.3, vilket visar stora variationer i observerade TF för ²²⁶Ra i vegetation, något som kan reflektera den varierande mobiliteten och biotillgängligheten till Ra. I tillägg till varierande upptag av olika växtarter (IAEA, 2014). TF-värdet för ²²⁶Ra i blad är drygt 4 gånger så hög som TF-värdet för ²²⁶Ra i bär (Figur 7). Blåbären som plockades vid station 5 plockades i juli och var mogna, och har mer storsannolikhet mindre behov för tillförsel av näring (IAEA, 2010).



Figur 7: Transferfaktor (TF1) för 226 Ra i bär och blad (a) vs. korrigerad TF (TF2) där andelen deponerad är exkluderad från grafen (b). (Genomsnitt ± SD).

Liknande resultat som till ²²⁶Ra visas naturligt nog i ²²⁸Ra. Skillnaden mellan TF1 och TF2 är liten (Figur 8). I tillägg visas liknande resultat som ²²⁶Ra i skillnaden mellan blad och bär, där blad visar mer än den dubbla koncentrationen av bäret. På grund av att inget bladprov blev plockade vid station 3 visas heller ingen TF i grafen (Figur 8b).



Figur 8: Transferfaktor (TF1) för 228 Ra i bär och blad (a) vs. korrigerad TF (TF2) där andelen deponerad är exkluderad från grafen (b). (Genomsnitt ± SD).

Resultaten visar att andelen naturligt förekommande radionuklider som deponerat på vegetation skiljer sig och påverkar TF i olika stor grad. Störst skillnad mellan okorrigerade TF (TF1), och den korrigerade TF (TF2) visade mätresultaten för radionukliden ²³²Th. Resultaten visar också att den korrigerade TF (TF2) visade mindre variation än den okorrigerade TF (TF1), speciellt vid korrigering av TF för ²³²Th, men också vid korrigering av TF för ²³⁸U.

TF ger en översikt i överföringen av radionuklider, både konstgjorda och naturliga mellan jord och vegetation. I tillägg kan TF indikera om det är skillnad i upptag mellan delarna i vegetationen, som exempelvis bladverk och bär. Däremot visar resultaten i denna studien att jordpartiklar kan bidra med mätbara mängder av naturligt förekommande radionuklider som är nästintill stationära i jorden och som inte förväntas tas upp via rotsystemet, exempelvis ²³²Th. Med en andel deponerade upp till 100% av den totala aktivitetskoncentrationen i vegetation visar resultaten i denna studien att vid enbart användande av TF för att estimera överföringen av naturligt förekommande radioaktivitet från jord till vegetation kan fel slutsatser dras vid exempelvis risk- och hälsovärdering. Konsekvensen blir att överestimera överföringen via rotsystemet och undervärdera variationen som orsakas av jordpartiklar. I tillägg kan andelen deponerad förklara den stora variationen av de publicerade TF-värdena. I framtida studier kan det vara värdefullt att beräkna andelen deponerade radionuklider. Det är också viktigt att vara medveten om att jordpartiklar kan påverka mätresultatet i stor grad och därför är provinsamling och provpreparering två kritiska steg i analysen. Resultaten poängterar också viktigheten att data samlas in även för de naturligt förekommande radionukliderna då både jord och vegetation kan innehålla väsentliga nivåer av naturliga radionuklider.

Baserat på resultaten i denna studie förkastas hypotes H01. Studien visar att vid sidan av rotupptag från jord, kan mätbara koncentrationer av ²³⁸U, ²³²Th, ²²⁸Ra och ²²⁶Ra i bär och tillhörande bladverk bero på deponering via jordpartiklar. Hypotes H02, som hypotiserar att det inte är någon skillnad på andelen deponerade naturligt förekommande radionuklider i bär jämfört med i tillhörande bladverk, förkastas eftersom resultaten i denna studie visar motsatsen.

4. Konklusion

Studien visar att vid sidan av rotupptag från jord, kan koncentrationer av ²³⁸U, ²³²Th, ²²⁸Ra och ²²⁶Ra i bär och tillhörande bladverk bero på deponering via jordpartiklar. I tillägg visar resultaten att det är skillnad på andelen deponerade radionuklider i bär vid jämförelse med tillhörande bladverk. Därför förkastas både hypotes 1 och hypotes 2.

Jordmånen i både Fensfältet och Orrefjell innehöll förhöjda nivåer av naturligt förekommande radionuklider, och radionukliderna var heterogent fördelade. Aktivitetskoncentrationen av ²³²Th och ²²⁸Ra var högst i jordmånen från Fensfältet, och ²³⁸U och ²²⁶Ra var högst i jordmånen från Orrefjell.

Högst aktivitetskoncentration av de bestämda radionukliderna kunde observeras i blåbären och tillhörande blåbärsris av radionukliden ²²⁶Ra, vars aktivitet var flera magnituder högre än resterade radionuklider i samtliga vegetationsprover. De flesta smultron och tillhörande bladverk från Fensfältet innehöll ²³²Th, ²³⁸U och ²²⁸Ra i varierande aktivitetskoncentrationer. Aktivitetskoncentrationen av ²²⁶Ra var däremot under LOD i samtliga smultron- och bladprover från Fensfältet, vilket antogs att beror på hög LOD i analysmetoden ICP-MS, som leder till förbättringspotential för sensitiviteten i analys med ICP-MS.

Aktivitetskoncentrationen av radionukliderna i de deponerade jordpartiklarna varierade. Hur stor andel av radionukliderna i vegetationen som de deponerade jordpartiklarna bidrog med varierade på grund av olika mängder deponerade jordpartiklar i tillägg till olik grad av rotupptag. Koncentrationen av deponerade jordpartiklar var högst i bladverken, men eftersom bladverken visade ett högre rotupptag utgjorde de deponerade radionukliderna en mindre andel i jämförelse med bären.

