



**STUK-A206/** ELOKUU 2004

# VESILAITOSTEN VEDENKÄSITTELYN VAIKUTUS LUONNON RADIONUKLIDIPITOISUUKSIIN

K. Hämäläinen, P. Vesterbacka, I. Mäkeläinen, H. Arvela

Tässä raporttisarjassa esitetyt johtopäätökset ovat tekijöiden johtopäätöksiä, eivätkä ne välttämättä edusta Säteilyturvakeskuksen virallista kantaa.

ISBN 951-712-886-X (print)

ISBN 951-712-887-8 (pdf)

ISSN 0781-1705

Dark Oy, Vantaa, 2004

Myynti:

Säteilyturvakeskus

PL 14, 00881 Helsinki

Phone: (09) 759881

Fax: (09) 75988500

*HÄMÄLÄINEN Kai, VESTERBACKA Pia, MÄKELÄINEN Ilona, ARVELA Hannu. Vesilaitosten vedenkäsittelyn vaikutus luonnon radionuklidipitoisuuksiin. STUK-A206. Helsinki 2004. 61 s. + liitteet 11 s.*

**Avainsanat** luonnon radioaktiivisuus, vesilaitos, vedenkäsittely, pohjavesi

## Tiivistelmä

Hankkeessa tutkittiin uraanin ja muiden luonnon radioaktiivisten aineiden esiintymistä vesilaitosten vedessä ja vedenkäsittelyprosessien vaikutuksia luonnon radionuklidipitoisuuksiin. Tutkimukseen valittiin mukaan 17 vesilaitosta. Tutkittujen vesien radionuklidipitoisuuksia on verrattu voimassa olevien raja-arvojen (ohje ST 12.3) lisäksi vesidirektiivissä (98/83/EY) ja komission suosituksessa (2001/928/Euratom) esitettyihin pitoisuuksiin. Uraanin esiintymistä on tarkasteltu myös sen kemiallisen toksisuuden kannalta. Raportissa on esitetty aikaisempiin julkaisuihin perustuva yhteenveto luonnon radioaktiivisuudesta vesilaitosvedessä. Lisäksi tutkittiin veden radioaktiivisten aineiden pitoisuuksien ajallista vaihtelua vedenottamoiden raakavedessä.

Tutkimukseen valittiin mukaan vedenottamoita, jotka käyttivät erilaisia raakavesilähteitä ja vedenkäsittelymenetelmiä. Vesinäytteitä otettiin yhteensä 46 eri vedenottamolta, joissa käytettiin raakavetenä maaperän pohjavettä, tekopohjavettä tai kalliopohjavettä. Yleisin vedenkäsittelymenetelmä ottamoilla oli alkalointi. Muita tutkittuja käsittelymenetelmiä olivat suodatukset (hiekk-, antrasiitti-, hidas- ja kalvosuodatus) ja ilmastus. Neljä vedenottamoa jakoi vettä ilman käsittelyä.

Näytteenotto suoritettiin yhteistyössä kunnan terveystarkastajien ja vesilaitosten henkilökunnan kanssa keväällä 2002. Myöhemmin syksyllä otettiin seurantanäytteitä kahdeksalta ottamolta.

Ohjeen ST 12.3 mukainen vesilaitosveden radonpitoisuuden enimmäisarvo ylittyi kolmella kalliopohjavettä käyttävällä ottamolla. Maaperän pohjavettä ja tekopohjavettä käyttävillä ottamoilla ylityksiä ei havaittu. Vesidirektiivissä (98/83/EY) esitetyn viitteellisen kokonaisannoksen perusteella laskettujen uraanin ja radiumin pitoisuuksien ylityksiä ei havaittu, mutta komission suosituksessa (2001/928/Euratom) esitetty lyijypitoisuus ylittyi yhdellä ja poloniumipitoisuus kolmella ottamolla.

Tutkituista käsittelymenetelmistä kalvosuodatus poisti yli 90 % ja hieka- ja antrasiittisuodatukset 10 – 20 % veden uraanista. Hidassuodatusta käytävillä ottamoilla uraanin poistuma vaihteli paljon. Pelkän alkaloinnin tai verkoston vaikutus uraanipitoisuuteen oli vähäinen.

Vedenkäsittelyn yhteydessä tapahtuva ilmastus todettiin tehokkaaksi radonin poistomenetelmäksi. Poloniumin poistuma hieka- ja antrasiittisuodatuksissa oli lähes kaikissa tapauksissa yli 70 %.

Radonpitoisuus laskee jakeluverkossa lähinnä radioaktiivisen hajoamisen vuoksi. Samasta syystä radioaktiivisen lyijyn, joka on radonin pitkäikäinen hajoamistuote, pitoisuus verkostossa kasvaa.

Vertailtaessa tämän tutkimuksen ja aikaisemmin STUKissa samoilta ottamoilta mitattujen näytteiden pitoisuuksia havaittiin, että vedenottamoveden uraani- ja radonpitoisuus pysyivät tasaisina sekä lyhyellä että pitkällä aikavälillä. Lyijyn ja poloniumin pitoisuuksien vaihtelu oli lyhyellä aikavälillä suurempaa kuin uraanilla ja radonilla.

*HÄMÄLÄINEN Kai, VESTERBACKA Pia, MÄKELÄINEN Ilona, ARVELA Hannu. Effects of water treatment processes used at waterworks on natural radionuclide concentrations. STUK-A206. Helsinki 2004. 61 pp + 11 pp appendices.*

**Keywords** natural radioactivity, waterworks, water treatment, ground water

## **Abstract**

The occurrence of uranium and other natural radionuclides in waters of waterworks and the effects of the conventional water treatment processes on radionuclide concentrations were investigated. Water samples were collected from 17 waterworks. Radionuclide concentrations of the collected samples were compared to the currently valid concentrations according to the Finnish regulation, ST guide 12.3. Similarly the measured concentrations were compared to the values presented in the 98/83/EC directive and in the Commission recommendation, 2001/928/Euratom. The guidelines based on chemical toxicity of uranium were also considered. This report presents a summary of the radionuclide concentrations in waters distributed by waterworks. Short-term and long-term temporal variation of radionuclide levels in raw water were also investigated.

Waterworks selected to this study used different kinds of raw water sources and a variety of water treatment processes. Water samples were collected from 46 water catchments which used groundwater in soil, artificial groundwater or groundwater in bedrock as a source of raw water. The most common water treatment used in these catchments was alkalization. Other treatment processes used were various types of filtrations (sand, anthracite, slow sand and membrane filtration) and aeration. Four of the catchments distributed water without treatment.

Sampling was carried out in co-operation with local health inspectors and waterworks staff in spring 2002. Later that autumn, monitoring samples were collected from eight catchments.

The maximum value for radon, presented in ST guide 12.3, was exceeded in three water catchments that used groundwater in bedrock as a source of raw water. No exceedings were found in those water catchments that use groundwater in soil or artificial groundwater. The limits of uranium and radium calculated from the total indicative dose (98/83/EC) were not exceeded but the

guidelines for lead and polonium, given in the Commission recommendation (2001/928/Euratom), were exceeded for lead in one and for polonium in three catchments.

Membrane filtration removed over 90% and sand filtration 10–20% of uranium in raw water. Uranium reduction varied a lot in the catchments using slow sand filtration. Mere alkalization did not affect the uranium concentration. The reduction of uranium in the distribution system was also low.

Aeration during water treatment process was recognized as an effective radon removal method. Polonium removal in sand filtration was over 70% in almost each case studied.

Radon concentration decreases in the distribution system because of radioactive decay. For the same reason the concentration of radioactive lead, which is a long-lived decay product of radon, is elevated in the distribution system.

The results of this study and the former results in the STUK database show that the uranium and radon concentrations remained quite stable both over short and long time period in raw waters used by water catchments. Whereas, lead and polonium concentrations varied a lot over a short time period compared to those of uranium and radon.

# Sisällysluettelo

Tiivistelmä	3
Abstract	5
Alkusanat	8
1 Johdanto	9
2 Talusveden tuotanto Suomessa	11
3 Luonnon radioaktiiviset aineet vesilaitosvedessä	12
3.1 Radioaktiivisten aineiden enimmäispitoisuudet vesilaitosten jakamassa vedessä	13
3.2 Uraanin kemiallinen myrkyllisyys	16
4 Vedenkäsittelymenetelmät pohjavedenottoa	17
4.1 Alkalointi	17
4.2 Ilmastus	19
4.3 Suodatus	21
4.4 Desinfiointi	27
5 Aineisto ja menetelmät	29
5.1 Tutkimukseen valittujen vedenottamoiden vedenkäsittely	31
5.2 Näytteenotto	34
6 Tulokset	36
6.1 Raakaveden radionuklidipitoisuudet	36
6.2 Uraanin kemiallinen myrkyllisyys	37
6.3 Radioaktiivisuuden ajallinen vaihtelu vedenottamoiden raakavedessä	38
6.4 Käsittelyiden vaikutus radionuklidipitoisuuksiin	46
6.5 Verkoston vaikutus luonnon radionuklidipitoisuuksiin	52
7 Johtopäätökset	54
8 Kirjallisuusviitteet	56
LIITE 1 $^{238}\text{U}$ :n ja $^{232}\text{Th}$ :n hajoamissarjat	62
LIITE 2 Vesilaitoslomake	63
LIITE 3 Analyysimenetelmät	65
LIITE 4 Analyysien määrittämissarjat	67
LIITE 5 Tulosten käsittely	69

## Alkusanat

Tekijät haluavat kiittää tutkimuksessa mukana olleiden vesilaitosten henkilökuntaa ja kuntien terveystarkastajia, jotka mahdollistivat tutkimuksen aineiston kokoamisen. Lisäksi haluamme kiittää laboratoriomestari Sirkka Hämmäläistä ja Sointu Starckia sekä apulaistutkija Pirjo Makkosta tutkimukseen liittyvästä laboratoriotyöstä, erikoistutkija Laina Salosta ja tutkija Tuukka Turtiaista arvokkaista keskusteluista ja kommenteista tutkimuksen tulosten käsittelyn sekä raportoinnin yhteydessä ja sihteeri Jaana Joenvuori-Arstiota käännösavusta ja raportin taittotyöstä.

Sosiaali- ja terveysministeriö on tukenut tätä tutkimusta.



# 1 Johdanto

Luonnon radioaktiivisten aineiden pitoisuudet riippuvat merkittävästi käytetystä raakavesilähteestä. Pintavedessä pitoisuudet ovat hyvin pieniä. Maaperän pohjavedessä pitoisuudet ovat korkeampia, mutta ne alittavat yleensä veden radioaktiivisuudelle asetetut suositukset. Kalliopohjavedessä luonnon radioaktiivisten aineiden pitoisuudet ovat selvästi korkeampia.

Pohjavedessä esiintyvät luonnon radioaktiiviset aineet ovat peräisin kallioperässä olevista uraanista, toriumista ja näiden hajoamistuotteista. Uraanisarjan nuklideista säteilyvaikutuksen kannalta merkittävin on radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) ja sen lyhytikäiset tytärnuklidit (Asikainen ja Kahlos 1980, Salonen 1994 ja Vesterbacka ym. 2004). Radonin puoliintumisaika on 3,8 vuorokautta. Vedessä uraanin hajoamissarjan pitkäikäisistä nuklideista säteilyannosta aiheuttavat uraani ( $^{238}\text{U}$  ja  $^{234}\text{U}$ ), radium ( $^{226}\text{Ra}$ ), lyijy ( $^{210}\text{Pb}$ ) ja polonium ( $^{210}\text{Po}$ ). Toriumisarjan nuklideita esiintyy Suomen pohjavedessä melko vähän. Näistä säteilyannoksen kannalta merkittävin on  $^{228}\text{Ra}$ . Uraanin ja toriumin hajoamissarjat on esitetty liitteessä 1.

Radionuklidin kemiallis-fysikaalinen olomuoto, spesiaatio, vedessä riippuu nuklidista ja veden laadusta. Radonia lukuun ottamatta luonnon radioaktiiviset aineet ovat vedessä liuenneina ioneina, kompleksisina yhdisteinä tai kiinnittyneinä vedessä olevaan partikkeliainekseen. Radon sen sijaan on veden helposti liukeneva kaasumainen aine.

Veden radioaktiivisten aineiden suhteen vesilaitoksia sekä ammattimaisia juoman ja elintarvikkeiden tuottajia sitoo vuonna 1993 annettu ohje ST 12.3 "Talousveden radioaktiivisuus". Tämän jälkeen on annettu Sosiaali- ja terveystieteiden ministeriön (STM) asetus talousveden laatuvaatimuksista ja valvontatutkimuksista (STM 461/2000), joka perustuu Euroopan yhteisöjen neuvoston direktiiviin 98/83/EY. Talousvesiasetuksen ja vesidirektiivin mukaista radioaktiivisten aineiden valvontaa ei ole vielä toteutettu, koska radioaktiivisten aineiden valvontaa koskevien direktiivin liitteiden sisällön vahvistaminen on viivästynyt. Tämän vuoksi valvonta suoritetaan edelleen ohjeen ST 12.3 mukaan. Vesidirektiivistä on rajattu pois radon, polonium ja lyijy. Niille on annettu komission suosituksessa (2001/928/Euratom) viitearvot.

Ohjeen ST 12.3 uraanin enimmäispitoisuudet perustuvat säteilystä aiheutuviin terveyshaittoihin. Juomaveden uraani on haitallinen aine myös kemiallisesti. EU:ssa kemialliseen myrkyllisyyteen perustuvaa raja-arvoa ei ole vielä annettu. WHO:n uraanin kemialliseen myrkyllisyyteen perustuva suositushjearvo (provisional guideline) talousveden uraanipitoisuudelle on

0,015 mg/l (WHO 2003). Yhdysvaltojen ympäristöviranomaisen EPA:n asettama enimmäispitoisuus (Maximum Contaminant Level) on 0,030 mg/l (EPA 2000).

Vesilaitosten vedenkäsittelyn vaikutus luonnon radionuklidipitoisuuksiin (VEERA) projektissa tutkittiin erilaisten käsittelyjen sekä verkoston vaikutuksia veden uraanin ja muiden luonnon radionuklidien pitoisuuksiin. Lisäksi projektissa arvioitiin vedenottamoiden käyttämän raakaveden luonnon radionuklidipitoisuuksien ajallista vaihtelua käyttämällä hyväksi sekä projektissa saatuja että Säteilyturvakeskuksen (STUK) aikaisempia tuloksia.

## 2 Talousveden tuotanto Suomessa

Suomessa talousveden tuotannosta vastaavat yleensä vesilaitokset ja -osuuskunnat. Nämä käyttävät raakavesilähteinään pintavettä, maaperän pohjavettä, kalliopohjavettä tai tekopohjavettä. Vuonna 1999 Suomen väestöstä vesihuollon piirissä oli 89 % (Lapinlampi ja Raassima 2002). Vesilaitosten ja -osuuskuntien lisäksi haja-asutusalueilla joudutaan usein turvautumaan yksityisiin pora- tai rengaskaivoihin.

Suomessa pohjavesiesiintymät ovat suhteellisen pieniä, joten suurissa asutuskeskuksissa käytetään myös pintavettä vedentuotantoon. Pienemmillä paikkakunnilla raakavesilähteenä käytetään usein maaperän pohjavettä tai kalliopohjavettä. Pohjaveden käyttö on lisääntynyt viime aikoina, koska sille riittää yksinkertaisempi käsittely kuin pintavedelle. Vuonna 1999 pumpatun pohjaveden määrä oli 59 % ottamoiden kokonaisuudessaan pumppaamasta vesimäärästä. Tähän lukuun sisältyy myös tekopohjavedet (Lapinlampi ja Raassima 2002). Talousveden tuotannosta pohjaveden osuuden on arvioitu olevan 70 – 75 % vuoteen 2010 mennessä (Hatva 1996). Kalliopohjavettä käytetään lähinnä yksityistalouksien ja pienten vesiosuuskuntien vedentuotossa, koska porakaivojen antoisuudet ovat melko pieniä. Normaalisti porakaivojen vedentuotto on välillä 10 – 50 m<sup>3</sup>/vrk (Lahermo ym. 2002). Suurituottoisia porakaivoja löytyy lähinnä kallioperän ruhjevyöhykkeillä.

Vuonna 1993 maaperän pohjavettä raakavetenään käyttävistä laitoksista 43 % ei käsitellyt vettä lainkaan. Pinta- ja tekopohjaveden ottamoille vastaavat luvut ovat 6 % ja 19 % (VYH-A192 1995). Tekopohjavesi tehdään suodattamalla pintavettä maaperän läpi ja keräämällä suodatettu vesi käyttöön samanlaisilla vedenottamoilla kuin maaperän pohjavesi. Suodokseen sekoittuu myös maaperän pohjavettä.

Vedenkäsittelyn tarkoitus on saada raakavedestä laatuvaatimukset täyttävää talousvettä. Liiallinen happamuus ja korkeat rauta- ja mangaanipitoisuudet aiheuttavat ongelmia laatuvaatimusten täyttymisessä pohjavedessä koko maassa, kun taas korkeat fluoridi- ja arseenipitoisuudet ovat ongelmallisia lähinnä alueellisesti. Pintavedessä käsittelytarpeen aiheuttavat yleensä korkeat humuspitoisuudet ja bakteerit. Yleisiä käsittelymenetelmiä ovat alkalointi, desinfiointi, ilmastus ja erilaiset suodatukset.