Mängden naturligt förekommande radionuklider som deponerat på vegetation varierar och påverkar transferfaktorn i olika stor grad. Transferfaktor kan ge en översikt på överföringen av radionuklider från jordmån till olika delar av vegetationen, men med en andel deponerade radionuklider på upp till 100% av den totala aktivitetskoncentrationen i vegetation visar denna studie på stor osäkerhet vid användning av enbart transferfaktor. Genom att estimera andelen deponerade radionuklider kan osäkerheten minska. Denna studie poängterar viktigheten av att fördjupa kunskapen om alla möjliga överföringar av de naturligt förekommande radionuklider från jordmån till vegetation. Detta för att minska osäkerheten vid användning av transferfaktor, en väletablerad parameter i radioekologi.

5. Referenslista

- AECL. (1980). The Environment Behaviour of Uranium and Thorium. AECL-6795. Manitoba, Canada. Atomic Energy of Canada Limited (AECL).
- Alnour, I., Wagiran, H., Ibrahim, N., Hamzah, S., Siong, W. and Elias, M. (2014). New approach for calibration the efficiency of HpGe detectors. *AIP Publishing LLC*. DOI: 10.1063/1.4866101.
- ATSDR. (1990). Toxicological profile for Radium. *Department of Health and Human Services, Public Health Service*. Atlanta, U.S. Agency for Toxic Substances and Disease Registry (ATSDR).
- Azeez, H, H., Mansour, H, H., Ahmad, S, T. (2019). Transfer of natural radioactive nuclides from soil to plant crops, Applied Radiation and Isotopes, (147): 152-158. DOI: 10.1016/j.apradiso.2019.03.010.
- Bargholtz, C., Lindh, K., Protic, D., Ruus, N., Tegnér, P., Engblom, P. & Rolander, K. (1997). A small size zero-degree spectrometer with germanium detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 390(1-2):160-166.
- Barnekow, U., Fesenko, S., Kashparov, V., Kis-Benedek, G., Matisoff, G., Onda, Yu., Sanzharova, N., Tarjan, S., Tyler, A., & Varg, B. (2019). Guidelines on Soil and Vegetation Sampling for Radiological Monitoring. *International Atomic Energy Agency* (IAEA).
- Betti, M., Aldave de las Heras, L., Janssens, A., Henrich, E., Hunter, G., Gerchikov, M., Dutton, M., van Weers, A., Nielsen, S., Simmonds, J., Bexon, A. and Sazykina, T. (2004). Results of the European Commission MARINA II study: part I—general information and effects of discharges by the nuclear industry. *Journal of Environmental Radioactivity*, 74(1-3):243-254. DOI:10.1016/j.jenvrad.2004.01.022.
- Bird G.A. (2012). Environmental Radioactivity and Ecotoxicology of Radioactive Substances, Introduction to. *Meyers R.A. (eds) Encyclopedia of Sustainability Science and Technology. Springer*, New York. DOI: 10.1007/978-1-4419-0851-3_917.
- Boghi, A., Roose, T., Kirk, G. J. D. (2018). *Environmental Science & Technology*. 52 (6), 3536-3545 DOI: 10.1021/acs.est.7b06136.
- Brøgger, W.C. (1921). Die Eruptivgesteiene des Kristianiagebietes IV. Das Fengebiet in Telemark, Norwegen. *Skrifter, Det Norske videnskap akademi i Oslo* I, Mat naturv. *Klasse 9: 408*.
- Cagno, S., Lind, O., Popic, J., Skipperud, L., De Nolf, W., Nuyts, G., Vanmeert, F., Jaroszewicz, J., Janssens, K. and Salbu, B. (2020). Micro-analytical characterization of thorium-rich aggregates from Norwegian NORM sites (Fen Complex, Telemark). *Journal of Environmental Radioactivity*, 219, 106273.
- Choppin, G., Liljenzin. J.O., Rydberg. J., Ekberg. C. (2013). *Radichemistry and Nuclear Chemistry*, 4rd edition. ISBN 978-0-12-405897-2. Elsevier, Nederländerna. Sidor: 858.
- Cook, L. L., McGonigle, T. P., & Inouye, R. S. (2009). Titanium as an indicator of residual soil on arid-land plants. *Journal of environmental quality*, 38(1), 188–199. DOI: 10.2134/jeq2007.0034.

Dahlgren, S. (1983). Naturlig radioaktivtet i berggrunnen; Gamma-strålingskart. Fensfeltet, Telemark. M. 1:10 000. "Prosjekt temakart, Telemark", Norge.

Dahlgren, S. (1993). Fensfeltet - Et stykke eksplosiv geologi. Sidor: 146-155.

- Dietzel, C.A.F., Kristandt, T., Dahlgren, S., Giebel, R.J., Marks, M.A.W., Wenzel, T., Markl, G. (2019). Hydrothermal processes in the Fen alkaline- carbonatite complex, southern Norway. *Ore Geology Reviews* 111, 102969.
- Dong, W., Brooks, S,C. (2006). Determination of the formation constants of ternary complexes of uranyl and carbonate with alkaline earth metals (Mg2+, Ca2+, Sr2+, and Ba2+) using anion exchange method. *Environ Sci Technol*.(15):4689-95. DOI: 10.1021/es0606327. PMID: 16913125.
- Ebbs, S., Brady, D., Kochian, L. (1998). Role of uranium speciation in the uptake and translocation of uranium by plants. *Journal of Experimental Botany*, 49(324): 1183-1190.
- Friberg, K, V. (2012). Tolkning av kemiska analysresultat kopplade till LKAB:s framställning av apatitkoncentrat. Teknologie kandidatexamen. *Luleå tekniska universitet Institutionen för samhällsbyggnad och naturresurser*.

Frisk, E. (2018). Korrelation. Statistisk ordbok. Tillgänglig på: https://www.statistiskordbok.se/ord/korrelation/ [Hämtad 04 Maj 2021].