### 3 Luonnon radioaktiiviset aineet vesilaitosvedessä

Uraani- ja toriumsarjan nuklidit liukenevat pohjaveteen ympäröivästä kalliosta ja maaperästä. Näiden lisäksi pohjavedessä esiintyy tritiumia ( $^3\text{H}$ ) ja kaliumin radioaktiivista isotooppia ( $^{40}\text{K}$ ). Pääosa luonnon tritiumista syntyy kosmisen säteilyn vaikutuksesta ilmakehän tyypestä, mutta pieniä määriä tritiumia tulee ilmakehään myös suoraan auringosta. Luonnollisten lähteiden lisäksi tritiumpitoisuuksia kohottavat ydinvoimaloiden päästöt. Myös ilmakehässä tehdyt vetytommikoeket ovat kohottaneet tritiumpitoisuuksia. Tritium kuluu pohjaveteen vesimolekyylin osana normaalin hydrologisen kierron vaikutuksesta. Luonnossa oleva  $^{40}\text{K}$  on peräisin aurinkokuntamme ja maapallon synnystä 4,5 miljardia vuotta sitten. Se käyttäytyy stabiilin kaliumin tavoin ja sitä on luonnon kaliumista 0,0117 %.  $^{40}\text{K}$ :n puoliintumisaika on  $1,26 \cdot 10^9$  vuotta, joten se säilyy luonnossa hyvin pitkään (Choppin ym. 2002). Keinotekoisia radionuklideja Suomen pohjavedessä on hyvin vähän (Salonen ja Saxén 1991).

Taulukossa 1 on esitetty Suomessa eri raakavesilähteitä käyttävien vedenottamoiden radon, radium ja kokonaisalfapitoisuuksien keskiarvot (Salonen 1994) ja verkostoveden käyttäjämäärillä painotetut keskimääräiset pitoisuudet (Mäkeläinen ym. 2001). Kokonaisalfapitoisuus kertoo nuklidien  $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  ja  $^{210}\text{Po}$  yhteenlasketun aktiivisuuden.

**Taulukko 1.** Vedenottamoiden raakaveden ja verkostoveden radionuklidipitoisuuksia Suomessa.

Vesityyppi	Ottamoita kpl	Kok. Alfa Bq/l	Radium-226 Bq/l	Radon-222 Bq/l	Uraani $\mu\text{g/l}$ (arvio kok. alfasta)
Pintavesi <sup>1</sup>	129	0,029	0,003	<3	1,0
Maaperän pohjavesi <sup>1</sup>	716	0,068	0,009	55	2,4
Tekopohjavesi <sup>1</sup>	12	0,045	0,005	38	1,6
Kalliopohjavesi <sup>1</sup>	46	0,25	0,068	320	4–7
Verkostovesi <sup>2,3</sup>	-	0,041 <sup>4</sup>	0,003	27	-

<sup>1</sup> Salonen 1994

<sup>2</sup> Mäkeläinen ym. 2001

<sup>3</sup> Keskimääräiset, käyttäjämäärillä painotetut keskiarvot

<sup>4</sup> Kokonais-alfa on laskettu  $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  ja  $^{210}\text{Po}$  pitoisuuksien summana

Taulukon 1 kokonaisalfapitoisuuden perusteella voidaan arvioida keskimääräisten uraanipitoisuuksien arvoja eri raakavesilähteitä käytävillä vedenottamoilla. Arvioissa on käytetty kalliopohjavedelle uraanisotooppisuhteita ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) 1 ja 3, koska STUKissa mitattujen noin tuhannen porakaivoveden isotooppisuhteista 90 % on tuolla välillä. Muille vesityypeille suhde on hieman yhtä suurempi (Osmond ja Cowart 1976 ja Salonen ja Huihuri 2002), mutta taulukon arvioita laskettaessa on käytetty suhdetta 1.

Vesilähteestä johtuvia veden uraanipitoisuuden eroja voidaan selittää veden kiertokulkua tarkastelemalla. Sadeveden uraanipitoisuus on alle 1  $\mu\text{g/l}$  (Szefer ja Szefer 1986). Sadevedestä osa päätyy suoraan pintavedeksi ja osa suodattuu valuma-alueen maaperän läpi pinta- ja pohjavedeksi (Lahermo ym. 1996). Maaperän pohjaveden uraanipitoisuudet ovat korkeampia kuin pinta-veden, koska maaperästä liukenee veteen uraania. Maaperän pohjavedestä pintavedeksi päätyvä osa kohottaa pintaveden uraanipitoisuutta. Tekopohjaveden uraanipitoisuus on pinta- ja pohjaveden pitoisuuksien välillä, koska tekopohjavesi tehdään imeyttämällä pintavettä maaperän läpi ja prosessin aikana imeytettyyn veteen sekoittuu pohjavettä. Lisäksi imeytettävään pinta-vedeen liukenee maaperästä uraania. Kalliopohjaveden uraanipitoisuudet ovat selvästi korkeampia kuin muissa vesilähteissä, koska kalliopohjaveden viipymät kallioperässä ovat pitkiä. Samoista syistä myös muiden radionuklidien pitoisuudet vaihtelevat vesilähteestä riippuen.

### **3.1 Radioaktiivisten aineiden enimmäispitoisuudet vesilaitosten jakamassa vedessä**

Säteilyturvakeskuksen vuonna 1993 antamaa ohjetta ST 12.3 "Talousveden radioaktiivisuus" sovelletaan tällä hetkellä (vuonna 2004) vesilaitosten jakamaan ja muiden ammattimaisten toiminnan harjoittajien käyttämään veteen radioaktiivisuuden osalta. Ohjeen turvallisuustavoite on, että talousveden radioaktiivisuudesta ei saa aiheutua 0,5 mSv:iä suurempaa vuotuista efektiivistä annosta. Nuklidista aiheutuva vuotuinen efektiivinen annos, joka kuvaa säteilyn aiheuttamaa terveydellistä kokonaishaittaa, saadaan lasketta kertomalla vuodessa kulutettu vesimäärä nuklidin annosmuunto-kertoimella ja veden aktiivisuuspitoisuudella. Veden radioaktiivisten aineiden aiheuttama efektiivinen kokonaisannos saadaan laskemalla yksittäisten nuklidien aiheuttamien efektiivisten annosten summa.

Ohjeen ST 12.3 käytännön valvonnan helpottamiseksi otettu käyttöön aktiivisuusindeksi, jonka avulla voidaan arvioida veden radioaktiivisten aineiden yhdessä aiheuttamaa efektiivistä annosta. Taulukossa 2 on esitetty

**Taulukko 2.** Voimassa olevan (vuonna 2004) ohjeen ST 12.3 indeksin laskennassa käytettävät aktiivisuuspitoisuudet tutkituille luonnon radionuklideille.

Radionuklidi	Aktiivisuuspitoisuus Bq/l
<sup>238</sup> U	20
<sup>234</sup> U	20
<sup>226</sup> Ra	3
<sup>222</sup> Rn	300
<sup>210</sup> Pb	0,5
<sup>210</sup> Po	3

aktiivisuusindeksin laskemisessa käytettävät nuklidien aktiivisuuspitoisuudet, joiden määrittämisessä on käytetty annosmuunnoskertoimina vuonna 1993 voimassa olleita arvoja (ICRP 1991, Kendall ym. 1988). Indeksien arvo saadaan jakamalla veden kunkin nuklidin pitoisuus taulukosta saatavalla aktiivisuuspitoisuudella ja laskemalla osaindeksit yhteen. Turvallisuustavoite alittuu, kun indeksin arvo on pienempi kuin 1. Taulukon 1 jokainen aktiivisuuspitoisuus vastaa 0,5 mSv/a annosta, kun henkilön vedenkulutus on 2,2 litraa päivässä. Radonin osalta on oletettu, että vedestä 0,5 litraa käytetään suoraan juomavetenä, josta radon ei ole poistunut.

Euroopan Unionin neuvoston talousvesidirektiiviin (98/83/EY) on sisällytetty osoitinmuuttujiksi tritiumpitoisuus 100 Bq/l ja viitteellinen kokonaisannos 0,1 mSv/a. Luonnon radioaktiivisista aineista viitteelliseen kokonaisannokseen lasketaan mukaan nuklidit <sup>238</sup>U, <sup>234</sup>U, <sup>228</sup>Ra ja <sup>226</sup>Ra. Taulukossa 3 on laskettu näille nuklideille aktiivisuuspitoisuudet, jotka yksinään aiheuttavat 0,1 mSv:n efektiivisen annoksen vuodessa kahden litran päivittäisellä veden kulutuksella. Annosmuuntokertoimina on käytetty tällä hetkellä voimassa olevia annosmuuntokertoimia (ICRP 1994, ICRP 1995). Sosiaali- ja terveystieteiden ministeriön talousvesiasetukseen (STM 461/2000) on sisällytetty molemmat radioaktiivisuutta koskevat osoitinmuuttujat. Niiden mittaamisesta ja valvontatiheyksistä annetaan kansalliset ohjeet vasta, kun direktiivin vastaavista liitteistä on annettu EU-tason päätös.

Euroopan Unionin komission suosituksessa (2001/928/Euratom) on annettu lyijylle ja poloniumille aktiivisuuspitoisuudet (Taulukko 4), jotka vastaavat 0,1 mSv:n vuotuista efektiivistä annosta.

**Taulukko 3.** Talousvesikäytössä 0,1 mSv vuotuisen efektiivisen annoksen aiheuttava aktiivisuuspitoisuus uraanin ja radiumin isotoopeille. Vedenkulutuksena on käytetty 2 l/vrk ja annosmuuntokertoimina vuonna 1996 annettuja arvoja (ICRP 1994, ICRP 1995).

Radionuklidi	Aktiivisuuspitoisuus Bq/l
U-238	3,0
U-234	2,8
Ra-228	0,2
Ra-226	0,5

**Taulukko 4.** Komission suosituksen (2001/928/Euratom) aktiivisuuspitoisuudet  $^{210}\text{Pb}$ :lle ja  $^{210}\text{Po}$ :lle.

Radionuklidi	Aktiivisuuspitoisuus Bq/l
Pb-210	0,2
Po-210	0,1

Vesilaitosten ja kaupallisten toimijoiden veden radonpitoisuudelle annetaan komission suosituksessa viitearvo 100 Bq/l. Jäsenmaalle annetaan mahdollisuus asettaa myös korkeampi toimenpideraja, mikäli se on käytännön toteutuksen kannalta tarpeen. Komission suosituksen mukaan radonpitoisuudelle asetettava viitearvo ei saa kuitenkaan olla suurempi kuin 1000 Bq/l, koska tämän rajan ylittyessä korjaustoimet ovat perusteltuja säteilysuojelusyistä.

Taulukoissa 3 ja 4 esitetyt pitoisuudet ovat pienempiä kuin taulukossa 2 esitetyt. Erot johtuvat lähinnä vuotuisen efektiivisen annoksen muutoksesta 0,5 mSv:stä 0,1 mSv:iin. Myös annosmuuntokertoimien muuttuminen (ICRP 1991, ICRP 1994 ja ICRP 1995) ja arvioidun veden päiväkulutuksen lasku 2,2 litrasta 2 litraan ovat vaikuttaneet laskettuihin aktiivisuuspitoisuuksiin.

Pitkäikäisten nuklidien aktiivisuuspitoisuudet ovat pienentyneet lähes samassa suhteessa kuin turvallisuustavoite (0,5 mSv/a => 0,1 mSv/a). Ainoastaan poloniumilla muutos on selvästi suurempi. Tämä johtuu poloniumin annosmuuntokertoimen suurentumisesta (ICRP 1991 ja ICRP 1994), eli uudemman tiedon mukaan sama poloniumaltistus aiheuttaa suuremman annoksen kuin aikaisemmin on arvioitu.

Kokonaistilanne veden radioaktiivisten aineiden valvonnan suhteen ei muutu kovin paljon, kun otetaan käyttöön EU:n vesidirektiivi ja komission suositus. Vesidirektiivissä viitteellisen kokonaisannoksen, johon kuuluvat

uraani ja radium, muuttujan arvoksi on annettu 0,1 mSv/a. Komission suosituksessa esitetyt lyijyn ja poloniumin pitoisuudet aiheuttavat enintään 0,1 mSv vuotuisen efektiivisen annoksen molemmat, joten jos vesidirektiivin osoitinmuuttujan arvoa ja komission suositusta noudatetaan, pitkäikäisistä radionuklideista saatava yhteisannos on enimmillään 0,3 mSv/a. Mikäli radonille käytetään 300 Bq/l pitoisuusrajaa, aiheutuu siitä enimmillään 0,2 mSv/a annos, kun vedenkulutuksena käytetään 0,5 l/vrk ja annosmuuntokertoimena  $0,35 \cdot 10^{-8}$  Sv/Bq (National Research Council 1998). Näiden summana veden radioaktiivisista aineista saa aiheutua yhteensä 0,5 mSv/a efektiivinen annos. Tämä vastaa ohjeen ST 12.3 mukaista käytäntöä.

### **3.2 Uraanin kemiallinen myrkyllisyys**

Tällä hetkellä Suomessa vesilaitosten veden uraanipitoisuutta rajoittaa ainoastaan ohje ST 12.3 (Taulukko 2), jossa uraanin raja perustuu vain säteilystä aiheutuviin haittoihin. Juomavedessä oleva uraani on myös kemiallisesti haitallinen aine, mutta tähän perustuvaa kansallista raja-arvoa ei ole annettu, koska EU ei ole tehnyt vielä päätöstä asiasta. Yhdysvaltojen ympäristöviranomaisen EPA on antanut uraanipitoisuudelle MCL (maximum contaminant level)-arvon 0,030 mg/l (EPA 2000). WHO:n suositushjearvo (provisional guideline) talousveden uraanipitoisuudelle on 0,015 mg/l (WHO 2003). WHO:n päätöksenteossa on hyödynnetty myös suomalaista terveystutkimusta (Kurtio ym. 2002). WHO:n suositushjearvo vastaa aktiivisuusyksikköinä noin 0,2 Bq/l  $^{238}\text{U}$ :a. Arvo on laskettu  $^{238}\text{U}$ :lle, koska sen osuus luonnon uraanin massasta on yli 99 %. Uraani-isotooppisuhteella 1:1 ( $^{234}\text{U}$ : $^{238}\text{U}$ ) tämä uraanipitoisuus aiheuttaa n. 0,01 mSv/a efektiivisen annoksen.



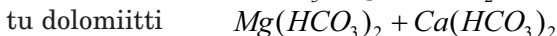
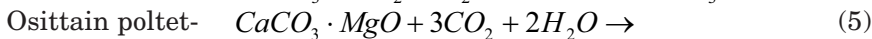
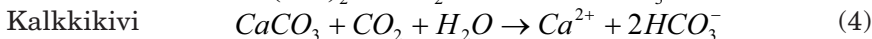
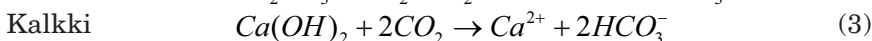
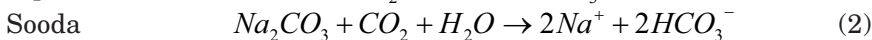
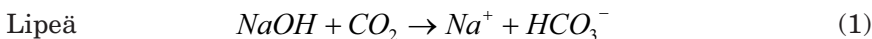
## 4 Vedenkäsittelymenetelmät pohjavedenottamoilla

Tarve vedenkäsittelyyn riippuu raakaveden laadusta. Pintaveden käsittelytarve on suurempi kuin pohja- tai tekopohjaveden. Pohjavedenottamoilla yleisin käsittely on alkalointi, joka on käytössä 45 % ottamoista (VYH-A192 1995). Muita käytettyjä käsittelymenetelmiä ovat ilmastus, erilaiset suodatukset ja desinfiointi.

Vuonna 1999 tekopohjavettä käyttäviä vedenottamoita oli Suomessa 22 (Lapinlampi ja Raassima 2002). Niiden tuottaman veden käsittelytarve oli melko vähäinen, mutta toisaalta tekopohjaveden tuotanto on eräänlainen pintaveden käsittelymenetelmä. Noin puolet tekopohjaveden ottamoista alkoi vetensä ennen jakelua, joten vedenkäsittelytarve on samaa luokkaa pohjaveden kanssa (VYH-A192 1995).

### 4.1 Alkalointi

Alkaloinnissa veden aiheuttamaa korroosiota pyritään vähentämään sitomalla vedessä liuenneena oleva karbonaattitasapainoon kuulumaton hiilidioksidi kemiallisesti. Tätä osaa hiilidioksidista kutsutaan aggressiiviseksi hiilidioksidiksi. Reaktioyhtälöissä 1 – 5 on esitetty eri kemikaaleilla tehdyissä alkaloinneissa tapahtuvat hiilidioksidin sitomisreaktiot. Näistä lipeä ja kalkki ovat Suomen vesilaitoksilla eniten käytettyjä alkalointikemikaaleja (Rontu 1992). Kuvassa 1 on esitetty alkalointisysteemi.



Alkalointaessa vettä NaOH:lla, Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>:lla tai Ca(OH)<sub>2</sub>:lla (Reaktioyhtälöt 1-3), sekoitetaan näiden kemikaalien vesiliuos raakaveteen annostelua hoitavan automatiikan avulla. Kalkkikiven käyttö (Reaktioyhtälö 4), alkaloinnissa eroaa edellä mainituista alkaloinneista. Siinä vesi valutetaan kalkkikivirouhepatjan tai -suodattimen läpi, minkä aikana veteen liukenee riittävästi kalkkikiveä. Reaktioyhtälössä 5 on esitetty osittain poltetun dolomiitin käytön yhteydessä tapahtuva reaktio. Sen käyttö alkaloinnissa perustuu suodatukseen, kuten kalkkikivellä (Kajosaari 1981).



**Kuva 1.** Alkalointi.

Aggressiivisen hiilidioksidin kemiallisen sidonnan yhteydessä veden pH-arvo nousee. pH-muutoksen lisäksi kalkki- ja kalkkikivialkalointi kohottavat veden kovuutta ja alkaliniteettia, kun taas natriumhydroksidilla ja natriumkarbonaatilla toteutettu alkalointi nostaa pH:n lisäksi vain veden alkaliniteettia. Kalkkialkaloinnissa alkaliniteetin nousu on kuitenkin vähäisempää kuin soodaa tai kalkkikiveä käytettäessä. Veden kovuuden nostaminen vähentää veden korrodoivia ominaisuuksia (Kajosaari 1981, Pääkkönen 1993).

Natriumhydroksidia ja natriumkarbonaattia käytetään pienillä vedenottamoilla, koska niiden syöttö veteen on teknisesti helppoa. Natriumhydroksidin annostelussa tulee olla huolellinen, koska yliannostustilanteissa veden pH voi kohota liian korkeaksi. Natriumkarbonaatin kanssa tätä ongelmaa ei ole. Kalkin käyttö alkalointimenetelmänä on melko vähäistä, koska sen alkuinvestointikustannukset ovat korkeat. Kustannuksia aiheuttavat kalkin annostelulaitteet, koska kalkin määrä on suhteutettava veden hiilidioksidipitoisuuteen, jotta pH saadaan pysymään tasaisena. Ongelmatilanteissa veden hiilidioksidipitoisuus voi jäädä liian korkeaksi tai veteen voi tulla kalsiumkarbonaattisaostumia (Kajosaari 1981, Pääkkönen 1993).

Alkaloitaessa pohjavettä kalkkikivisuodatuksella veden kalkki- ja vetykarbonaattipitoisuudet kasvavat. Alkalointitehokkuuteen vaikuttavat mm. alkalointimassan raekoko, raekokojakauma, rakeen muoto, alkaloitavan veden kemialliset ominaisuudet ja lämpötila (Antola 1998). Kalkkikivisuodatus on todettu hyväksi menetelmäksi pehmeille vesille, joiden alkaliniteetti ja hiilidioksidipitoisuudet ovat pieniä (Rontu 1992). Alkaloiva suodatus voi käytetystä massasta riippuen poistaa vedestä myös rautaa ja mangaania näiden saostuessa alkaloivan suodatinmassan pinnalle (Antola 1998). Toisaalta korkeat rauta- ja mangaanipitoisuudet vähentävät kalkkikivisuodatuksen tehokkuutta (Rontu 1992).

Alkalointikemikaalien lisäys saattaa kuulua myös osaprosessina koagulaatioon. Suomen pehmeässä pohjavedessä alkaliniteetti on melko pieni, joten koagulaation yhteydessä käytetään usein ns. etualkalia, jolla saadaan nostettua veden alkaliniteetti halutulle tasolle ennen koagulaatiota. Tähän voidaan käyttää esim. natriumhydroksidia, -karbonaattia tai kalkkia (Kajosaari 1981).

## 4.2 Ilmastus

Ilmastuksessa käsiteltävän veden happipitoisuutta nostetaan saattamalla vesi kosketuksiin mahdollisimman suuren ilmamäärän kanssa. Ilmastuksen yhteydessä saadaan myös pienennettyä esimerkiksi veteen liunneen rikki-vedyn ja radonin määrää.

Ilmastus voidaan suorittaa joko johtamalla vesi ilmaan tai päinvastoin johtamalla ilmaa veteen. Suihku- ja porrasilmastukset ovat yleisiä menetelmiä, joissa vesi johdetaan ilmaan, kun taas hienokuplailmastuksessa ilmaa johdetaan veteen. Torniilmastuksessa sopivalla täyteaineella, esimerkiksi muovikuulilla, täytettyyn ilmastusputkeen valutetaan ylhäältä vettä ja putken alaosaan pumpataan putkeen ilmaa. Näin saadaan ilman ja veden välinen kontaktipinta-ala suureksi.

Ilmastuksessa tapahtuvat kaasumolekyylien siirtymiset faasista toiseen tapahtuvat Henryn lain (Kaava 6) mukaan. Laki pätee, kun liukeneva kaasu ei reagoi kemiallisesti liuottinmolekyylien kanssa ja kaasumolekyylien määrä on liuottinmolekyylien määrään verrattuna pieni. Liuunneen kaasun  $\alpha$  mooliosuus  $x_a$  liuottimessa on suoraan verrannollinen nestefaasin kanssa kosketuksissa olevan kaasuseoksen kaasun  $\alpha$  osapaineeseen.

$$p_a(g) = K_H x_a, \quad (6)$$

missä  $K_H$  on Henryn vakio ja  $p_a(g)$  kaasun  $\alpha$  osapaine liuottimen kanssa kosketuksissa olevassa ilmatilassa. Henryn vakion arvo riippuu liukenevasta kaasusta,

liuottimesta, lämpötilasta ja systeemin kokonaispaineesta (Atkins 1998). Henryn vakion arvoja on taulukoitu veteen liukeneville kaasuille esimerkiksi Handbook of Chemistry and Physics 44<sup>th</sup> edition-kirjassa (Hodgman 1962).

Ilmastuksessa Henryn laki pätee ilman ja veden rajapinnassa. Muussa vesimassassa eri kaasujen konsentraatiot ovat vastaavasti tasapainossa vesikerrosten rajapintojen kanssa. Sekoittamalla vesimassaa tasoittuvat konsentraatioerot eri kerrosten välillä ja Henryn lain edellyttämä tasapainotila eri faasien välillä saavutetaan nopeammin. Vakio-olosuhteissa (lämpötila ja paine ovat vakioita) veden ilmastuksen tehokkuutta voidaan lisätä myös kasvattamalla kontaktipinta-alaa ilman ja veden välillä, koska kaasun siirtymisnopeus on suoraan verrannollinen kontaktipinta-alan ja vesimäärän suhteeseen. Kaasun siirtymisnopeus on myös suoraan verrannollinen tasapainotilan konsentraation ja hetkellisen konsentraation erotukseen, eli siirtymisnopeus hidastuu lähestyttäessä tasapainotilaa (Kajosaari 1981).

Kontaktipinta-alan lisäys saadaan aikaan hienokuplailmastuksessa pienentämällä veteen puhallettujen ilmakuplien kokoa tai kasvattamalla ilmastuksen ilma-vesi suhdetta. Hienokuplailmastuksessa tehokkuuteen vaikuttaa myös ilman kontaktiaika veden kanssa. Mikäli kuplien kontaktiaika veden kanssa on liian lyhyt, ei ilmakuplassa olevien kaasujen ja ympäröivään veteen liuenneiden kaasujen välille ehdi syntyä Henryn lain mukaista tasapainoa. Optimitalanteessa tasapaino saavutetaan ilmakuplan saapuessa veden pintaan. Jos ilmastuskupla tuotetaan optimisyvyttä syvemmällä, ei tehokkuus enää kasva ja kuplien tuottamiseen kuluu enemmän energiaa korkeammasta hydrostaattisesta paineesta johtuen. Johdettaessa vettä ilmaan, voidaan ilmastuksen tehokkuutta kasvattaa lisäämällä faasien välistä pinta-alaa pienentämällä veden pisarakokoa ja kasvattamalla kontaktiaikaa ilman kanssa (Myllymäki 1996).

Pohjaveteen on liuenneena hapen lisäksi myös muita kaasumaisia aineita, kuten typpeä, hiilidioksidia, rikkivetyä ja radonia. Ilmastuksessa käytettävän ilman happipitoisuus on niin suuri, että ilmasta liukenee happea veteen, mutta esimerkiksi veteen liuenneiden rikkivedyn ja radonin kohdalla tilanne on päinvastainen. Tämän vuoksi ilmastusta voidaan käyttää happipitoisuuden lisäämisen ohella myös haitallisten veteen liuenneiden kaasumaisten aineiden poistotarkoituksessa. Veteen liuenneiden kaasujen poistossa ilmastussäiliön vedenpinnan yläpuolella olevan ilmatilan tuuletuksen pitää olla tehokas, jotta vedestä ilmaan siirtyneiden kaasujen konsentraatio ilmatilassa ei kasvaisi liian suureksi. Konsentraation kasvu heikentää ilmastuksen tehokkuutta poistoprosessissa (Myllymäki 1996).

Ilmastusta käytetään vedenottamoilla yleensä osana raudan poistoprosessia. Siinä ilmastuksen avulla saadaan hapetettua vedessä olevat ferrioionit ( $\text{Fe}^{2+}$ ) ferri-ioneiksi ( $\text{Fe}^{3+}$ ). Tämä on edellytys, jotta raudan saostuminen voi tapahtua. Raudanpoistoon liittyvä ilmastus voi tapahtua myös paineellisessa säiliössä (Rönkä ja Kuoppala 1995). Siinä veden happipitoisuutta saadaan korotettua riittävästi raudan hapetusta varten, mutta muiden kaasumaisten aineiden pitoisuudet eivät pienene kuten ilmakehän paineessa tapahtuvilla ilmastusmenetelmillä. Paineellisessa ilmatilassa tapahtuvassa ilmastuksessa tutkittavan kaasun paine on suurempi kuin avoimessa ilmastuksessa, joten Henryn lain mukaan myös vedessä on liuenneena enemmän tutkittavaa kaasua. Liunneen kaasun konsentraation ja tasapainokonsentraation erotus on myös pienempi kuin normaalissa ilmastuksessa, joten kaasun siirtymisnopeus faasista toiseen on hitaampaa.

Raudan hapetus voidaan tehdä myös kemiallisesti lisäämällä veteen vahvaa hapetinta, esimerkiksi kaliumpermanganaattia ( $\text{KMnO}_4$ ). Tässä hapetuksessa veteen liunneiden kaasujen määrä ei muutu, mutta raudan lisäksi muiden vedessä olevien aineiden hapetustilat saattavat muuttua.

### 4.3 Suodatus

Vedenottamoilla käytetään useita erityyppisiä suodatuksia. Välillä ja siivilöillä voidaan poistaa vedestä suurimmat kiintoainekset, kuten oksat ja lehdet, kun taas käänteisosmoosilla (RO) päästään eroon hyvin pienistä ionisista yhdisteistä, kuten fluoridista.

Suuren kiintoaineksen poistamiseen tarkoitettuja laitteita ei tutkittu tämän tutkimuksen yhteydessä, koska pohjavettä käyttävillä ottamoilla ei ole yleensä käytössä välppiä tai siivilöitä. Tutkittuja suodattimia olivat hiekka-, hiekka/antrasiitti-, sepeli-, kalkkikivi- hidas- ja kalvosuodattimet.

#### 4.3.1 Hiekkasuodatus

Hiekka-, hiekka/antrasiitti- ja sepelisuodattimia käytetään erikokoisten partikkelien poistoon. Usein ne ovat osana raudan- ja mangaaninpoistoprosessia. Ennen suodatusta mahdollisimman suuri osa raudasta muutetaan esimerkiksi hapetuksella ja hämmennyksellä liukenemattomaan muotoon, jonka jälkeen suodatus poistaa saostuneen raudan vedestä. Kalkkikivisuodatusta käytetään myös raudan- ja mangaaninpoiston yhteydessä. Siinä tapahtuu samalla veden alkaloitumista. Kuvassa 2 on esitetty sepelisuodatusallas.



Kuva 2. Sepelisuodatusallas.

Suodattimessa tapahtuva fysikaalisiin ilmiöihin perustuva hiukkasten pidätys voidaan jakaa kuuteen ryhmään.

- Siivilöityminen
- Sieppaus
- Diffuusio
- Inertia
- Sedimentaatio
- Hydrodynamiikka

Siivilöityminen pidättää suodattimen huokoskokoa suuremmat partikkelit. Sieppaus ja diffuusio pidättävät huokoskokoa pienempiä hiukkasia, jotka joutuvat joko virtauksen tai diffuusion johdosta hyvin lähelle suodatinmassan pintaa ja kiinnittyvät siihen adheesivoimien vaikutuksesta. Inertian vaikutuksesta hiukkanen törmää suodatinmassaan ja pidättyy siihen. Sedimentaatioissa suodatinmassan pinnalle laskeutuu pidättyviä kiintoaineita virtauksen ansiosta. Hydrodynaamiset syyt vaikuttavat pidättymiseen silloin, kun virtauksen suunta tai voimakkuus muuttuu. Näiden mekanismien ansiosta suodattimet pidättävät huokosten läpimittaa pienempiä hiukkasia (Kajosaari 1981).



**Kuva 3.** Hidassuodatus.

### 4.3.2 Hidassuodatus

Jo 1800-luvulta asti on hidassuodatusta käytetty pintaveden haju- ja maku-haittojen käsittelyyn. Nykyään hidassuodatusta käytetään orgaanisen aineen, raudan ja mangaanin poistoon ja veden mikrobiologisen laadun parantamiseen. Toimintaperiaate on normaalista suodatuksesta poikkeava. Hidassuodatuksessa vesi suodatetaan hitaasti (tavallisesti 0,1 – 0,2 m/h) hiekkakerroksen läpi, jonka paksuus vaihtelee 0,6 – 1,25 metrin välillä. Hiekka toimii itsessään normaalina suodattimena, mutta suodatuksen raudan ja mangaanin poistokyky perustuu hiekkakerroksen pintaan muodostuvaan biologiseen kerrokseen. Aktiivisen biologisen kerroksen paksuus vaihtelee välillä 0,4 – 0,5 m (Hatva ja Seppänen 1983). Kuvassa 3 on hidassuodatusallas.

Suodattimen toiminnan kannalta on olennaista, että koko suodatin pysyy aerobisena. Kun suodatin on normaalissa käytössä, saattaa suodatinmassaan syntyä hapettomia, pelkistyneitä mikroympäristöjä. Suodattimen aerobisuus voidaan varmistaa ilmastamalla raakavesi, jaksottaisella ajolla tai vähentämällä orgaanisen aineksen kuormaa suodattimella. Jaksottaisessa ajossa suodattimen vedenpinta lasketaan ajoittain suodattimen pintaa alemmalle tasolle, jolloin ilmasta pääsee siirtymään happea suodattimeen. Orgaanisen kuorman pienentäminen tapahtuu veden esikäsittelyllä (Seppänen 1981).

Hidassuodatin poistaa orgaanista ainesta mikrobien ylläpitämällä mineralisaatiolla, jolla orgaaninen aines hajoaa vedeksi, hiilidioksidiksi, sulfaatiksi ja nitraatiksi. Mineralisaatio ei kuitenkaan välttämättä ehdi tapahtua hidassuodattimen biologisessa kerroksessa täydellisesti, jolloin käsiteltyyn veteen jää pilkkoutumistuotteita orgaanisista aineista, kuten ammoniakkaa, metaania ja rikkivetyä (Seppänen 1981, Hatva ja Seppänen 1983).

Osa biologisen kerroksen bakteereista hapettaa raudan liukoisia yhdisteitä, jotka kiinnittyvät saostuessaan biologiseen kerrokseen. Raudan biologisen saostumisprosessin edetessä alkaa myös raudan kemiallinen saostuminen biologisesti syntyneiden saostumien ympärille. Tutkimuksissa on havaittu, että rauta kiinnittyy biologisen kerroksen pintaan ja mangaani hieman pintaa syvemmälle. Biologinen aktiivisuus heikentyy suodattimen alemmissa osissa, koska vesi puhdistuu ja bakteerien käyttämät ravinteet vähenevät. Uuden suodattimen tehokas biologinen toiminta alkaa noin 3 – 6 viikon kuluttua suodatuksen aloituksesta (Hatva ja Seppänen 1983).

Biologinen kerros tukkeutuu ajan kuluessa, joten suodattimen pinta pitää kuoria tai huuhdella sopivin väliajoin. Mikäli puhdistus joudutaan tekemään alle kuukauden välein, kannattaa vesi esikäsitellä ennen hidassuodatusta. Esikäsitelyssä voidaan käyttää esimerkiksi raudan hapetusta ja hiekkasuodatusta, joiden jälkeen vesi johdetaan hidassuodatukseen. Mangaanin ei ole havaittu aiheuttavan hidassuodattimen tukkeutumista (Hatva ja Seppänen 1983, Tantt 1986).

### **4.3.3 Nanosuodatus ja käänteisosmoosi**

Talousveden tuotannossa kalvosuodatuksen käyttö on lisääntynyt viime vuosina suodatinkalvojen kehittymisen myötä. Suomessa ensimmäiset vesilaitosmittakaavan kalvosuodatuslaitteistot otettiin käyttöön 1990-luvun lopulla. Kalvosuodatuksella vedestä pystytään poistamaan tehokkaasti sekä orgaanista että epäorgaanista ainetta. Lisäksi kalvosuodatus poistaa osan veden bakteereista ja viruksista. Suomessa kalvosuodatusta hyödynnetään vesilaitosmittakaavassa esimerkiksi fluoridin poistossa (Härmä 1996, Kettunen ja Keskitalo 2000).

Ultra- (UF) ja nanosuodatuksessa (NF) sekä käänteisosmoosisissa (RO) käytetään suodatinkalvona puoliläpäisevää kalvoa, jonka läpi osa vedestä saadaan suodatettua paineen avulla. Kalvon läpäisyyttä puhdasta vettä kutsutaan permeaatiksi. Kalvoa läpäisemättömään veteen, konsentraattiin, jäävät kalvon pidättämät veden epäpuhtaudet (Härmä 1996). Kuvassa 4 on nanosuodatus- ja käänteisosmoosilaitteisto.





**Kuva 4.** Nanosuodatus ja käänteisosmoosi.

Suodatinkalvoja on yleensä sarjassa useampia, jotta syöttöveden suodatinkalvoa läpäisemätön osa, konsentraatti, voidaan käsitellä uudelleen. Näin saadaan nostettua laitteiston hyötysuhdetta. Suodatettavan veden määrää voidaan myös vähentää käsittelemällä vain osa vedestä ja sekoittamalla saatu permeaatti raakaveden kanssa. Näin voidaan vähentää haitallisten aineiden pitoisuuksia alle vaadittujen arvojen vähemmällä käsittelyllä ja pienemmillä kustannuksilla (Liikanen ja Yli-Kuivila 2000).