- Forurensningsloven. (2009). Forskrift om begrensning av forurensning.
- Forurensningsloven. (2010). Forskrift om forurensningslovens anvendelse på radioaktiv forurensning og arradioaktivt avfall.
- Forurensningsloven. (2015). Forskrift om visse forurensende stoffer i næringsmidler.
- Garçon, M., Sauzéat, L., Carlson, R., Shiray, S., Simon, M., Balter, V. and Boyet, M. (2016).
 Nitrile, Latex, Neoprene and Vinyl Gloves: A Primary Source of Contamination for Trace Element and Zn Isotopic Analyses in Geological and Biological Samples. *Geostandards and Geoanalytical Research*. DOI: 10.1111/ggr.12161.
- Ghasemi, A., Zahediasl, S. (2012). Normality tests for statistical analysis: a guide for nonstatisticians. International journal of endocrinology and metabolism, 10(2), 486– 489. DOI: 10.5812/ijem.3505.
- Guagliardi, I., Buttafuoco, G., Ricca, N., Cipriani, M, G., Civitelli, D., Froio, R., Gabriele, A, L., De Rosa, R. (2013). Modelling seasonal variations of natural radionuclides in agricultural soils. *E3S Web of Conferences*, DOI:10.1051/e3sconf/20130108009.
- Google Maps, 2021. Karta över Orrefjell, Satelit. Google Maps [online] Tillgänglig på: https://www.google.no/maps/@64.8639658,-0.9782254,3379133m/data=!3m1!1e3 [Hämtad 09 Mars 2021].
- Haanes, H., Gjelsvik, R. (2021). Reduced soil fauna decomposition in a high background radiation area. *PLoS ONE* 16(3): e0247793. DOI:10.1371/journal.pone.0247793.
- Heincke, B.H., Smethurst, M.A., Bjørlykke, A., Dahlgren, S., Rønning, J.S., Mogaard, J.O. (2008). Airborne gamma ray spectrometer mapping for relating indoor radon concentrations to geological parameters in the Fen region, southeast Norway. In Slagstad, T. Geology for Society, Geological Survey of Norway, *Special Publication 11*, Sidor: 131-143.
- Higley, K.A. (2010) Estimating transfer parameters in the absence of data. *Radiat Environ Biophys* 49, 645–656. DOI:10.1007/s00411-010-0326-9.

- Hinton TG, Kopp P, Ibrahim S., Bubryak I., Syomov A., Tobler L., Bell C. (1995). A comparison of techniques used to estimate the amount of resuspended soil on plant surfaces. *Health Physics*. 68(4). DOI: 10.1097/00004032-199504000-00009. Sidor: 523-531.
- Hou, X., Roos, P. (2008). Critical comparison of radiometric and mass spectrometric methods for the determination of radionuclides in environmental, biological and nuclear waste samples. *Analytica Chimica Acta* 608, (2): 105-139.
- Hult, M., Charette, M., Lutter, G., Marissens, G., Henderson, P., Sobiech-Matura, K., Simgen, H. (2019). Underground gamma-ray measurements of radium isotopes from hydrothermal plumes in the deep Pacific Ocean. *Applied Radiation and Isotopes*, (153):108831.
- IAEA. (2003). Extent of Environmental Contamination by Naturally Occurring Radioactive Material (NORM) and Technological Options for Mitigation. *Technical reports* series no. 419. International Atomic Energy Agency (IAEA).
- IAEA. (2009a). Certificate of Certified Reference Materials IAEA-448 Radium-226 in soil from oil field. *Department of Nuclear Sciences and Applications*. Wien. International.
- IAEA. (2009b). Quantification of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater Environments. *Technical reports series no.* 472. Sidor: 671-674. Wien. International Atomic Energy Agency (IAEA).
- IAEA. (2010). Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. *Journal of Environmental Radioactivity*, 100(9). Sidor: 671-674. Wien. International Atomic Energy Agency (IAEA).
- IAEA. (2014). The environmental Behaviour of radium: revised edition. *Series: Technical reports series 476*. Wien. International Atomic Energy Agency (IAEA).
- IAEA. (2018). IAEA Safety Glossary Terminology Used in Nuclear Safety and Radiation Protection. Wien. International Atomic Energy Agency (IAEA).
- ICRP. (1999). Annals of the ICRP. Publication 82. International Commission on Radiological Protection (ICRP). USA.
- Jensen, K. A. (2016). Karl Andreas sine notater. *KJM340 Instrumentell uorganisk analyse*. Norges miljø- og biovitenskapelige universitet, Ås, Sidor: 3.
- Jensen, K. A. (2020). Induktivt koplet plasma massespektrometri. *KJM340 Instrumentell uorganisk analyse*. Norges miljø- og biovitenskapelige universitet. Sidor: 12.
- Joel, G. S., Penabei, S., Ndontchueng, M. M., Chene, G., Mekontso, E. J., Ebongue, A. N., Ousmanou, M., & David, S. (2016). Precision measurement of radioactivity in gamma-rays spectrometry using two HPGe detectors (BEGe-6530 and GC0818-7600SL models) comparison techniques: Application to the soil measurement. MethodsX, 4, 42–54. DOI:10.1016/j.mex.2016.12.003
- Kabata-Pendias, A. (2004). Soil–plant transfer of trace elements—an environmental issue. Geoderma, 122(2-4), Sidor: 143-149.
- Landa, E.R (2007). Naturally occuring radionuclides from industrial sources: charactersistics and fate in the environment. In S. George (Ed.), *Radiotactivity in the Environment* (Vol.10): 211-237: Elsevier.

- Lehto, J. K. (2016). BASICS OF NUCLEAR PHYSICS AND OF RADIATION DETECTION AND MEASUREMENT: An open-access textbook for nuclear and radiochemistry students. University of Helsinki.
- Lind O.C., Reinoso-Maset E. (2020). Lab exercise 2 Measurement of gamma radiation, *KJM350 Radiokjemi*. Norges miljø- og biovitenskapelige universitet, Ås. Sidor:1-14
- Lindahl, I., Andresen, A., Rindstad, B.I., Rundberg, Y. (1985). Age and tectonic setting of the uraniferous Precambrian basement rocks at Orrefjell, Salangen, *Troms. Nor. Geol. Tidsskr*.(65): 167–178.
- Lindberg, W. (2018). Characterization of an HPGe detector for experiments on radioactive mushrooms. Uppsala Universitet, Sverige. Sidor: 3-4.
- Maina, P. M. (2018). The exposure of terrestrial biota to naturally occurring radiation and stable elements: Case Orrefjell, a risk asses. Masteravhandling. Norges miljø- og biovitenskapelige universitet, Ås, Norge.
- Marple, M. L. (1980). Radium-226 in Vegetation and Substrates at Inactive Uranium Mill Sites, *Rep. LA-8183-T, Los Alamos Scientific Laboratories*, Los Alamos. 1-64.
- Mauring, A., Gäfvert, T. & Aleksandersen, T. B. (2014). Implications for analysis of 226Ra in a low- level gamma spectrometry laboratory due to variations in radon background levels. *Applied Radiation and Isotopes*, (94): 54-59.
- Melgård, D.M. (2017). Determination of Ra-226 in Environmental Samples using ICP- QQQ after Cation Exchange- Separation. Masteravhandling. Norges miljø- og biovitenskapelige universitet, Ås, Norge.
- Mitchell, N., Pérez-Sánchez, D., Thorne, M, C. (2013). A review of the behaviour of U-238 series radionuclides in soils and plants. *J Radiol Prot*. 33(2):R17-48. DOI: 10.1088/0952-4746/33/2/R17.
- NACIS (2003). Certificate of Certified Reference Materials NCS ZC 73001 NCS ZC 73007. *China National Analysis Center for Iron and Steel*. Beijing, Kina.
- NACIS (2004). Certificate of Certified Reference Materials NCS DC 73319 NCS DC 73326. *China National Analysis Center for Iron and Steel*. Beijing, Kina.
- NACIS (2010). Certificate of Certified Reference Materials NCS ZC73013 Spinage and NCS ZC73014 - Tea. *China National Analysis Center for Iron and Steel*. Beijing, Kina.
- National Research Council (US). (1999). Committee on Evaluation of EPA Guidelines for Exposure to Naturally Occurring Radioactive Materials. Evaluation of Guidelines for Exposures to Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Materials. Washington (DC): *National Academies Press (US)*; 2.
- Næs, T., Brockhoff, P. B., Tomic, O. (2010). Statistics for Sensory and Consumer Science. West Sussex, United Kingdom: *John Wiley & Sons Ltd.*
- Nelson, A., Eitrheim, E., Knight, A., May, D., Mehrhoff, M., Shannon, R., Litman, R., Burnett, W., Forbes, T., Schultz, M. (2015). Understanding the Radioactive Ingrowth and Decay of Naturally Occurring Radioactive Materials in the Environment: An Analysis of Produced Fluids from the Marcellus Shale. *Environmental Health Perspectives*, 123(7):689-696.

- NIST (2008). Certificate of Analysis Standard Reference Material 1570a Trace Elements in Spinach Leaves. *National Institute of Standards & Technology*. Gaithersburg, USA.
- Norgeskart.no. (2021). Karta över Orrefjell, Gråton. Norgeskart [online] Tillgänglig på: https://www.norgeskart.no/#!?project=norgeskart&layers=1005&zoom=6&lat=76 57944.58&lon=575068.85&sok=orrefjell&markerLat=7645627.023443237&marke rLon=624568.9841236351&panel=searchOptionsPanel [Hämtad 09.03.2021].
- Oughton D.H. & Day J.P. (1993). Determination of caesium, rubidium, and scandium in biological and environmental materials by neutron activation analysis. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry (Articles)*, Sidor: 177-185.
- PerkinElmer, (2001). The 30-minute Guide to ICP-MS Technical Note ICP-Mass Spectrometry. Tillgänglig på: https://www.perkinelmer.com/PDFs/Downloads/tch_icpmsthirtyminuteguide.pdf.
- Popic, J. M., Salbu, B., Strand, T. & Skipperud, L. (2011). Assessment of radionuclide and metal contamination in a thorium rich area in Norway. *Journal of environmental monitoring : JEM*, 13 (6): 1730-8.
- Popic, M, J., Salbu, B., Skipperud, L. (2012). Ecological transfer of radionuclides and metals to free-living earthworm species in natural habitats rich in NORM. *Sci. Total Environ.*(414):167–176.
- Popic, J, M. (2014). Environmental Impact of Radionuclides and Trace Elements in the Thorium Rich Fen Area in Norway. Doktorsavhandling. Norges miljø- og biovitenskapelige universitet, Ås.
- Popic, J, M., Oughton, D, H., Salbu, B. & Skipperud., L. (2020).Transfer of naturally occurring radionuclides fromsoil to wild forestflora in an area with enhancedlegacy and natural radioactivity in Norway. *Environmental Science Processes & Impacts*. (22): 350-363.
- Ramberg, I. B. (1973). Gravity studies of the Fen complex, Norway, and their petrological significance. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 38 (2): 118.
- Ratner, B. (2009). The correlation coefficient: Its values range between +1/-1, or do they?. *J Target Meas Anal Mark* (17):139–142. DOI:10.1057/jt.2009.5.
- Rindstad, B. I. (1981). Geologiske undersøkelser på Orrefjell, Norges geologiska undersökelser. Salangen kommune, Troms.
- Salbu, B., Teien, H. C., Lind, O. C., Tollefsen, K. E. (2019) Why is the multiple stressor concept of relevance to radioecology?, *International Journal of Radiation Biology*, 95:7, 1015-1024, DOI: 10.1080/09553002.2019.1605463
- Sheppard, M. (1980). The Environmental Behaviour of Uranium and Thorium. *Atomic Energy* of Canada Limited. Manitoba, Canada.
- Singh, P., Singh, S., Prasad, S. (2020). Plant responses to soil pollution. Springer. Singapore.
- Sundgren, T. (2009). Rötternas funktion och dess betydelse för växtproduktionen. Online: Slu.se. Yarra. Tillgänglig på: https://www.slu.se/globalassets/ew/org/inst/mom/fieldstations/uddevallakonf/2020/7tovesundgrenpres.pdf>.
- Swanson, V. E. (1961). Geology and Geochemistry of Uranium in Marine Black Shales, A Review. *Uranium in Carbonaceous Rocks*.