Kalvosuodatuksen huokoskoon tiheyden mittayksikkönä käytetään MWCO (Molecular Weight Cut Off) arvoa. MWCO on määritelty siten, että 90 % MWCO-luvun molekyylipainon omaavista molekyyleistä poistuu suodatuksessa (Van der Bruggen ym. 1999). MWCO:n yksikkönä käytetään yleensä molekyylipainon sijasta Daltonia. Yksiköt ovat yhtä suuria, eli  $1 \text{ Da} = 1 \text{ g/mol}$ .

Tarkkaa rajaa käänteisosmoosi- ja nanosuodatuskalvojen välille ei voi tehdä. Härmä on esittänyt käänteisosmoosikalvoille MWCO arvoa  $\leq 100 \text{ Da}$ , tiheille nanosuodatuskalvoille MWCO arvoja  $200 - 400 \text{ Da}$  ja väljille nanosuodatuskalvoille arvoa  $1000 \text{ Da}$ . Nanosuodatusta väljempi ultrasuodatus jaetaan tiheään, MWCO  $1000 - 10000 \text{ Da}$ , ja harvaan, MWCO  $20000 - 100000 \text{ Da}$ , ultrasuodatukseen. Erilaisten suodatinkalvojen lisäksi kalvosuodatusten käyttöpaineet ja veden tuottokyvyt ovat hyvin erilaisia.

Yleensä käyttöpainetta joudutaan kasvattamaan ja vedentuotto pienenee tiheämpiä suodatinkalvoja käytettäessä (Härmä 1996).

Molekyylipaino tai muu molekyylin kokoa kuvaava parametri yksinään ei ole paras mahdollinen mittari kuvaamaan kalvosuodatuksen tehokkuutta, koska myös molekyylin muoto, dipolimomentti ja varaus vaikuttavat poistumaan (Van der Bruggen ym. 1999).

Käänteisosmoosilla voidaan poistaa veteen liuenneet suolat lähes kokonaan, kun taas nanosuodatusta käytettäessä vain osa veteen liuenneista suoloista poistuu. Humus ja virukset poistuvat vedestä lähes kokonaan molemmilla suodatinkalvoilla. Saksassa ja Belgiassa on testattu nanosuodatusta kovuuden ja humuksen poistoon. Suodattimien MWCO arvot olivat välillä 200 – 500 Da. Humuksen määrää kuvattiin DOC, UVA-arvoilla ja AOX- ja THM muodostumispotentiaaleilla. Kaikilla näillä mittareilla humuksen poistuma oli 95 – 96 % ja kovuutta aiheuttavien  $Ca^{2+}$ :n ja  $Mg^{2+}$ :n poistumat vaihtelivat 70 – 90 % välillä käytetystä kalvosta riippuen. Yksiarvoisten ionien poistumat olivat 60 – 70 % välillä (Schaep ym. 1998a, Gorenflo ym. 2002).

Kalvosuodattimen tehokkuus perustuu huokoskokoon ja varauksien aiheuttamiin voimiin. Huokoskokoa suuremmat hiukkaset pidättyvät tehokkaasti siivilöitymisen vuoksi. Pienet varauksettomat partikkelit kulkeutuvat kalvon läpi painegradientin aiheuttaman konvektion vaikutuksesta. Näillä poistuman tehokkuuteen vaikuttaa liuenneen aineen säde ja suodattimen huokoskoko (Schaep ym. 1998b).

Huokoskokoa pienemmät varautuneet ionit ja molekyylit pidättyvät paremmin kuin suodattimen huokoskoko antaisi olettaa. Tämä johtuu suodatinkalvon pinnan varauksesta. Varautunut pinta vetää puoleensa liuenneen aineen vastakkaismerkkisiä ioneja ja toisaalta hylkii saman varauksen omaavia ioneja. Tämän ja elektroneutraalisuuden säilyvyyden vuoksi myös huokoskokoa pienemmät varautuneet ionit pidättyvät nanosuodatuksessa. Pienien varauksellisten hiukkasten poistumaan vaikuttaa kalvon varaus ja huokoskoko sekä molekyylin/ionin varaus ja koko (Schaep ym. 1998b).

Huokoskoon pienentyessä diffuusion osuus kalvon läpäisemismuotona kasvaa. Kun huokoskoko on niin pieni, että läpäisyä konvektiolla ei tapahdu lainkaan, on eri suolojen poistumien suuruusjärjestys käänteinen verrattuna näiden suolojen diffuusiokertoimiin vedessä, eli diffuusiolla on suuri merkitys poistumien suuruuteen (Schaep ym. 1998b).

Paineen aiheuttaman konvektion ja konsentraatioerojen aiheuttaman diffuusion lisäksi on esitetty, että kalvon varauksen aiheuttama potentiaaliero lisää kalvon läpäisyä sopivissa olosuhteissa. Näiden prosessien osuuksia kalvon

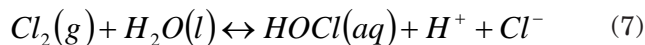
läpäisystä elektrolyyteillä on tutkittu käyttämällä Donnan steeristä huokosmallia (Donnan steric pore model, DSPM). Sen avulla on arvioitu, että huokoskoon pysyessä muuttumattomana konvektio on merkittävin mekanismi kalvon läpäisyssä, kun kalvon varaustiheys on matala ja/tai vuo kalvon läpi on suuri. Diffuusio on vallitseva mekanismi, kun varaustiheys on suuri ja/tai vuo kalvon läpi pieni. Kalvon varauksen aiheuttama migraatio on vallitsevana ainoastaan, mikäli kalvon kanssa samanmerkkisesti varautuneen elektrolyytin ionin diffuusiokerroin on huomattavasti suurempi kuin vastakkaisesti varautuneen ionin (Szymczyk ym. 2003).

Molekyylin korkealla polarisaatiolla on havaittu olevan negatiivinen vaikutus poistumiin. Selitykseksi tälle on esitetty, että polaarinen molekyyli pystyy kääntämään vastakkaismerkkisen osavarauksen omaavan puolen kalvoa kohti ja näin läpäisemään kalvon (Van der Bruggen ym. 1999).

## 4.4 Desinfiointi

Desinfioinnilla varmistetaan veden hygieeninen laatu. Tämä saadaan aikaan yleensä kloorauksella. Muita vesilaitoksilla käytettäviä vaihtoehtoisia desinfiointimenetelmiä ovat mm. UV-valo ja otsonointi. Tässä kappaleessa on esitelty kloori- ja UV-menetelmiä, koska näitä käytettiin tutkimuksessa mukana olleilla ottamoilla veden desinfiointiin.

Kloorin lisäys tehdään yleensä joko kloorikaasulla tai natriumhypokloriittiliuoksella. Kloorikaasulla desinfioinnissa kaasu liuotetaan ensin pieneen määrään vettä, minkä jälkeen kloorattu vesi syötetään haluttuun kohtaan vesilinjassa (Reaktioyhtälö 7). Natriumhypokloriittia, jota toimitetaan vesiliuoksena, voidaan sekoittaa suoraan vesilinjaan (Reaktioyhtälö 8).



Reaktioyhtälössä 7 syntynyt alikloorihapoke (HOCl) on heikko happo, mikä protolysoituu vedessä osittain (Reaktioyhtälö 9). Natriumhypokloriitista syntyvä hypokloriitti-ioni on alikloorihapoketta vastaava emäs.



Reaktioyhtälön 9 tasapainotila riippuu liuoksen pH-arvosta ja lämpötilasta. Desinfioinnissa käytetyn kemikaalin esiintymismuoto on tärkeä, koska HOCl on todettu tehokkaammaksi bakteerien tuhoajaksi kuin  $OCl^-$ -muoto (Isoaho ja Valve 1986). Kloorin tehokkuus desinfioinnissa perustuu kloorin kykyyn hapettaa mikrobien solujen soluseiniä ja -kalvoja. Hapetuksen yhteydessä syntyy lisäksi solujen jakautumiselle haitallisia klooriyhdisteitä (Sepänen 1990).

Klooraus suoritetaan vesilaitoksilla yleensä käsittelyn loppuvaiheessa, koska veden muut epäpuhtaudet, kuten rauta- ja mangaanipitoisuudet, heikentävät kloorin tehoa desinfiointissa. Näiden lisäksi kloorauksen tehokkuuteen vaikuttavat kloorin kontaktiaika veden kanssa, kloorin määrä ja veden lämpötila. Desinfiointin on oltava riittävän tehokas, mutta veden jäännöskloorin määrä ei saa olla liian suuri. Klooridesinfiointi voidaan suorittaa jatkuvana tai tarpeen vaatiessa mahdollisissa poikkeustilanteissa (Holden 1970).

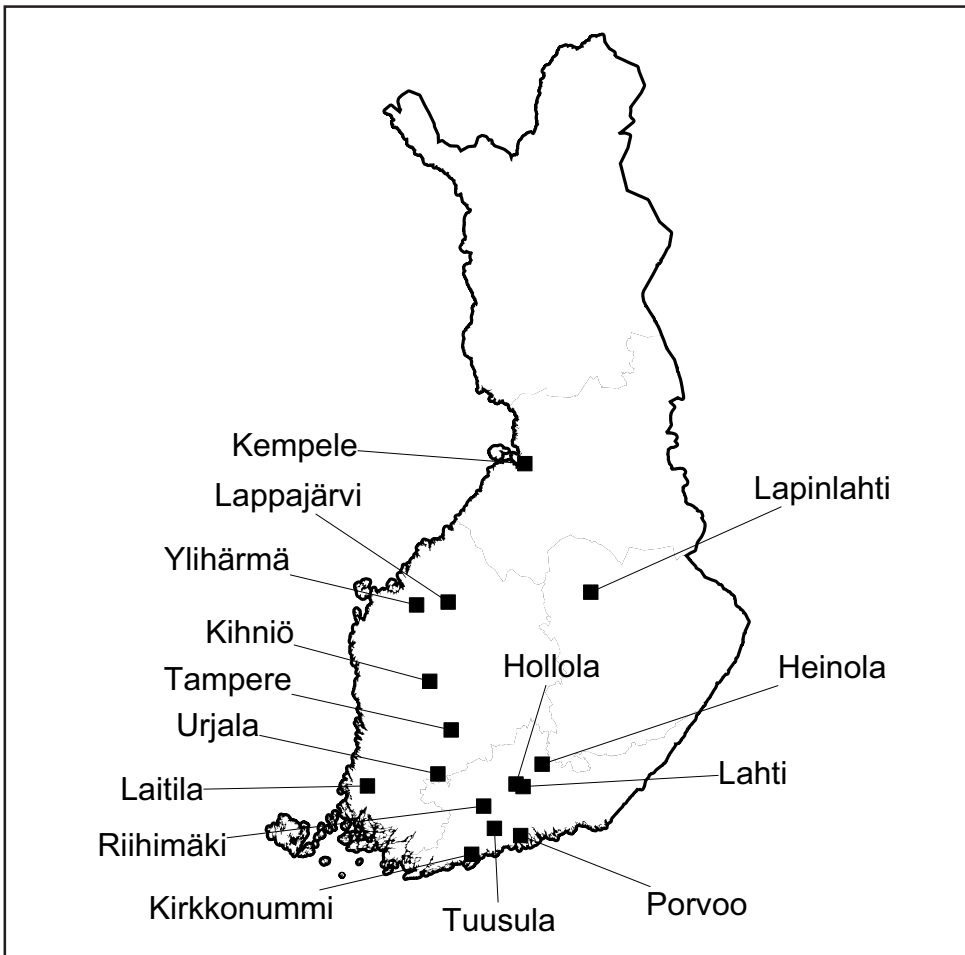
Kloorin käytöstä syntyvien haitallisten orgaanisten klooriyhdisteiden (Långvik 1991 ja Nissinen ym. 2002) ja kloorin käytön aiheuttamien maku- ja hajuhaittojen vuoksi desinfiointiin on tutkittu myös muita mahdollisia menetelmiä. UV-valon käyttö desinfiointissa on yleistynyt, koska siinä ei synny haitallisia sivutuotteita ja se on edullinen menetelmä verrattuna muihin kloorin korvaaviin käsittelyihin (Långvik 1991 ja Orava ym. 2003).

UV-valon tehokkuus veden desinfiointissa perustuu UV-valon aiheuttamiin muutoksiin bakteerien, mikrobien ja virusten DNA:ssa ja RNA:ssa. Nämä muutokset ovat pysyviä ja estävät solujen jakautumisen. Desinfiointitarkoitukseen tehokkain aallonpituusalue on UV-C alue, 200 – 280 nm (Ala-Peijari 1992).

UV-valon huonona puolena on sen vaikutuksen pysymättömyys. Desinfiointien kemikaalien vaikutus jatkuu vielä verkostossakin, sillä osa veden lisäystä kloorista säilyy vedessä verkostoon asti. Normaalisti UV-laite sijoitetaan käsittelyn loppuun, joten laitokselta lähtevä vesi on puhdasta. Mikäli on syytä epäillä, että putkistossa voi tapahtua mikrobiologisen laadun heikkenemistä, voidaan UV-desinfiointin jälkeen suorittaa vielä jälkidesinfiointi kemikaaleilla (Orava ym. 2003).

## 5 Aineisto ja menetelmät

Tutkimukseen valittiin 13 vesilaitosta, 3 vesiosuuskuntaa ja 1 vedenjohtosuuskunta. Vedenottamoita oli yhteensä mukana 46, joista 38 käytti raakavesilähteenä maaperän pohjavettä, 5 kalliopohjavettä ja 3 tekopohjavettä (Taulukko 5). Pintavettä käyttäviä ottamoita ei valittu tutkimukseen, koska pintavedessä luonnon nuklidipitoisuudet ovat hyvin pieniä. Tutkimukseen valitut ottamot sijaitsivat eri puolilla Suomea (Kuva 5). Valituista ottamoista seitsemältä oli käytettävissä aikaisempia mittaustuloksia radioaktiivisten aineiden pitoisuuksista.



**Kuva 5.** Tutkimuksessa mukana olleiden vedenottamoiden sijaintikunnat.

**Taulukko 5.** Tutkimuksen vedenottamoiden raakavesilähteet.

Kunta	Ottamon nimi	Raakavesilähde		
		Maaperän pohjavesi	Kalliopohjavesi	Tekopohjavesi
Heinola	Ala-Musteri	x		
	Saarijärvi	x		
	Onkijärvi	x		
	Hakasuo	x		
Hollola	Herrala	x		
	Kukkila	x		
	Myllymäki	x		
	Salpa-Mattila	x		
	Tiilijärvi	x		
	Ruoppa	x		
	Tuohino-oja	x		
Kempele	Monkkanen	x		
	Kirkonkylä		x	
Kihniö	Kirkonkylä		x	
Kirkkonummi	Veikkola 1	x		
	Veikkola 2	x		
Lahti	Jalkaranta	x		
	Riihelä	x		
	Urheilukeskus	x		
	Kunnas	x		
	Renkomäki	x		
	Puntari	x		
	Kovero	x		
Laitila	Krouvinnummi	x		
	Pajujärvi	x		
	Honkaniemi	x		
	Haminanmäki	x		
Lappajärvi	Nerkoo	x		
	Kirkonkylä	x		
	Lintukangas	x		
	Räntineva		x	
	Savonkylä		x	
Porvoo	Sannainen			x
	Saksanniemi	x		
	Kerkkoo	x		
Riihimäki	Herajoki	x		
	Piirivuori	x		
Tampere	Messukylä	x		
	Mustalampi	x		
	Hyhky	x		
Tuusula	Jäniksenlinna			x
	Rusutjärvi			x
	Koskenmäki	x		
Urjala	Nuutajärvi		x	
	Hyrсынharju	x		
	Laukeela	x		
Ylihärmä	Kosola		x	
Yhteensä	46	38	5	3

Tutkimuskohteet valittiin siten, että pystyttiin tutkimaan useiden vedenkäsittelymenetelmien vaikutuksia veden luonnon radionuklideihin. Selvästi yleisin käsittely oli veden alkalointi ja desinfiointi. Muita tutkittuja vedenkäsittelyjä olivat ilmastus ja erilaiset suodatukset (hiekk-, hidas-, nano-, kontaktisuodatus). Vedenkäsittelymenetelmien periaatteet on kuvattu luvussa 4 ja mukana olleiden vedenottamoiden käsittelyprosessit luvussa 5.1.

## 5.1 Tutkimukseen valittujen vedenottamoiden vedenkäsittely

Tutkimuksessa mukana olleista vedenottamoista suurin osa käsitteli jakamansa veden. Vain neljä kalliopohjavettä käyttävää vedenottamoaa jakoi käsittelemätöntä vettä. Taulukossa 6 on esitetty vedenottamoiden vedenkäsittelymenetelmät.

Käsittelyistä yleisin oli alkalointi, mikä kuului vedenkäsittelyprosessiin 41 vedenottamolla. Näistä 24 ottamolla se oli ainoa käsittelymenetelmä. Näiden ottamoiden vedenkäsittelyprosesseja ei ole kuvattu erikseen, koska niissä alkalointikemikaali joko syötettiin suoraan raakaveteen tai raakavesi suodatettiin kalkkikivisuodattimen läpi. Alkaloinnin jälkeen vesi johdettiin alavesisäiliöön tai suoraan verkostoon.