- Sæther, E. (1947). Føreløpig meddelelse om resultat av undersøkelser i Fensfeltet. Norsk Geologisk Tidsskrift (27):66-77.
- Taipale, T K. (1985). The sampling and analyzing methods of radionuclides used in the Nordic countries for environmental samples, *Nordic Liaison Committee for Atomic Energy* (NKA).
- Thompson, M. (2004). The amazing Horwitz function. *AMC Technical Brief No.17*. Royal Society of Chemistry.
- Thørring, H., Wærsted, F., Raaness, A., Skipperud, L. & Jensen, L. (2020). Elevated natural radioactivity in undisturbed forest and mountain areas of arctic Norway – local geology, soil characteristics, and transfer to biota. *Journal of Environmental Radioactivity*, (222): 11.
- UNSCEAR. (2008). Sources and Effects of Ionizing Radiation, *Report to the General Assembly with Scinetific Annexes*. Nations, U. (red.). New York. United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation.
- UNSCEAR. (2018). Sources, Effects and risk of Ionizing Radiation. UNSCEAR 2018. *Report* to the General Assembly, with Scientific Annexxes. New York. United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation.
- Valle, L. (2013). Konsentrasjon og opptak av naturlig radioaktivitet (U-238, Th-232 og Po-210) i bær og sopp i thoriumrike Fensfeltet (Ulefoss, Norge) og mulig dose til befolkningen. Masteravhandling. Norges miljø- og biovitenskapelige universitet, Ås, Norge.
- Whicker, J., Breshears, D., McNaughton, M., Chastenet de Gery, M., Bullock, C. (2021).
 Radionuclide resuspension across ecosystems and environmental disturbances. *Journal of Environmental Radioactivity*, (233):106586. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2021.106586.
- Yr.no. (u.å). Fen. Tillgängligt på: https://www.yr.no/nb/historikk/graf/1-2802248/Norge/Vestfold%200g%20Telemark/Nome/Fen?q=2020-06-21 [Läst 03. mars 2021].
- Yokoya, K., Postel, S., Fang, R., Sarasan, V. (2017). Endophytic fungal diversity of Fragaria vesca, a crop wild relative of strawberry, along environmental gradients within a small geographical area. *PeerJ* (5):e2860.

Appendix

Appendix A: Provpreparering av provmaterial och arbete i laboratorium

Prov	Område	Preparering	Instrument	Inställning	Tid	Notering
Jord	Fensfältet	1. Torkning	Termaks	80 grader	3 dagar	
		2. Pulverisering	RM 200 från Retsch	l	3 minuter	Kvartsmortel
		3 Invägning	Ag204 DeltaRange,			
		5. mvagning	Mettler Toledo			Analysvåg
		4. Lagring			3 veckor	
Jord	Orrefjell	1. Torkning	Termaks	105 grader	24 timmar	
		2. Siktning		2 mm		
		3. Homogeniserade	Sked			
		4. Lagring			3 veckor	
		5. Pulverisering	RM 200 från Retsch	l	3 minuter	Kvartsmortel
		6 Invägning	Ag204 DeltaRange,			
0.1		6. mvagning	Mettler Toledo			Analysvåg
Smultron						
och blad	Fensfältet	1. Invägning				I provbehållare
		2. Frystorka	ALPHA 1-4 (Christ)) (-) 58 grader	1 vecka	
		3. Invägning				
		4. Lagring			3 veckor	
		5. Homogenisering	Mortel utanpå zip-pa	åse		I zip-påse
		(I	Ag204 DeltaRange,			
		6. Invagning	Mettler Toledo			Analysvåg
Blåbär och	Ormafiall					
blåbärsris	Onerjen	1. Sortering	Pincett			
		2. Torkning	Termaks	105 grader	24 timmar	
		3. Homogeniserade	Blender			
		4. Lagring			3 veckor	
		5 June"'	Ag204 DeltaRange,			
		5. Invagning	Mettler Toledo			Analysvåg

Tabell A1: Preparering av jord, bär och blad från Fensfältet och Orrefjell. Tabellen inkluderar typen preparering, vilket instrumnet som användes, tid och inställning.

Tabell B1: Instrumentala inställningar för Agilent ICP-MS QQQ – 8900								
ICP-MS 8900		Bär och blad	Jord (Syrablandning)	Jord (HNO ₃)				
	RF effekt [kW]	1,60	1,60	1,60				
Instrumentala parametrar	Replikat per pov	3	5	3				
	Plasma flöde [L/min]	15,0	15,0	15,0				
	Nebulizer flöde [L/min]	1,06	0,68	1,06				
	Koner		Nickel					
	Nebulizer	Quartz o	concentric nebulizer					
Instrumentala	Nebulizerkammare	Kvarts	Scott doubblepass					
specifikationer	Prov introduktion	ISIS I	Discrete Sampling					
specifikationer	Provtagnings djup [mm]	9,0	10,0	9,0				

Appendix B: Instrumentala inställningar, standardlösningar och husstandard

Tabell B2: Standardlösningar för bär och bladprover.

Paggans	Innehåll	Mörko	Std2	Std1
Keagens	milenan	Iviaike	(koncentration)	(koncentration)
IV-ICPMS- 71B	10,00 μg/mL: Ge, Hf, Mo, Nb, Sb, Si, Sn, Ta, Te, Tl, Zr	Inorganic Ventures	100 µL	
IV-ICPMS- 71A	10,00 μg/mL: Ag, Al, As, B, Ba, Be, Ca, Cd, Ce, Co, Cr3, Cs, Cu, Dy, er, Eu, Fe, Ge, Gd, Ho, K, La, Lu, Mg, Mn, Ne, Nd, Ni, P, Pb, Pr, Rb, S, Se, Sm, Se, Th, Tl, Tm, U, V, Yb, Zn	Inorganic Ventures	100 µL	
IV-ICPMS- 71D	10.00 μg/mL: Bi, In, Li, Sc, Tb, Y	Inorganic Ventures	100 µL	
10,0 mg/L Ti			250 μL	
Ultrapure HNO ₃			5,0 mL	4,5 mL
200 pg/L ²²⁶ Ra			0,5 mL	
Milli-Q-vatten		Barnestead	Upp till 50 mL	Upp till 50 mL
Std2				5,0 mL