Ilmastus oli käytössä 15 vedenottamolla. Näistä yhdellä ottamolla ilmastus oli ainoa käsittelymenetelmä ja kolme ottamoista käytti ilmastuksen lisäksi alkalointia. Lopuilla ilmastusta käyttävillä ottamoilla vedenkäsittelyprosesseihin kuului erilaisia suodatuksia.

Hiekka- tai antrasiittisuodatus tai näiden yhdistelmä oli käytössä 13 vedenottamolla, joista kuudella oli käytössä myös muita suodatusmenetelmiä. Pelkästään hiekka- ja antrasiittisuodatuksia käyttävillä ottamoilla vesi ilmastettiin tai veteen lisättiin kaliumpermanganaattia ennen veden suodatusta. Näillä ottamoilla alkalointikemikaali lisättiin veteen eri vaiheissa käsittelyä. Lappajärven Kirkonkylän, Tampereen Messukylän ja Urjalan Laukeelan ottamoilla alkalointikemikaali lisättiin ilmastuksen ja suodatuksen välissä. Urjalan Hyrsynharjun ottamolla veteen lisättiin ensin kaliumpermanganaattia ja sitten alkalointikemikaalia, minkä jälkeen vesi suodatettiin. Tampereen Hyhkyn ottamolla vesi ilmastettiin aluksi, minkä jälkeen veteen lisättiin kaliumpermanganaattia. Esikäsitelty vesi johdettiin suodatukseen ja siitä edelleen verkostoon. Alkalointikemikaali lisättiin veteen suodatuksen jälkeen. Porvoossa Kerkkoon ja Saksaniemen ottamoiden käsittelyprosessissa alkalointikemikaali lisättiin ennen ilmastusta ja suodatusta. Heinolan Ala-Musterin laitoksella alkalointikemikaali syötettiin veteen vasta suodatuksen jälkeen.

**Taulukko 6.** Tutkimuksen vedenottamoiden vedenkäsittelyt.

Ottamonnimi	Ei käsittelyä	Alkaloinnit				Hapetus		Suodatukset			
		NaOH	CaCO <sub>3</sub>	Ca(OH) <sub>2</sub>	Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	Ilmastus	KMnO <sub>4</sub>	Hiekka / antrasiitti	Nano	RO <sup>1</sup>	Hidas
Ala-Musteri		x				x		x			
Hakasuo		x									
Haminanmäki		x									
Herajoki			x			x					
Herrala		x									
Honkaniemi		x				x		x			x
Hyhky		x				x	x	x			
Hyrsynharju		x					x	x			
Jalkaranta				x							
Jäniksenlinna			x					x			x
Kerkkoo				x		x		x			
Kk, Kihniö		x				x		x			x
Kk, Lappajärvi		x				x		x			
Koskenmäki			x								
Kosola	x										
Kovero			x						x <sup>2</sup>	x <sup>2</sup>	
Krouvinnummi			x								
Kukkila		x									
Kunnas		x									
Laukeela		x									
Lintukangas					x	x		x			
Messukylä		x				x		x			
Monkkanen						x					
Mustalampi		x									
Myllymäki		x									
Nerkoo			x								
Nuutajärvi	x										
Onkijärvi		x									
Pajujärvi		x									
Piirivuori		x				x					
Puntari			x			x		x			x
Renkomäki		x									
Riihelä		x									
Ruoppa		x									
Rusutjärvi			x								
Räntineva	x										
Saarijärvi		x									
Saksanniemi				x		x		x			
Salpa-Mattila		x									
Sannainen		x									
Savonkylä	x										
Tiilijärvi		x				x					
Tuohino-oja		x				x	x	x	x <sup>2</sup>		x <sup>2</sup>
Urheilukeskus		x									
Veikkola 1		x									
Veikkola 2		x									
Yhteensä	4	29	8	3	1	15	3	13	2	1	5

<sup>1)</sup> Käänteisosmoosi <sup>2)</sup> 50 % ottamon vedestä käsitellään kyseisellä menetelmällä

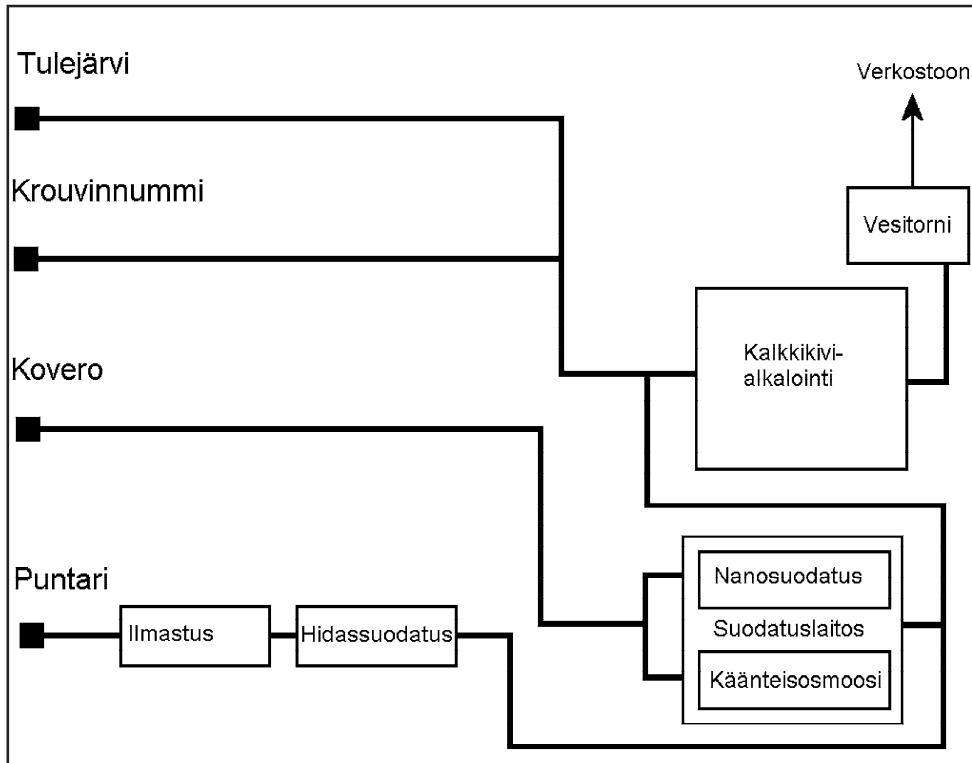


Hidassuodatus oli käytössä viidellä ottamolla. Honkaniemen ja Jäniksenlinnan ottamoilla vedenkäsittelyprosessiin kuului hidassuodatuksen lisäksi esikäsiteltyä sepelisuodatus, joka vähentää hidassuodatuksen kuormitusta ja huoltotarvetta. Lisäksi Honkaniemen ottamolla vesi ilmastettiin ennen sepelisuodatinta. Hidassuodatuksen jälkeen vesi alkaloitiin ottamoilla ennen jakelua verkostoon. Puntarin ottamolla vesi ilmastettiin porrasilmastuksella, minkä jälkeen vesi valutettiin hiekka/sorarinnettä pitkin hidassuodatukseen. Rinnevalutus on merkitty taulukkoon 6 hiekkasuodatuksiksi. Suodatettu vesi alkaloitiin kalkkikivisuodatuksella. Kihniössä vesi alkaloitiin ja ilmastettiin, minkä jälkeen esikäsitelty vesi johdettiin sepelisuodatuksen ja hidassuodatuksen kautta alavesisäiliöön, josta se jaettiin edelleen kulutukseen.

Kalvosuodatusta käyttävistä ottamoista Kempeleen Tuohino-ojan vedenottamomolla 50 % raakavedestä käsiteltiin kahdella rinnakkaisella nanosuodatusyksiköllä (kalvo NF-90). Ennen suodatusta veteen lisättiin rikkihappoa, mikä estää karbonaattisaostumien syntymistä nanosuodatuskalvojen pinnoille. Permeaatti ilmastettiin ja johdettiin alavesisäiliöön. Nanosuodatuksessa syntyvä konsentraatti käsiteltiin toisella nanosuodattimella, josta saatava permeaatti johdettiin hidassuodatukseen mahdollisten rauta- ja mangaanijäämien poistamiseksi. Toisessa nanosuodatuksessa syntyvä konsentraatti johdettiin viemäriin (Pääkkönen 1999). Toinen osa (50 %) raakavedestä käsiteltiin kontakti- ja hidassuodattimella. Kontaktisuodatuksen yhteydessä veteen lisättiin sekä natriumhydroksidia että kaliumpermanganaattia. Kontaktisuodatuksen jälkeen vesi johdettiin ilmastuskaapin kautta hidassuodatukseen. Käsitelty vesi yhdistettiin samaan alavesisäiliöön nanosuodatetun ja ilmastetun veden kanssa. Tästä vesi jaettiin edelleen verkostoon.

Laitilan Puntarin laitoksen kalvosuodatuslaitteistoa voidaan käyttää Puntarin ja Koveron vedenottamoiden veden käsittelyyn. Kuvassa 6 on esitetty yksinkertaistettu kaavakuva Laitilan ottamoiden vedenkäsittelyprosesseista näytteidenottohetkellä. Tulejärven ottamo ei ollut mukana tässä tutkimuksessa.

Näytteidenottohetkellä kalvosuodatusyksiköllä käsiteltiin Koveron vedenottamolta tullut vesi, joka jaettiin kahteen osaan. Näistä ensimmäinen käsiteltiin nanosuodatuslaitteistolla (kalvo Filmtec NF-255) ja toinen käänteisosmoosilaitteistolla (kalvo Filmtec BW30LE-440). Suodatusten jälkeen vesi alkalointiin kalkkikivisuodatuksella (Kettunen ja Keskitalo 2000).



**Kuva 6.** Kaaviokuva Laitilan vedenottamoiden vedenkäsittelyistä näytteidenottohetkellä.

## 5.2 Näytteenotto

Kaikilta vedenottamoilta otettiin näytteet ennen käsittelyä ja heti käsittelyn jälkeen. Lisäksi otettiin näyte verkostosta. Näin pystyttiin arvioimaan sekä käsittelyn että verkoston vaikutusta tutkittujen radionuklidien pitoisuuksiin.

Kolmella ottamolla vesi sekottui käsittelyn aikana toisen ottamon veteen, joten näiltä ottamoilta ei saatu käsittelyn jälkeistä vesinäytettä. Verkostonäytettä ei saatu 17 ottamolta, koska vesi sekottui toisen ottamon veteen verkostossa tai vesisäiliöissä. Käsittelemätöntä vettä jakavilta ottamoilta näytteet otettiin raaka- ja verkostovedestä.

Jokaisesta näytteenottopisteestä otettiin kaksi radonnäytettä nestetuikepulloon sekä 3 – 5 litraa vettä muovikanisteriin muiden radioaktiivisten aineiden määrittämistä varten. Muovikanistereihin otetut näytteet kestävästi väkevällä suolahapolla (4,5ml/l) ja ilmastettiin heti niiden saavutua laboratorioon. Lisäksi jokaiselta vedenottamolta kerättiin tiedot normaalissa seurannassa olevista veden laatuparametreista.

Näytteet otettiin 16.4.2002 – 1.6.2002. Näytteenotto suoritettiin yhteistyössä kuntien terveystarkastajien ja vesilaitosten henkilökunnan kanssa. Näytteiden toimitus Säteilyturvakeskukseen kesti muutamasta tunnista kolmeen päivään. Näytteenotosta ja ottamon vedenkäsittelystä kirjattiin tiedot vesilaitoslomakkeelle (Liite 2).

Neljältä vesilaitokselta ja yhdeltä vesiosuuskunnalta otettiin syyskuun 2002 aikana seurantanäytteet samoista näytteenottopisteistä kuin ensimmäisellä kerralla. Seurantaan tuli mukaan yhteensä 8 vedenottamo. Näytteet otettiin samalla tavalla molemmilla kerroilla, jotta ne olisivat keskenään vertailukelpoisia. Seurantakohteet valittiin ensimmäisen näytteenoton tulosten ja STUKin vesitietokannasta löytyneiden vanhojen tulosten perusteella. Seurantanäytteiden avulla pyrittiin arvioimaan radionuklidien pitoisuuksien vaihtelua raakavedessä erittäin kuivan kesän vaikutuksesta. Lisäksi seurantanäytteillä varmistettiin ensimmäisessä näytteenotossa saatuja poikkeavia tuloksia.

Vesinäytteitä kerättiin ensimmäisessä näytteenotossa 117 kappaletta ja toisessa näytteenotossa 23 kappaletta. Näistä määritettiin  $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  ja  $^{222}\text{Rn}$ . Tarkemmat kuvaukset analyyseistä on liitteessä 3 ja analyyseihin liittyvistä määrittämissä rajoista liitteessä 4.

Radionuklidien pitoisuuksien ajallista vaihtelua arvioitaessa käytettiin tässä tutkimuksessa saatujen tulosten lisäksi STUKissa vuosina 1974 – 1999 samoilta ottamoilta otettujen vesinäytteiden tuloksia. Pitoisuuksien ajallisen vaihtelun arvioinnissa on käytetty pelkästään raakaveden pitoisuuksia, koska ottamoiden vedenkäsittelyt ovat voineet muuttua ja vanhojen verkostonäytteiden näytteenottoaikoista ei ole tarkkaa tietoa. Radonin ja uraanin ajallista vaihtelua arvioitiin sekä lyhyellä että pitkällä aikavälillä. Lyijyn ja poloniumin osalta arvioitiin vain lyhyellä aikavälillä tapahtuneita muutoksia.

## 6 Tulokset

Tulosten käsittely ja epävarmuuksien laskumenetelmät on esitelty liitteessä 5.

### 6.1 Raakaveden radionuklidipitoisuudet

Taulukoissa 7, 8 ja 9 on laskettu tilastollisia tunnuslukuja luonnon radionuklidipitoisuuksille maaperän pohjavettä, tekopohjavettä ja kalliopohjavettä käytävillä ottamoilla.

Maaperän pohjavettä käytäviltä ottamoilta tässä tutkimuksessa saadut tulokset ja kansalliset keskiarvopitoisuudet (Taulukko 1) ovat hyvin lähellä toisiaan. Kallio- ja tekopohjavettä käytävillä ottamoilla tulokset ovat, kalliopohjaveden radium-tulosta lukuun ottamatta, tässä tutkimuksessa jonkin verran suurempia. Erot ovat ymmärrettäviä, koska tutkittu aineisto oli pieni ja vedenottamat valittiin veden käsittelymenetelmien ja aikaisempien

**Taulukko 7.** Maaperän pohjavettä käyttävien ottamoiden raakaveden radionuklidipitoisuudet. Tutkittuja ottamoita oli 38.

Maaperän pohjavesi	Uraani µg/l	<sup>238</sup> U Bq/l	<sup>234</sup> U Bq/l	<sup>226</sup> Ra Bq/l	<sup>222</sup> Rn Bq/l	<sup>210</sup> Pb Bq/l	<sup>210</sup> Po Bq/l	Kok. Alfa Bq/l <sup>1</sup>
Keskiarvo	2	0,023	0,024	0,010	54	0,004	0,009	0,066
Mediaani	0,55	0,007	0,008	<0,010	53	0,003	0,002	0,030
Keskihajonta	4,5	0,056	0,056	0,013	31	0,004	0,018	0,124
Maksimi	26	0,323	0,323	0,074	124	0,024	0,103	0,711

<sup>1</sup>Kokonais-alfa on laskettu <sup>238</sup>U, <sup>234</sup>U, <sup>226</sup>Ra ja <sup>210</sup>Po analyysien tulosten summana

**Taulukko 8.** Tekopohjavettä käyttävien ottamoiden raakaveden radionuklidipitoisuudet. Tutkittuja ottamoita oli 3.

Tekopohjavesi	Uraani µg/l	<sup>238</sup> U Bq/l	<sup>234</sup> U Bq/l	<sup>226</sup> Ra Bq/l	<sup>222</sup> Rn Bq/l	<sup>210</sup> Pb Bq/l	<sup>210</sup> Po Bq/l	Kok. Alfa Bq/l <sup>1</sup>
Keskiarvo	1,2	0,013	0,013	<0,010	84	0,013	0,021	0,054
Mediaani	1,02	0,013	0,012	<0,010	73	0,009	0,009	0,043
Keskihajonta	0,1	0,001	0,002	-	23	0,013	0,023	0,024
Maksimi	1,2	0,014	0,015	<0,010	110	0,027	0,048	0,081

<sup>1</sup>Kokonais-alfa on laskettu <sup>238</sup>U, <sup>234</sup>U, <sup>226</sup>Ra ja <sup>210</sup>Po analyysien tulosten summana

**Taulukko 9.** Kalliopohjavettä käyttävien ottamoiden raakaveden radionuklidipitoisuudet. Tutkittuja ottamoita oli 5.

Kalliopohjavesi	Uraani µg/l	<sup>238</sup> U Bq/l	<sup>234</sup> U Bq/l	<sup>226</sup> Ra Bq/l	<sup>222</sup> Rn Bq/l	<sup>210</sup> Pb Bq/l	<sup>210</sup> Po Bq/l	Kok. Alfa Bq/l <sup>1</sup>
Keskiarvo	4,9	0,061	0,174	0,025	452	0,092	0,054	0,314
Mediaani	1,29	0,016	0,033	0,019	490	0,039	0,009	0,070
Keskihajonta	6,8	0,084	0,283	0,018	277	0,129	0,105	0,483
Maksimi	16,5	0,205	0,670	0,049	760	0,321	0,241	1,165

<sup>1</sup>Kokonais-alfa on laskettu <sup>238</sup>U, <sup>234</sup>U, <sup>226</sup>Ra ja <sup>210</sup>Po analyysien tulosten summana

tulosten perusteella. Mukaan valittiin vedenottamoita, joiden vedestä oli mitattu korkeita pitoisuuksia, jotta analyysieihin ei tarvittu suuria vesimääriä ja poistumaprosenttien laskeminen oli järkevää. Näitä syistä raakaveden pitoisuuksien tilastolliset tunnusluvut eivät kuvaa Suomen tilannetta edustavasti.

Vertailtaessa tässä tutkimuksessa mukana olleiden ottamoiden raakaveden pitoisuuksia ohjeessa ST 12.3 oleviin arvoihin (Taulukko 2), radonpitoisuus ylittyi kolmella kalliopohjavettä käyttävällä vedenottamalla. EU-komission suosituksen (Taulukko 4) lyijyn raja-arvo (0,2 Bq/l) ylittyi yhdellä kalliopohjavettä käyttävällä ottamalla. Poloniumin osalta suosituksen raja-arvo (0,1 Bq/l) ylittyi kolmella ottamalla, joista yksi käyttää kalliopohjavettä ja kaksi maaperän pohjavettä. Taulukoissa 2 ja 3 esitetyt uraanin ja radiumin aktiivisuuspitoisuudet eivät ylittyneet yhdelläkään tutkimuksessa mukana olleista ottamoista.

## 6.2 Uraanin kemiallinen myrkyllisyys

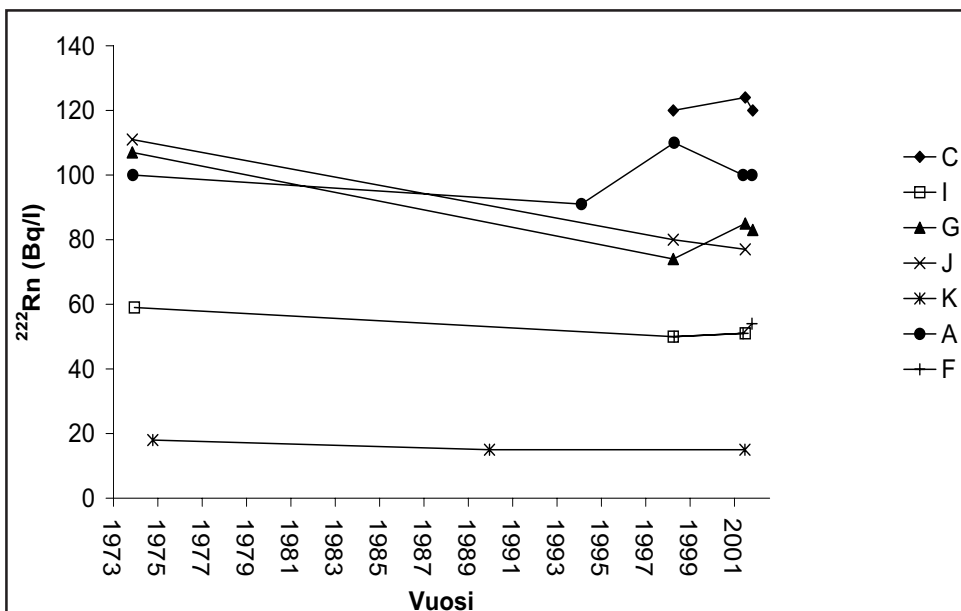
Tässä tutkimuksessa mukana olleista ottamoista korkein uraanipitoisuus, 26 µg/l, oli maaperän pohjavettä käyttävällä ottamalla. Kaikilla muilla maaperän pohjavettä käyttävillä ottamoilla pitoisuudet olivat alle 10 µg/l. Kalliopohjavettä käyttävistä ottamoista korkein raakaveden uraanipitoisuus oli 16 µg/l. Muilla kalliopohjavettä käyttävillä ottamoilla uraanipitoisuudet ovat alle 7 µg/l. Kaikilla tekopohjavettä käyttävillä ottamoilla veden uraanipitoisuudet olivat alle 2 µg/l.

Vesidirektiivin viitteellisen kokonaisannoksen 0,1 mSv/a arvoa vastaava uraanipitoisuus 100 µg/l ei ylittynyt yhdelläkään ottamalla. WHO:n suositushjearvon 15 µg/l ylittyi yhdellä kalliopohjavettä ja yhdellä maaperän pohjavettä käyttävällä ottamalla. Ylityksien suhteellinen osuus ovat samaa

suuruusluokkaa kuin STUKin vuonna 2001 tekemässä otantatutkimuksessa, jonka aineisto koostui yksityisistä kalliopohjavettä ja maaperän pohjavettä käyttävistä kaivoista. Siinä kalliopohjavettä käyttävistä kaivoista 18 % ja maaperän pohjavettä käyttävistä kaivoista 3 % ylitti 15 µg/l (Vesterbacka ym. 2004).

### 6.3 Radioaktiivisuuden ajallinen vaihtelu vedenottamoiden raakavedessä

Radonpitoisuuden ajallista vaihtelua tutkittiin seitsemällä ottamalla (Kuva 7). Radonnäytteet on otettu vuosien 1974 – 2002 aikana. Suurimmat vaihtelut havaittiin vedenottamoilla G ja J, joissa molemmissa pitoisuudet ovat olleet välillä 74 – 111 Bq/l. Muutos radonpitoisuudessa on suurempi kuin määrittymenettelyn mittausepävarmuus. Muutokset voi johtua veden radonpitoisuuden luonnollisesta vaihtelusta, mutta vaihteluun voi olla myös muita selityksiä. Huonosti suoritetulla näytteenotolla voidaan menettää 10 – 20 % veden radonista. Molempien ottamoiden korkeimpien tulosten mitaukset on tehty 70-luvulla ja raakavesilähteenä on saattanut olla eri kaivo kuin tässä tutkimuksessa. Mittausmenetelmänä 70-luvulla on käytetty gammamittausta, jonka mittausepävarmuus on suurempi kuin nykyisessä menetelmässä.



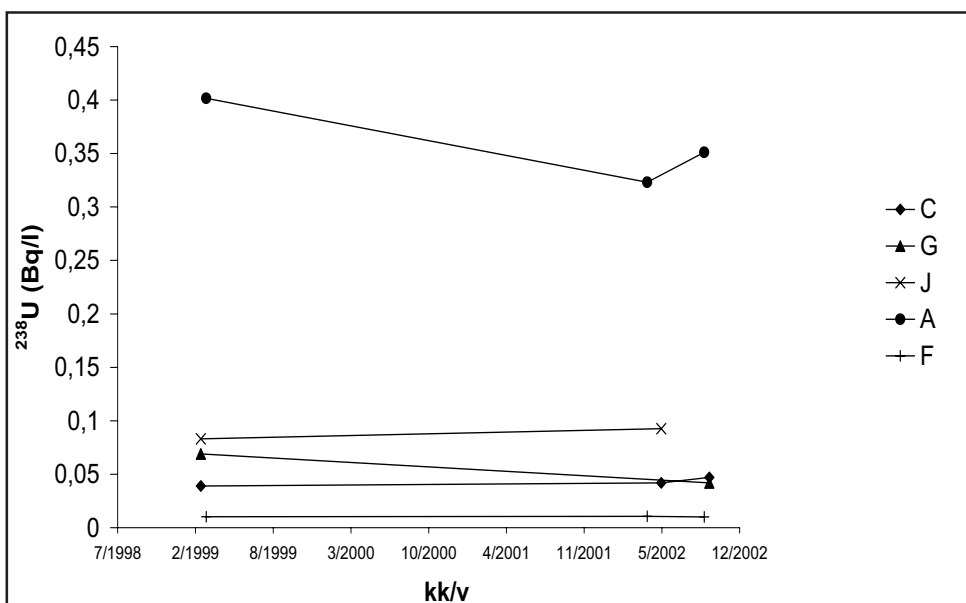
Kuva 7. Raakaveden  $^{222}\text{Rn}$  pitoisuus seitsemällä maaperän pohjavettä käyttävällä vedenottamalla vuosina 1974–2002. Isot kirjaimet ovat ottamotunnuksia.

Myöhemmistä mittauksista on saatavilla tarkemmat tiedot käytetyistä vesilähteistä. Suurin saman vesilähteen radonpitoisuuden vaihtelu havaittiin vedenottamolla A, jossa radontulokset olivat välillä 91 – 110 Bq/l. Mittaus-epävarmuus 100 Bq/l pitoisuuksilla on noin 10 %, eli ottamon A pitoisuusvaihtelut mahtuvat luottamusvälille.

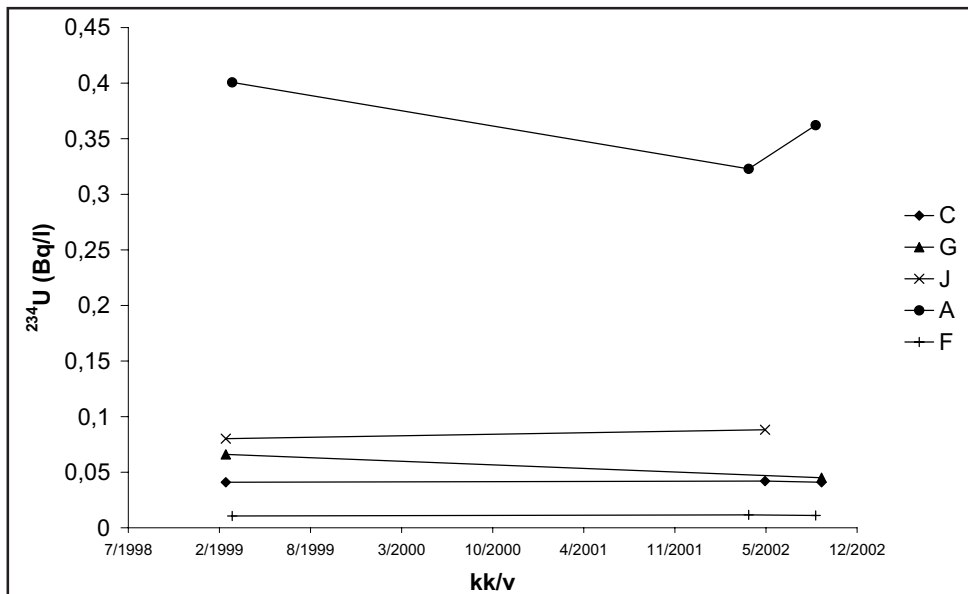
Geologian tutkimuskeskus (GTK) on tutkinut aikaisemmin radonin ajallisia vaihteluita pohjavedessä. Seurannassa havaittiin, että moreenialueilla pohjaveden radonpitoisuus vaihtelee eri vuodenaikoina enemmän kuin hiekka-alueen vedessä. Moreenialueiden radonpitoisuus oli korkeimmillaan, kun pohjaveden pinta oli korkealla (Backman ym. 1999).

Uraanin ajallista vaihtelua tutkittiin viidellä vedenottamolla (Kuvat 8 ja 9). Vesinäytteet on kerätty vuosien 1999 – 2002 aikana. Uraani-isotoopit  $^{238}\text{U}$  ja  $^{234}\text{U}$  ovat kemiallisilta ominaisuuksiltaan samanlaisia, joten niiden pitoisuuksien muutokset ajan funktiona ovat samanlaisia.

Tutkituista ottamoista uraanipitoisuuden muutos on suurempi kuin mittausepävarmuus ainoastaan ottamalla A, jossa molempien isotooppien pienen pitoisuus on noin 80 % suurimmasta pitoisuudesta. Tämän voidaan olettaa johtuvan luonnollisesta vaihtelusta, koska vesinäytteet ovat samasta vesilähteestä, analyysit on tehty samalla menetelmällä ja näytteenoton vaikutus veden uraanipitoisuuteen on olematon.



**Kuva 8.** Raakaveden  $^{238}\text{U}$  pitoisuus viidellä maaperän pohjavettä käyttävällä vedenottamalla vuosina 1999 – 2002. Isot kirjaimet ovat ottamotunnuksia.



**Kuva 9.** Raakaveden  $^{234}\text{U}$  pitoisuus viidellä maaperän pohjavettä käyttävällä vedenottamalla vuosina 1999 – 2002. Isot kirjaimet ovat ottamotunnuksia.

Tämän tutkimuksen puitteissa otettujen seuranta-äytteiden perusteella arvioitiin radionuklidien pitoisuuksien vaihtelua lyhyellä aikavälillä. Kahdeksalta ottamolta otettiin toiset näytteet 3 – 5 kuukauden kuluttua ensimmäisestä näytteenotosta. Näytteistä mitattiin radon- ja uraanipitoisuudet raakavedestä, käsitellystä vedestä ja verkostovedestä (Taulukko 10). Näytteenoton välisenä aikana radon ja uraanipitoisuuksien muutoksia voidaan arvioida laskemalla ensimmäisen ja toisen näytteenotokerran tulosten suhde (Taulukko 11). Tulosten mukaan radon- ja uraanipitoisuudet kaikissa näytteenotuspisteissä ovat pysyneet vakaina, koska suhdeluvut ovat hyvin lähellä arvoa yksi.

Kuvissa 10 – 11 on esitetty kahden näytteenotokerran välisten tulosten suhdeluvut.  $^{234}\text{U}$ :n tuloksia ei ole esitetty erikseen, koska ne ovat mittausepävarmuuksien puitteissa samanlaiset  $^{238}\text{U}$ :n tulosten kanssa. Kuvissa y-akseli on logaritmisella asteikolla, jotta suhteiden virheet näkyvät oikean suuruusina. Kuvista nähdään, että ottamoilla D, F ja G pitoisuudet ovat muuttuneet lyhyellä aikavälillä.

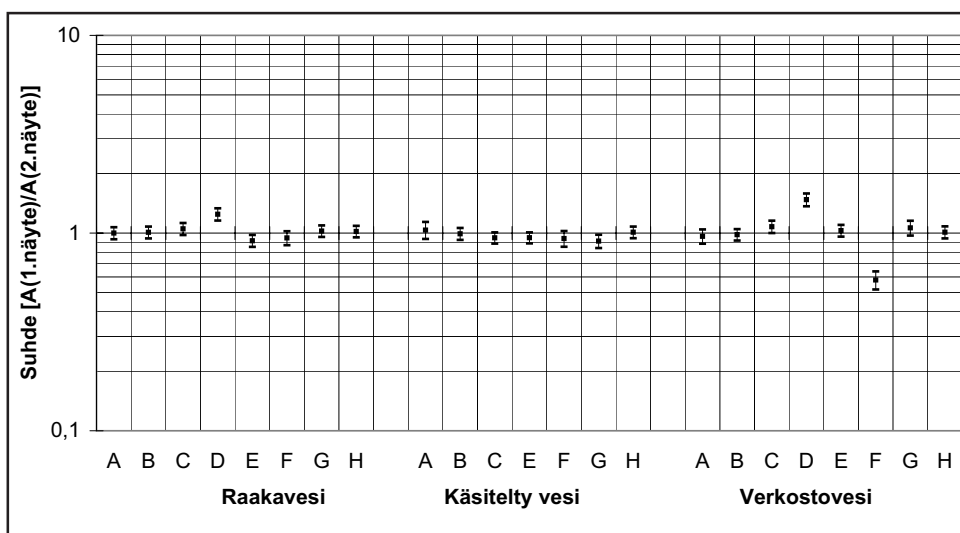


**Taulukko 10.** Ensimmäisen ja toisen näytteenotokerran  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{238}\text{U}$  ja  $^{234}\text{U}$  aktiivisuuspitoisuudet raakavedessä, käsitellyssä vedessä ja verkostovedessä. Ensimmäiset näytteet on otettu vuoden 2002 keväällä ja toiset syksyllä.

Vedenottamo	Näytteenotto- paikka	$^{222}\text{Rn}$ (Bq/l)		$^{238}\text{U}$ (Bq/l)		$^{234}\text{U}$ (Bq/l)	
		1. näyte	2. näyte	1. näyte	2. näyte	1. näyte	2. näyte
A	Raaka	101	101	0,323	0,351	0,323	0,362
	Käsitelty	29	28	0,326	0,333	0,321	0,341
	Verkosto	26	27	0,271	0,270	0,275	0,280
B	Raaka	124	123	0,025	0,027	0,032	0,034
	Käsitelty	121	122	0,025	0,025	0,031	0,029
	Verkosto	105	107	0,026	0,025	0,032	0,032
C	Raaka	124	118	0,042	0,047	0,042	0,041
	Käsitelty	105	111	0,041	0,045	0,042	0,043
	Verkosto	112	104	0,044	0,043	0,043	0,041
D	Raaka	122	98	0,014	0,001	0,015	0,003
	Verkosto	90	61	0,002	0,001	0,003	0,002
E	Raaka	107	117	0,034	0,035	0,038	0,039
	Käsitelty	107	113	0,034	0,036	0,035	0,036
	Verkosto	106	103	0,032	0,033	0,033	0,036
F	Raaka	51	54	0,011	0,010	0,012	0,011
	Käsitelty	15	16	0,009	0,011	0,011	0,011
	Verkosto	11	19	0,099	0,135	0,102	0,134
G	Raaka	85	83	0,047	0,042	0,048	0,045
	Käsitelty	61	67	0,068	0,044	0,066	0,049
	Verkosto	51	48	0,084	0,072	0,081	0,068
H	Raaka	106	104	0,013	0,013	0,012	0,012
	Käsitelty	105	104	0,012	0,012	0,011	0,012
	Verkosto	102	101	0,022	0,024	0,020	0,023

**Taulukko 11.** Tilastollisia tunnuslukuja lyhyen aikavälin seurannassa olleiden ottamoiden peräkkäisten näytteenotokertojen  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{238}\text{U}$  ja  $^{234}\text{U}$  aktiivisuuspitoisuuksien suhdeluvuille. Raaka- ja verkostoveden tuloksia on kahdeksalta ja käsitellyn veden seitsemältä ottamolta. Suhteet on laskettu jakamalla ensimmäisen näytteenotokerran tulos toisen näytteenotokerran tuloksella.