Reagens	Innehåll	Märke	Std2 (koncentration)	Std1 (koncentration)
IV-ICPMS-71B	10,00 μg/mL: Ge. Hf, Mo, Nb, Sb, Si, Sn, Ta, Te, Ti, Zr	Inorganic Ventures	500 μL	
IV-ICPMS-71A	10,00 μ g/mL: Ag, Al, As, B, Ba, Be, Ca, Cd, Ce, Co, Cr3, Cs, Cu, Dy, er, Eu, Fe, Ge, Gd, Ho, K, La, Lu, Mg, Mn, Ne, Nd, Ni, P, Pb, Pr, Rb, S, Se, Sm, Se, Th, Tl, Tm, U, V, Yb, Zn	Inorganic Ventures	500 µL	
IV-ICPMS-71D	10.00 μg/mL: Bi, In, Li, Sc, Tb, Y	Inorganic Ventures	500 µL	
1000 mg/L Ti			0,5 mL	
Ultrapure HNO ₃			2,5 mL	2,25 mL
2 delar H ₃ PO ₄ 1 del HNO ₃ 2 delar HBF ₄			0,8 mL	0,72 mL
500 pg/L ²²⁶ Ra			0,5 mL	150 pg/L ²²⁶ Ra
Milli-Q-vatten		Barnestead	Upp till 50 mL	Upp till 50 mL
Std2				5,0 mL

Tabell B3: Standardlösningar för jordprover.

Tabell B4: Husstandarden 1643H användes för kontroll av de standardlösningar som korrigerade drift. Husstandardens uppgivna koncentrationer och tillhörande standardavvik visas för 6 utvalda joner. I tillägg visas den bias som beräknades med ekvation 7, som visar avviket mellan mätresultaten och koncentrationerna i husstandarden.

		1643H			
		Bär och	ı blad	Jor	d
Joner [mg/kg]	1643H	Mätresultat	Bias %	Mätresultat	Bias %
²³² Th	1	1	-	1	-
²³⁸ U	1	1	-	1	-
Pb	$19,63 \pm 0,21$	19,1	2,5	19,2	2
Cd	$6{,}568 \pm 0{,}073$	6,59	-	6,57	-
Dy	1	1	-	1	-
Мо	$121,\!4\pm1,\!3$	124,4	2,5	123,8	2

Appendix C: Detaljer i datanalys

C1. Driftkorrigering:

Korrigering för drift i Agilent ICP-MS QQQ – 8900 gjordes utifrån standardlösning 2 som bestämdes kontinuerligt under analysen. Driften beräknades utifrån följande ekvation:

(5) $Drift_{[i]} = \frac{Std \ 2 \ (startkoncentration)}{\frac{Std \ 2 \ (startkoncentration) + Std \ 2 \ (koncentration \ vid \ mathematication)}{2}}$

C2. Uträkning av relativ standard avvik (RSD):

(6)
$$\operatorname{RSD}[\%] = \left(\frac{Standard \ avvik}{Genomsnitt}\right) * 100$$

C3. Bias:

För kontroll av mätnoggrannheten och systematiska fel i metoden analyserades CRM för både jord och vegetation. Vid avvikelse från det certifierade värdet till CRM⁹ beräknades bias enligt följande ekvation:

(7) % avvikelse =
$$\frac{|M\|atresultat - F\|orv\|antad koncentration|}{F\|orv\|antad koncentration} * 100$$

Där den angivna genomsnittskoncentrationen till CRM användes som den förväntade koncentrationen, och mätresultaten var koncentrationen till respektive jon i CRM som kvantifierades med hjälp av ICP-MS.

C4. Uträkning av detektionsgräns:

(8)
$$LOD = 3 * SD till blankmaterial i [mg/kg]$$

Vid beräkning av LOD användes den genomsnittliga vikten för bär- och bladproverna på 0,283 g, och för jordproverna användes 0,255 g.

C5. Uträkning av kvantifieringsgräns:

(9)
$$LOQ = 10 * SD till blankmaterial i [mg/kg]$$

Vid beräkning av LOQ användes den genomsnittliga vikten för bär- och bladproverna på 0,283 g, och för jordproverna användes 0,255 g.

⁹ För att korrigera för vatteninnehåll i CRM multiplicerades den invägda vikten av CRM med 0,97.

C6. Konvertera µg/L till mg/kg

Dataprogrammet Masshunter (Agilent) uppger mätresultaten i µg/L torrvikt och den önskvärda enheten var mg/kg torrvikt. Proverna vart förtunnade till 50 mL. Vikten på proverna vart antecknat i gram, denna vikt multipliceras med 1000 mL/L för att korrigera för enheterna.

((Koncentration mätt i prov på volymbasis [µg/L] * förtunningsvolym [mL]) *

(vikt av prov [g] * 1000 [mL/L])⁻¹) = mg /g = g/kg.

Exempel för prov 1; Skandium i bärprov 4 replikat 1:

(10) $\underbrace{0.266489 \,\mu g/L * 50 \,mL}_{0,3542 \,g} = 0.037618 \,\mu g/g = 0.037618 \,mg/kg$

Framgångssättet användes också för blankproverna, med en genomsnittlig vikt på 0,283 g för bär och blad proverna, och 0,255 g för jordproverna.

C7. Konvertera pg/L till Bq/kg (Beräkningar enligt excel-ark till Karl-Andreas Jensen, NMBU)

(((Koncentration mätt i prov på volymbasis [pg/L] * förtunningsvolym [mL] / 1000) * 10^{-12}) / Massan till radionukliden [g/mol]) * Avogrados konstant) * (ln(2))/halveringstiden till radionukliden [sekunder]/ (vikt av prov [g] / 1000 [mL/L])) / ($e^{-\lambda t}$))

Där $e^{-\lambda t}$ är ett uttryck för att korrigera för halveringstiden. $\lambda = \ln 2/t_{1/2}$ och t hänvisar till tidsskillnaden mellan provtagningsdatumet och datumet vid analysen.

Följande exempelv är beräknad från ²²⁶Ra i ett av jordproven:

$$(11) \left(\frac{\frac{33,24}{L}\frac{pg}{L}*\frac{500}{1000}\frac{mL}{L}*10^{-12}}{226,025\frac{g}{mol}}*6,0221509*10^{23})*\left(\frac{\left(\frac{\ln\left(2\right)}{\frac{1600}{n}*31556926\,sekunder}\right)}{\left(\frac{\left(\frac{0,2569}{1000}\right)}{1000}\right)}{e^{-\frac{\ln\left(2\right)}{1600}*0,61}}\right)$$

Enligt ekvation (11) har en koncentration av ²²⁶Ra på 64,69 ng/kg en aktivitskoncentration på 2367 Bq/kg.

För att beräkna aktivitetskoncentrationen till ²²⁶Ra i bär-, blad- och jordproverna som bestämdes med ICP-MS konverterades pg/L till Bq/kg för samtliga tre replikat och genomsnittet användes till vidare analys.

Appendix D: Detektionsgräns (LOD) och kvantifieringsgräns (LOQ)

MDA [Bq/kg]								
Station	Bär	Blad	Jord 1	Jord 2				
1	3,2	7,2	13	9,9				
2	11	7,1	10	6,7				
3	25	-	4,0	8,0				
4	18	-	4,6	7,2				
5			16					

Tabell D1: Detektionsgräns för HPGe. Enbart en MDA var angivet från Station 5.

Tabell D2: Detektionsgräns (LOD) och kvantifieringsgräns (LOQ) för As, Pb och Cd ICP-MS.

	Bär o	ch blad	Jord			
	LOD	LOQ	LOD	LOQ		
As [mg/kg]	0,0004	0,0014	0,005	0,019		
Pb [mg/kg]	0,009	0,029	0,04	0,13		
Cd [mg/kg]	0,0005	0,0018	0,005	0,018		

Appendix E: Mätresultat av CRM

	Jord											
Referens-		²²⁶ Ra	²³² Th	²³⁸ U	As	Pb	Cd	Sc	Ti			
material:		[Bq/kg]	[mg/kg]	[mg/kg]	[mg/kg]	[mg/kg]	[mg/kg]	[mg/kg]	[g/kg]			
NCS	CRM	-	28 ± 2	5,9 ± 0,3	18 ± 2	61 ± 2	$0,25 \pm 0,02$	$14,0 \pm 0,5$	-			
ZC73007	Mätresultat	<lod< td=""><td>30,8</td><td>6,5</td><td>20</td><td>64</td><td>0,29</td><td>14</td><td>6</td></lod<>	30,8	6,5	20	64	0,29	14	6			
	% Bias	-	10	10	0	5	16	0	-			
NCS	CRM	-	9,1 ± 0,7	$2,2 \pm 0,4$	4,8 ± 1,3	14 ± 3	0,08 ± 0,02	28 ± 2	$\begin{array}{c} 20,2 \pm \\ 0,5 \end{array}$			
DC73325	Mätresultat	<lod< td=""><td>9,3</td><td>2,27</td><td>6,58</td><td>12,37</td><td>0,088</td><td>29</td><td>20,4</td></lod<>	9,3	2,27	6,58	12,37	0,088	29	20,4			
	% Bias	-	0	0	37	0	0	0	0			
	CRM	19050 ± 260										
IAEA-488	Mätresultat	15877										
	% Bias	17%										

Tabell E1: Mätnoggrannheten i analysen i ICP-MS kontrollerades med certifierat referensmaterial. Resultaten från mätningen i jord. Talen är inte korrigerade för gällande siffror. Celler markerade med gulfärg har en bias $\geq 16\%$ och grönfärg har en bias $\leq 10\%$.

Tabell E2: Mätnoggrannheten i analysen i ICP-MS kontrollerades med certifierat referensmaterial. Resultaten från mätningen i bär och blad. Talen är inte korrigerade för gällande siffror. Celler markerade med gulfärg har en bias mellan 13-18%, och rödfärg har en bias $\geq 43\%$.

	Bär och blad										
Defense		²²⁶ Ra	²³² Th	²³⁸ U	As	Pb	Cd	Sc	Ti		
material:		[ng/kg]	[mg/kg]	[mg/kg]	[mg/kg]	[mg/kg]	[mg/kg]	[mg/kg]	[mg/kg]		
NCS	CRM	-	0,114 ± 0,19	0,089 ± 0,011	0,23 ± 0,03	11,1 ± 0,9	$0,150 \pm 0,025$	-	-		
ZC73013 (Te)	Mätresultat	<lod< td=""><td>0,118</td><td>0,154</td><td>0,26</td><td>11,9</td><td>0,214</td><td>0,1</td><td>17</td></lod<>	0,118	0,154	0,26	11,9	0,214	0,1	17		
	% Bias	-	0	73	0	0	43	-	-		
1.550	CRM	-	0,048 ± 0,003	-	0,068 ± 0,012	-	$2,89 \pm 0,07$	-	-		
(Spenat blad)	Mätresultat	<lod< td=""><td>0,042</td><td>0,15</td><td>0,067</td><td>0,18</td><td>2,87</td><td>0,049</td><td>15</td></lod<>	0,042	0,15	0,067	0,18	2,87	0,049	15		
	% Bias	-	13	-	0	-	0	-	-		
NCSZC7301 4 (Spenat)	CRM	-	0,038 ± 0,012	0,010 ± 0,002	0,09 ± 0,01	$1,5 \pm 0,2$	0,062 ± 0,004	-	-		
	Mätresultat	<loq< td=""><td>0,037</td><td>0,010</td><td>0,089</td><td>1,5</td><td>0,073</td><td>0,030</td><td>6,8</td></loq<>	0,037	0,010	0,089	1,5	0,073	0,030	6,8		
	% Bias	-	0	0	0	0	18	-	-		

Appendix F: Totalkoncentration av radionuklider och spårmetaller i bär, blad och jordproverna.