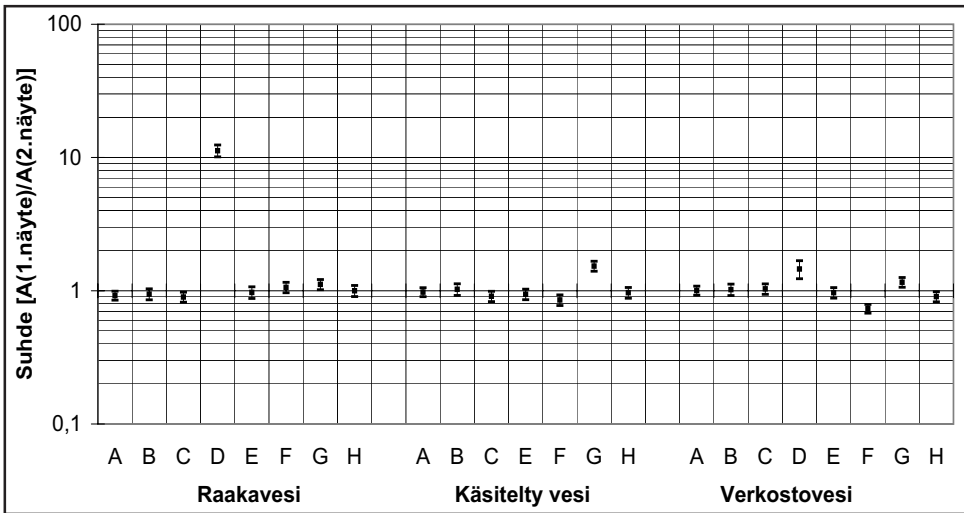
	Raakavesi			Käsitelty vesi			Verkostovesi		
	$^{222}\text{Rn}$	$^{238}\text{U}$	$^{234}\text{U}$	$^{222}\text{Rn}$	$^{238}\text{U}$	$^{234}\text{U}$	$^{222}\text{Rn}$	$^{238}\text{U}$	$^{234}\text{U}$
Mediaani	1,01	0,99	1,02	0,95	0,97	0,98	1,02	1,01	1,01
1. Kvartiili	0,99	0,94	0,97	0,94	0,93	0,95	0,98	0,95	0,90
3. Kvartiili	1,03	1,07	1,05	1,00	1,00	1,03	1,02	1,01	1,01



**Kuva 10.** Ensimmäisen ja toisen näytteenotokerran  $^{222}\text{Rn}$ -pitoisuuksien suhteet epävarmuuksineen eri ottamoilla. Kirjaimet A-H ovat ottamoiden koodeja.

Ottamalla D radon- ja uraanipitoisuuksien vaihtelu oli suurinta. Siellä kaivon muidenkin vedenlaatuparametrien arvot olivat muuttuneet näytteenotokertojen välillä, joten radonin ja uraanin pitoisuuksien muutokset liittyivät tähän. Syitä veden laadun muutokseen ei tutkittu.

Ottamon F verkostonäytteiden radon- ja uraanipitoisuuden vaihtelua kuvaavat suhdeluvut poikkeavat myös yhdestä. Uraanipitoisuudet verkostonäytteessä olivat molemmilla näytteenotokertoilla selvästi suurempia kuin vedenottamolta lähtevässä vedessä. Tämä viittaa siihen, että



**Kuva 11.** Ensimmäisen ja toisen näytteenottokerran  $^{238}\text{U}$ -pitoisuuksien suhteet epävarmuuksineen eri ottamoilla. Kirjaimet A-H ovat ottamoiden koodeja.

verkostonäytteen ottopaikalla vesi on sekoittunut toisen ottamon veteen. Lyhyen aikavälin muutokset verkostonäytteessä johtunevat veden sekoittumissuhteiden muuttumisesta. Tätä havaintoa tukee myös se, että radon- ja uraanipitoisuudet ovat muuttuneet lähes samassa suhteessa.

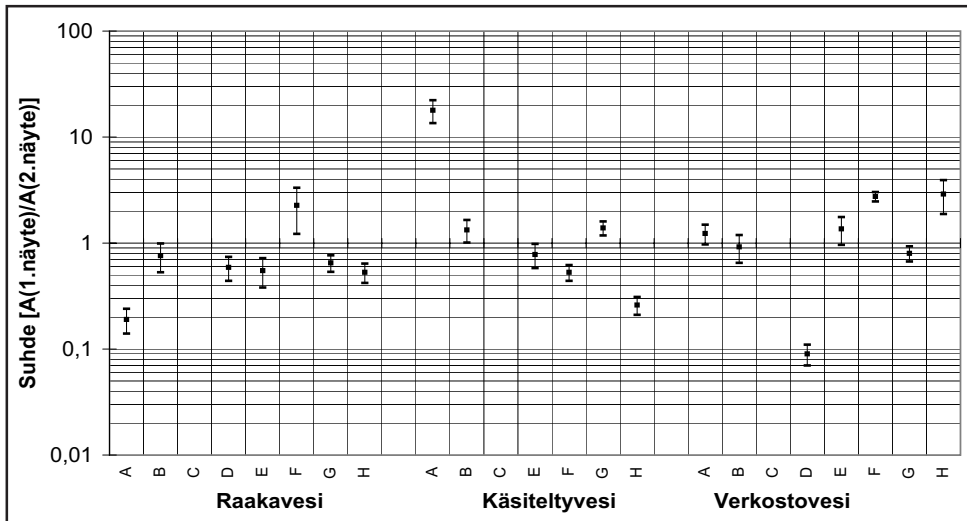
Ottamon G veden uraanipitoisuus on pienentynyt jonkin verran näytteenottokertojen välillä. Ensimmäisellä näytteenottokerralla käsitellyssä vedessä oli korkeampi uraanipitoisuus kuin raakavedessä, mikä saattaa johtua putkiston tai vedenottamon vesisäiliön saostumista liukenevasta uraanista. Käsittelemällä ottamalla on veden alkalointi, mikä ei tämän tutkimuksen perusteella vaikuta veden uraanipitoisuuksiin. Toisella näytteenottokerralla raakaveden ja käsitellyn veden pitoisuudet olivat samaa suuruusluokkaa. Verkostonäytteissä uraanipitoisuudet olivat molemmilla näytteenottokerroilla ottamolta lähtevän veden uraanipitoisuutta korkeampia. Uraanipitoisuutta kohottaa mahdollisesti putkiston saostumista liukeneva uraani, mutta pitoisuuden kohoamisen tarkempien syiden selvittäminen vaatisi lisämittauksia ottamon vedestä.

Lyijyn ja polonium osalta vertailua ei tehty pitkällä aikavälillä, koska valituilta ottamoilta aikaisempia tuloksia on vähän ja niiden näytteenotto-pisteistä ei ole tarkkaa tietoa. Lyijyn ja poloniumin lyhyen aikavälin tuloksista laskettiin samat suhdeluvut ja niiden tilastolliset tunnusluvut kuin radon- ja uraanituloksista (Taulukko 12). Näistä nähdään, että lyijy- ja poloniumpitoisuudet vaihtelevat paljon verrattuna taulukossa 11 esitettyihin radonin ja uraanin vastaaviin tunnuslukuihin. Sama käy ilmi verratessa kuvia 12 ja 13 kuviin 10 ja 11.

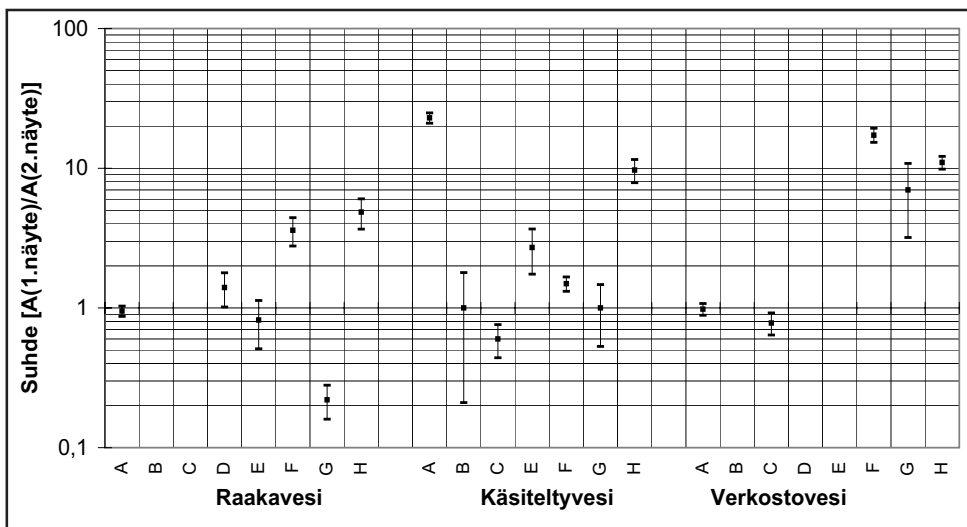
Näiden tulosten perusteella on vaikea arvioida syitä lyijyn ja poloniumin pitoisuuksien vaihteluun. Muutokset pitoisuuksissa voivat luonnollisen vaihtelun lisäksi johtua esimerkiksi analyysimenetelmän toistettavuudesta. Lyijyn ja poloniumin tulosten osalta on arvioitu rinnakkaisnäytteiden avulla, että toistettavuudesta aiheutuva vaihtelu on keskimäärin (mediaani) 16 % ja 15 %. Samassa tutkimuksessa on seuranta-näytteiden perusteella arvioitu lyijy- ja poloniumpitoisuuksien ajallista vaihtelua ja molemmille nuklideille on päädytty 31 – 32 % keskimääräiseen (mediaani) vaihteluun. Suurimmillaan pitoisuudet ovat poikenneet kertoimilla 0,5 ja 2 alkuperäisestä tuloksesta (Vesterbacka ym. 2004).

**Taulukko 12.** Lyhyen aikavälin seurannassa olleiden ottamoiden peräkkäisten  $^{210}\text{Pb}$ :n ja  $^{210}\text{Po}$ :n aktiivisuuspitoisuuksien suhteiden tilastollisia tunnuslukuja. Suhteet on laskettu jakamalla ensimmäisen näytteenottokerran tulos toisen näytteenottokerran tuloksella.

	Raakavesi		Käsitelty vesi		Verkostovesi	
	$^{210}\text{Pb}$	$^{210}\text{Po}$	$^{210}\text{Pb}$	$^{210}\text{Po}$	$^{210}\text{Pb}$	$^{210}\text{Po}$
Mediaani	0,59	1,18	1,06	1,49	1,23	3,99
1. Kvartiili	0,54	0,85	0,59	1,00	0,86	0,93
3. Kvartiili	0,71	3,05	1,38	6,21	1,44	8,00



**Kuva 12.** Ensimmäisen ja toisen näytteenotokerran  $^{210}\text{Pb}$ -pitoisuuksien suhteet epävarmuuksineen eri ottamoilla. Kirjaimet A-H ovat ottamoiden koodeja.



**Kuva 13.** Ensimmäisen ja toisen näytteenotokerran  $^{210}\text{Po}$ -pitoisuuksien suhteet epävarmuuksineen eri ottamoilla. Kirjaimet A-H ovat ottamoiden koodeja.

## 6.4 Käsittelyiden vaikutus radionuklidipitoisuuksiin

Vedenottamot jaettiin käsittelymenetelmien perusteella kolmeen ryhmään. Ensimmäisenä tutkittiin ottamoita, joissa alkalointi oli ainoa käsittely. Tällaisia ottamoita oli tutkimuksessa mukana 24 kappaletta, joista kahdelta ei saatu edustavaa näytettä käsitellystä vedestä. Toiseen ryhmään valittiin ne ottamot, joiden käsittelyyn kuului ilmastus osana koko käsittelyä. Näin siksi, että ilmastuksen tiedetään vaikuttavan veden radonpitoisuuteen. Ilmastusta käyttäviä ottamoita oli mukana tutkimuksessa 15. Kolmanteen ryhmään sisällytettiin ottamot, joilla käsittelyyn kuului erilaisia suodatusprosesseja. Näitä ottamoita oli yhteensä 14. Ottamoita ei tarkasteltu kuitenkaan yhtenä joukkona, vaan ne jaettiin vielä pienempiin ryhmiin käsittelyiden mukaan ja tulokset käsiteltiin ottamokohtaisesti. Heinolan Ala-Musterin laitos jouduttiin jättämään pois sekä ilmastusta että suodatusta koskevista tarkasteluista, koska samalla käsittelylaitoksella sekoittuu kolmen eri ottamon vedet (Ala-Musteri, Saarijärvi ja Onkijärvi).

Ensimmäinen suodatusryhmä koostui seitsemästä hiekka- tai sepelisuodatusta käyttävästä ottamosta. Näiden ottamoiden vedenkäsittelyt ovat samankaltaisia, joten niitä tarkasteltiin yhtenä ryhmänä. Porvoon Saksanniemen ja Kerkkoon vedenottamoiden vesi käsitellään yhteisellä laitoksella, jossa molempien ottamoiden vedet sekoittuvat keskenään. Poistumaprozentit voidaan kuitenkin laskea, koska molemmilta ottamoilta käsittelyyn pumpataan yhtä paljon vettä.

Toinen suodatusryhmä koostui neljästä hidassuodatusta käyttävistä ottamoista. Kempeleen Tuohino-ojan ottamo jätettiin pois tästä ryhmästä, koska siellä oli käytössä hidassuodatuksen lisäksi kalvosuodatuslaitteisto. Käsitellyn veden näytteet otettiin laitokselta lähtevästä vedestä, johon oli sekoittunut kalvosuodatettu vesi ja kontakti- ja hidassuodatettu vesi. Kolmas suodatusryhmä muodostettiin kalvosuodatusta käyttävistä ottamoista.

Ottamoiden käsittelymenetelmien kuvaukset perustuvat lomakkeella annettuihin tietoihin. Lomakkeet täytettiin näytteenoton yhteydessä. Lisäksi osalta ottamoista saatiin kaaviokuva vedenkäsittelyprosessista. Tuloksia tarkasteltaessa on otettava huomioon puutteet prosesseja kuvaavassa lomakkeessa (Liite 2) ja sen täytössä.

### 6.4.1 Alkalointi

Alkaloinnin vaikutukset veden radionuklidipitoisuuksiin olivat vähäisiä. Taulukossa 13 on esitetty poistumaprosenttien mediaanit ja kvartiilit kaikille tutkituille nuklideille näillä vedenottamoilla.

**Taulukko 13.** Luonnon radionuklidien poistumaprosentit alkalointiprosessissa. Negatiiviset poistumaprosentit kuvaavat pitoisuuden lisääntymistä tutkitussa prosessissa.

Alkalointi	<sup>222</sup> Rn	<sup>226</sup> Ra	<sup>238</sup> U	<sup>234</sup> U	<sup>210</sup> Pb	<sup>210</sup> Po
Ottamoiden lkm.	22	5	19	20	19	10
Mediaani	-1 %	0 %	-1 %	3 %	13 %	51 %
1. Kvartiili	-11 %	-63 %	-16 %	-11 %	-50 %	-45 %
3. Kvartiili	12 %	30 %	8 %	14 %	48 %	91 %

Radonin poistumaprosentin mediaani on hyvin lähellä nollaa. Se on oletettavaa, koska yleensä alkaloinnissa veteen lisätään alkalointikemikaali syöttämällä se suoraan raakavesiputkeen, eikä käsiteltävä vesi ole kosketuksessa ilman kanssa. Radon ei myöskään reagoi veteen lisättävien kemikaalien kanssa.

Tutkituista alkalointiprosesseista kalkkikivisuodatus poikkeaa mekanismiltaan muista alkaloinneista, koska siinä vesi valutetaan alkaloivan suodatinmassan läpi. Suodatus tapahtuu yleensä normaalissa ilmanpaineessa olevassa tilassa, joten suodatuksen aikana osa radonista voi siirtyä ilmatilaan. Tässä tutkimuksessa mukana olleista ottamoista kalkkikivisuodatusta käytettäessä radonista poistui keskimäärin 20 %.

Alkaloinnin vaikutuksia radiumpitoisuuksiin ei voida arvioida, koska määrittämissä ylittäviä tuloksia on vain viisi kappaletta. Uraanin poistumaprosenttien mediaani on hyvin lähellä nollaa, eli alkalointiprosessi ei vaikuta yleensä uraanipitoisuuteen (Taulukko 13). Kuitenkin hieman alle puolella ottamoista havaitaan uraanipitoisuuden muutoksia. Eri alkalointimenetelmiä käyttävien ottamoiden tulosten välillä ei ole havaittavaa eroa uraanin poistuman suhteen. Alkaloinnissa tapahtuvien uraanipitoisuuden muutoksien syiden selvittäminen vaatii laajempia ottamokohtaisia tutkimuksia. Lyijyn ja poloniumin poistumaprosentit olivat kaikilla alkalointimenetelmillä hyvin vaihtelevia.

Alkalointiprosessin vaikutus radionuklidien pitoisuuksiin on vähäinen, mutta sen vaikutus veden pH arvoon voi muuttaa radionuklidien esiintymismuotoja vedessä ja sitä kautta vaikuttaa niiden käyttäytymiseen, esimerkiksi liukenemiseen tai saostumiseen putkistossa tai vesisäiliössä. Samoin pH:n muutokset voivat vaikuttaa myöhempien vedenkäsittelyiden poistotehokkuuksiin.

Näytteenottoaika voi olla yhtenä syynä havaittuihin vaihteluihin. Heti alkalointikemikaalin lisäyksen jälkeen otetuissa näytteissä hitaammat

prosessit, kuten osa saostumisreaktioista, eivät ole välttämättä ehtineet tasapainoon, kun taas vedenottamalla olevan vesisäiliön jälkeen otetut näytteet ovat ehtineet tasapainottua kauemmin. Näytteenoton jälkeen tasapainottuminen jatkuu näyteastiassa, mutta se ei vastaa täysin tilannetta, jossa näyte olisi ehtinyt tasapainottua putkistossa tai vesisäiliössä.