	Totalkoncentration		Bär			Blad		Jord		
Totalko	ncentration	²²⁶ Ra	²³² Th	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²³² Th	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²³² Th	²³⁸ U
		[ng/kg]	[mg/kg]	[mg/kg]	[ng/kg]	[mg/kg]	[mg/kg]	[ng/kg]	[mg/kg]	[mg/kg]
G	Genomsnitt	<lod< th=""><th>0,86</th><th>0,0030</th><th><lod< th=""><th>0,52</th><th>0,045</th><th><lod< th=""><th>1708</th><th>12</th></lod<></th></lod<></th></lod<>	0,86	0,0030	<lod< th=""><th>0,52</th><th>0,045</th><th><lod< th=""><th>1708</th><th>12</th></lod<></th></lod<>	0,52	0,045	<lod< th=""><th>1708</th><th>12</th></lod<>	1708	12
Station	SD		1,1	0,0022		0,034	0,068		53	1,9
1	RSD [%]		129	71		7	152		3	15
Station	Genomsnitt	<loq< th=""><th>0,0087</th><th>0,0047</th><th><lod< th=""><th>0,192</th><th>0,0040</th><th><lod< th=""><th>1381</th><th>9,3</th></lod<></th></lod<></th></loq<>	0,0087	0,0047	<lod< th=""><th>0,192</th><th>0,0040</th><th><lod< th=""><th>1381</th><th>9,3</th></lod<></th></lod<>	0,192	0,0040	<lod< th=""><th>1381</th><th>9,3</th></lod<>	1381	9,3
Station	SD		0,0029	0,0021		0,009	0,00022		177	0,9
4	RSD [%]		33	44		5	6		13	10
Station	Genomsnitt	<loq< th=""><th>0,075</th><th><loq< th=""><th></th><th></th><th></th><th><lod< th=""><th>957</th><th>6,2</th></lod<></th></loq<></th></loq<>	0,075	<loq< th=""><th></th><th></th><th></th><th><lod< th=""><th>957</th><th>6,2</th></lod<></th></loq<>				<lod< th=""><th>957</th><th>6,2</th></lod<>	957	6,2
Station	SD		0,013						53	2,0
5	RSD [%]		17						5	33
Station	Genomsnitt	<lod< th=""><th>0,27</th><th>0,0075</th><th></th><th></th><th></th><th><lod< th=""><th>420</th><th>8,2</th></lod<></th></lod<>	0,27	0,0075				<lod< th=""><th>420</th><th>8,2</th></lod<>	420	8,2
Station	SD		0,12	0,00309					49	2,2
-	RSD [%]		44	41					12	27
Station	Genomsnitt	38	<loq< th=""><th>0,022</th><th>142</th><th>0,00163</th><th>0,246</th><th>74</th><th>1,1</th><th>54</th></loq<>	0,022	142	0,00163	0,246	74	1,1	54
Station 5	SD	1,7		0,027	2,8	0,00054	0,021	13	0,036	0,73
5	RSD [%]	5		123	2	33	8	17	3	1

Tabell F1: Totalkoncentration av de kvantifierade radionukliderna 226 Ra, 232 Th och 238 U i bär, blad och jord. N=3 (bär och blad) N=6 (jord). Talen är inte korrigerade med gällande siffror.

Tabell F2: Totalk	oncentration av d	e kvantifierade s	spårmetallerna A	As, Pb och	Cd i bär,	blad
och jord. N=3 (bä	r och blad) N=6 (jord). Talen är in	nte korrigerade i	med gällan	de siffror	

Totalkoncentration [mg/kg]		Bär				Jord				
		As	Pb	Cd	As	Pb	Cd	As	Pb	Cd
Station 1	Genomsnitt	0,0079	0	0,038	0,0124	0,11	0,038	19	104	2,7
	SD	0,0023	0	0,0015	0,00083	0,0010	0,0077	1,5	16	0,89
	RSD [%]	29	26	4	7	1	20	8	16	34
Station 2	Genomsnitt	0,0023	<lod< th=""><th>0,027</th><th>0,0110</th><th>0,13</th><th>0,020</th><th>14</th><th>89</th><th>2,0</th></lod<>	0,027	0,0110	0,13	0,020	14	89	2,0
	SD	0,00032		0,00050	0,00070	0,0042	0,0005	2,4	2,4	0,36
	RSD [%]	14		2	6	3	2	17	3	18
Station 3	Genomsnitt	0,0043	<loq< th=""><th>0,033</th><th></th><th></th><th></th><th>16</th><th>85</th><th>1,5</th></loq<>	0,033				16	85	1,5
	SD	0,00033		0,00059				0,67	11	0,45
	RSD [%]	8		2				4	12	31
Station 4	Genomsnitt	0,0053	0,025	0,018				6	54	0,62
	SD	0,00095	0,0011	0,00049				0,19	4,7	0,072
	RSD [%]	18	4	3				3	9	12
Station 5	Genomsnitt	0,002286	0,034	0,0061	0,0060	0,072	0,012	0,68	24	0,46
	SD	0,00018	0,0051	0,000078	0,00042	0,0052	0,00064	0,027	0,51	0,0029
	RSD [%]	8	15	1	7	7	5	4	2	1

Appendix G: Andel av den totala aktiviteten eller koncentrationen som beror på deponering

% Av totala aktiviteten i planta som beror på deposition			B	är	C	Blad			
Lokalitet:	Indikator:	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²³² Th	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²³² Th	²³⁸ U
Station 1	Sc	-	10	37	76	-	1	108	9
	Ti	-	11	43	88	-	4	275	23
Station 2	Sc	-	0,3	195	2	-	1	176	56
	Ti	-	1,6	1191	15	-	3	630	203
Station 3	Sc	-	1	108	-	-	-	-	-
	Ti	-	2	216	-	-	-	-	-
Station 4	Sc	-	-	76	54	-	-	-	-
	Ti	-	-	21	15	-	-	-	-
Station 5	Sc	-	-	-	_	0,13	-	162	53
	Ti	0,068	-	-	85	0,11	-	137	44

Tabell G1: Andel av den totala aktiviteten i ²²⁶Ra, ²²⁸Ra, ²³²Th och ²³⁸U som beror på deponering på bär och blad beräknat med jorddeponeringsestimat av Sc och Ti.



Norges miljø- og biovitenskapelige universitet Noregs miljø- og biovitskapelege universitet Norwegian University of Life Sciences Postboks 5003 NO-1432 Ås Norway