## 6.4.2 Ilmastus

Lähes kaikilla ottamoilla, joiden vedenkäsittelyprosessiin kuuluu ilmastus, radonin poistumaprosentit ovat korkeita. Ainoastaan Lappajärven kirkonkylän vedenjohto-osuuskunnan ilmastus ei poistanut radonia vedestä (poistuma 3 %). Käytetty ilmastusmenetelmä on periaatteeltaan erilainen kuin muut, koska se tapahtuu paineellisessa säiliössä. Tämän vuoksi Lappajärven kirkonkylän ottamo on jätetty pois arvioitaessa ilmastuksen tehokkuutta. Muiden ilmastusta käyttävien ottamoiden radonin poistumaprosenttien jakauman tilastollisia tunnuslukuja on esitetty taulukossa 14.

Ilmastus on tehokas radonin poistomenetelmä, vaikka sitä ei olisi suunniteltu radonin poistoon. Tutkituista ilmastusta käyttävistä ottamoista vain Kihniössä vettä joudutaan käsittelemään myös radonin vuoksi. Siellä radonin poistumaprosentti on 70 %. Kihniön vedenottamolta on raportoitu samansuuruisia poistoprosentteja myös aikaisemmin (Salonen ym. 2002).

Ilmastuksen vaikutuksia muihin radionuklidipitoisuuksiin ei ole arvioitu, koska ainoastaan yhdellä ottamalla ilmastus oli ainut käsittelymenetelmä. Muilla ilmastusta käyttävillä ottamoilla oli käytössä myös muita käsittelymenetelmiä. Seuraavissa luvuissa on arvioitu koko prosessien vaikutuksia muiden radionuklidien pitoisuuksiin.

**Taulukko 14.** Radonin poistumaprosentit ottamoilla, joiden vedenkäsittelyyn kuului ilmastus.

Ilmastus	<sup>222</sup> Rn
Ottamoiden lkm.	12
Mediaani	72 %
1. Kvartiili	68 %
3. Kvartiili	85 %
Maksimi	95 %
Minimi	54 %



### 6.4.3 Hiekkasuodatus

Suodatusmenetelmänä pelkästään hiekka- ja antrasiittisuodattimia käyttäviä ottamoita tarkasteltiin omana ryhmänä. Taulukossa 15 on esitetty vedenkäsittelyn vaikutus luonnon radionuklidipitoisuuksiin näillä ottamoilla. Taulukosta puuttuvat poistumaprozentit johtuvat määrittämissä rajan alapuolella tai hyvin lähellä sitä olevista tuloksista.

Korkeat radonin poistumat ovat ottamoilla, joiden vedenkäsittelyprosessiin kuuluu ilmastus. Hiekkasuodatus ei poista radonia. Radiumin poistumat laskettiin vain kahden ottamon tuloksista. Suurista mittausepävarmuuksista huolimatta <sup>226</sup>Ra näyttäisi poistuvan hiekkasuodatuksesta.

Uraani-isotooppien poistumat ovat noin 20 % Tampereen Messukylän ottamoita lukuun ottamatta. Siellä poistuma uraanille on 80 – 90 %. Ottamoiden raakaveden rautapitoisuudet vaihtelivat välillä 0,1 – 5,4 mg/l ja mangaanipitoisuudet välillä 0,1 – 0,4 mg/l. Näiden ja uraanipitoisuuksien välillä ei kuitenkaan havaittu yhteyttä. Uraani poistuu vedestä todennäköisesti adsorboitumalla käsittelyssä syntyvään rautasakkaan. Adsorptioprosessi vaikuttaisi olevan Messukylässä tehokkaampi kuin muilla ottamoilla. Tämä voi johtua esimerkiksi käsittelyyn kuuluvasta hämmennysprosessista, jolla tehostetaan raudan saostumista. Messukylän ottamon korkean uraanin poistuman syyn selvittäminen edellyttää lisätutkimuksia.

Lyijyn poistumat vaihtelevat nollan molemmiin puolin, joten hiekkasuodatukset eivät ole tehokkaita poistomenetelmiä lyijylle. Poistumien vaihtelu johtunee lyijyn erilaisista esiintymismuodoista pohjavedessä. Lyijy voi esiintyä pohjavedessä liukoisena tai sitoutuneena erikokoisiin partikkeleihin. Jakauma näiden välillä riippuu veden laadusta ja ympäröivästä kallio- tai maaperästä (Lieser ja Ament 1993b).

Porvoon Kerkkoon ja Saksanniemen ottamoita lukuun ottamatta hiekkasuodatukset poistivat poloniumia hyvin. Polonium on lyijyn tapaan

**Taulukko 15.** Luonnon radionuklidien poistumaprozentit hiekka- ja antrasiittisuodatusta käyttävillä ottamoilla. Negatiiviset poistumaprozentit kuvaavat pitoisuuden lisääntymistä tutkitussa prosessissa.

Kunta	Ottamo	<sup>222</sup> Rn	<sup>226</sup> Ra	<sup>238</sup> U	<sup>234</sup> U	<sup>210</sup> Pb	<sup>210</sup> Po
Lappajärvi	Kirkonkylä	3 % ± 10 %	-	-	-	22 % ± 21 %	-
Porvoo	Kerkkoo ja Saksanniemi	82 % ± 5 %	39 % ± 17 %	17 % ± 7 %	18 % ± 7 %	-27 % ± 18 %	14 % ± 7 %
Tampere	Hyhky	84 % ± 2 %	-	14 % ± 8 %	2 % ± 9 %	-	85 % ± 1 %
Tampere	Messukylä	55 % ± 3 %	57 % ± 24 %	88 % ± 2 %	84 % ± 2 %	-4 % ± 27 %	84 % ± 3 %
Urjala	Hyrsynharju	11 % ± 7 %	-	24 % ± 11 %	34 % ± 9 %	-10 % ± 25 %	74 % ± 16 %
Urjala	Laukeela	73 % ± 4 %	-	18 % ± 11 %	6 % ± 12 %	52 % ± 13 %	83 % ± 2 %

partikkelireaktiivinen ja esiintyy pohjavedessä sekä partikkeliaineiksissa että liukoisena riippuen tutkitusta ympäristöstä (Vaaramaa ym. 2003, Vesterbacka ym. 2003). Tästä johtuen hiekka-suodatuksen tehokkuus poloniumin poistossa vaihtelee. Suodatuksen lisäksi poistumaan voivat vaikuttaa suodattimeen syntyneet bakteerikasvustot. Sulfidin hapettumisen ja bakteerien kasvun yhteydessä on liukoisen poloniumin todettu kiinnittyvän osin veden partikkeliaineeseen (Harada ym. 1989). Vastaavasti sulfaatteja pelkistävien bakteerien on todettu pysyvän vapauttamaan partikkeliaineeseen kiinnittynyttä poloniumia (Larock ym. 1996).

#### **6.4.4 Hidassuodatus**

Tutkimuksessa oli mukana viisi hidassuodatusta käyttävää vedenottamo. Näistä Tuohino-ojan vedenottamolla osa vedestä käsitellään nanosuodatuslaitteilla, mistä syystä taulukossa 16 ei ole esitetty tuloksia tälle vedenottamolle. Tarkastelluilla ottamoilla on käytössä myös hiekka- tai sepelisuodatin ennen hidassuodatusta, mikä pitää ottaa tuloksia tulkittaessa huomioon.

Radonin korkeat poistumaprosentit Kihniön kirkonkylän, Lapinlahden Honkaniemen ja Laitilan Puntarin vedenottamoilla johtuvat veden ilmastuksesta. Tuusulan Jäniksenlinnan ottamolla radonin poistuma on korkeampi kuin niillä ottamoilla, joilla on käsittelymenetelmänä pelkkä alkalointi. Tämä johtune sepeli- ja hidassuodatuksista, joissa käsiteltävä vesi on jonkin aikaan kosketuksissa ilman kanssa. Hidassuodatuksen biologisesti aktiivinen kerros ei poista radonia.

Poistumaprosentteja radiumille ei ole esitetty, koska pitoisuudet olivat määrittämisrajaa pienempiä tai hyvin lähellä sitä.

Uraanin poistumat ovat Kihniön Kirkonkylän ja Tuusulan Jäniksenlinnan ottamoilla hyvin lähellä nollaa, eli näiden ottamoiden sepeli- ja hidassuodatuksia eivät poista uraania. Poistumaprosentit ovat pienempiä kuin pelkkää hiekkasuodatusta käyttävillä ottamoilla (vertaa taulukko 15). Sekä Kihniön Kirkonkylän että Tuusulan Jäniksenlinnan ottamot käyttävät sepelisuodatusta, mutta suodatinmassan raekoosta puuttuu tarkat tiedot. Yleensä sepelissä raekoko on suurempi kuin normaalissa hiekkasuodatuksessa käytetyn hiekan raekoko, joten sepelisuodatuksen uraanin poistotehokkuus on todennäköisesti huonompi kuin hiekkasuodatuksen.

Ottamoiden raakaveden laadulla voi olla myös vaikutusta suodatusten uraanin poistotehokkuuteen. Kihniön kirkonkylän raakaveden pH oli noin 7,5, mikä on 0,7 – 1,4 yksikköä korkeampi kuin muilla ottamoilla. Erot pH-arvossa vaikuttavat uraanin spesiatioon vedessä ja tämä voi edelleen vaikuttaa uraa-

**Taulukko 16.** Luonnon radionuklidien poistumaprozentit hidassuodatusta käytävillä ottamoilla. Negatiiviset poistumaprozentit kuvaavat pitoisuuden lisääntymistä tutkitussa prosessissa.

Kunta	Ottamo	$^{222}\text{Rn}$	$^{238}\text{U}$	$^{234}\text{U}$	$^{210}\text{Pb}$	$^{210}\text{Po}$
Kihniö	Kirkonkylä	70 % ± 2 %	-6 % ± 10 %	-3 % ± 9 %	28 % ± 36 %	60 % ± 10 %
Laitila	Puntari	95 % ± 3 %	67 % ± 4 %	64 % ± 4 %	-5 % ± 17 %	89 % ± 1 %
Lapinlahti	Honkaniemi	93 % ± 7 %	54 % ± 5 %	54 % ± 5 %	18 % ± 19 %	47 % ± 10 %
Tuusula	Jäniksenlinna	18 % ± 7 %	6 % ± 9 %	9 % ± 9 %	21 % ± 11 %	82 % ± 3 %

nin poistumaan. Kihniössä huonoon uraanin poistumaan voi vaikuttaa myös alkointi ennen suodatusta, koska siinä veden vetykarbonaattipitoisuus kasvaa. Tämä lisää liukoisen uraanin osuutta vedessä, mikä saattaa heikentää uraanin poistumaa suodatuksissa.

Lapinlahden Honkaniemen ja Laitilan Puntarin ottamoiden käsittelyt ovat hyvin samanlaisia kuin kahdella muullakin hidassuodatusta käytävällä ottamolla. Näilläkin ottamoilla hidassuodatusta edeltää hiekka- tai sepelisuodatus, mutta suodatusmassojen raekokoa ei selvitetty tässä tutkimuksessa. Uraanin poistumat ovat kuitenkin 50 – 70 %. Vertaamalla taulukkoja 15 ja 16 havaitaan, että osa uraanista poistuu ilmastuksen ja hiekkasuodatuksen yhteisvaikutuksesta. Näillä ottamoilla hidassuodatus poistaa jonkin verran uraania. Poistuma voi aiheutua hidassuodatuksen biologisen kerroksen vaikutuksesta tai suodatinmassan aiheuttamasta mekaanisesta suodatuksista.

Lyijyn ja poloniumin osalta hidassuodatuksia käyttävien ottamoiden tulokset ovat hyvin samankaltaisia hiekkasuodatuksia käyttävien ottamoiden kanssa. Tämä viittaa siihen, että hidassuodatuksen biologisella kerroksella ei ole kovin suurta vaikutusta näiden aineiden pitoisuuksiin vedessä, koska hidassuodatuksen esikäsitteilyyn kuuluu hiekka- tai sepelisuodatus.

#### 6.4.5 Nanosuodatus ja käänteisosmoosi

Nanosuodatusta ja käänteisosmoosia käyttävien vedenottamoiden poistumaprozentit eri luonnon nuklideille on esitetty taulukossa 17.

Radonin korkea poistumaprosentti Tuohino-ojan vedenottamolla aiheuttaa ilmastuksesta. Radiumin ja uraanin pitoisuudet olivat raakavedessäkin pienempiä kuin menetelmien määrittämissä rajat, joten niille ei laskettu poistumaprosentteja.

**Taulukko 17.** Luonnon radionuklidien poistumaprozentit nanosuodatusta ja käänteis-osmoosia käyttävillä ottamoilla. Negatiiviset poistumaprozentit kuvaavat pitoisuuden lisääntymistä tutkitussa prosessissa.

Kunta	Ottamo	<sup>222</sup> Rn	<sup>238</sup> U	<sup>234</sup> U	<sup>210</sup> Pb	<sup>210</sup> Po	
Kempele	Tuohino-oja	88 % ± 13 %	-	-	-	-27 % ± 29 %	80 % ± 4 %
Laitila	Kovero	13 % ± 7 %	96 % ± 1 %	95 % ± 1 %	-188 % ± 62 %	-100 % ± 30 %	

Laitilan Koveron ottamon poistumaprozentit ovat kahden käsittelylinjan yhteistuloksia. Koveron ottamalla käänteisosmoosilaitte tuottaa käsiteltyä vettä hieman enemmän kuin nanosuodatuslaitteisto. Raakaveden pienistä uraanipitoisuuksista huolimatta uraanin poistumat ovat korkeita. Sekä nanosuodatus että käänteisosmoosi ovat tehokkaita menetelmiä uraanin poistoon.

Lyijyn ja poloniumin osalta poistumat olivat Tuohino-ojan poloniumin 80 % poistumaa lukuun ottamatta negatiivisia, eli käsittelyssä lyijyn ja poloniumin määrät kasvoivat. Pitoisuuksien lisääntymisestä huolimatta käsitellyn veden lyijy- ja poloniumipitoisuudet ovat pieniä. Suurimmat pitoisuudet olivat 5 %:n luokkaa taulukossa 4 esitetyistä EU komission antamista lyijyn ja poloniumin aktiivisuuspitoisuuksista.

Tämän tutkimuksen tulosten perustella ei voida sanoa tarkasti mistä lyijyn ja poloniumipitoisuuksien kasvu johtuu. Koveron ottamon veden käsittelyssä käytetty kalkkikivisuodatussystemi voi olla yksi syy pitoisuuksien kohoamiseen. Aikaisemmissa tutkimuksissa on kalkkikivisuodatuksen havaittu kohottavan alumiinipitoisuuksia vedessä (Kettunen ja Keskitalo 2000). Alumiini esiintyy vedessä ionisena, orgaaniseen ainekseen sitoutuneena, saostuneena alumiinihydroksidina ja mineraaliaineksessa (Lahermo ym. 2002). Näistä esiintymismuodoista osa on hyvin samankaltaisia, kuin lyijyllä ja poloniumilla on todettu (Lieser ja Ament 1993a, Vaaramaa ym. 2003, Vesterbacka ym. 2003).

## 6.5 Verkoston vaikutus luonnon radionuklidipitoisuuksiin

Ottamoiden käsittelyprosessien lisäksi tutkittiin verkoston vaikutusta veden radionuklidipitoisuuksiin. Tarkasteluun hyväksyttiin vain sellaiset ottamot, joiden verkostonäytteeseen ei ollut sekoittunut muiden ottamoiden vettä. Tällaiset näytteet saatiin 24 ottamolta. Verkostonäytteille laskettiin käsittelymenetelmien poistumaprosentteja vastaavat tulokset (Taulukko 18) ottamolta lähtevästä vedestä (käsitelty vesi) ja verkostovedestä saatujen pitoisuuksien perusteella.

**Taulukko 18.** Verkostossa tapahtuvat radionuklidipitoisuuksien muutokset. Negatiivinen prosenttiluku tarkoittaa pitoisuuden kasvua.

Verkosto	<sup>222</sup> Rn	<sup>226</sup> Ra	<sup>238</sup> U	<sup>234</sup> U	<sup>210</sup> Pb	<sup>210</sup> Po
Ottamoiden lkm.	24	8	21	21	20	17
Mediaani	10 %	26 %	-1 %	0 %	-63 %	31 %
1. Kvartiili	2 %	7 %	-9 %	-8 %	-106 %	-17 %
3. Kvartiili	23 %	42 %	9 %	11 %	7 %	53 %

Radonpitoisuuden pieneneminen johtuu verkostoviipymän aikana tapahtuvasta radioaktiivisesta hajoamisesta. Kahden prosentin pieneneminen radonpitoisuudessa vastaa noin 2,6 h viipymää ja 23 % pieneneminen 35 h viipymää. Erot syntyvät erilaisista verkoston rakenteista ja näytteenotto-pisteen sijainnista verkostossa. Viipymät on laskettu radonin puoliintumisajan mukaan, eikä huomioon ole otettu putkiston pintaan mahdollisesti saostuneesta radiumista (<sup>226</sup>Ra) syntynyttä radonia.

<sup>226</sup>Ra poistuman mediaani on positiivinen, eli jakeluverkostoon pidättyy jonkin verran radiumia. Poistuma syntyy todennäköisesti kalkkikivisaostumien mukana saostuvasta radiumista. Lisäksi putkiston pintaan syntyvä biofilmi voi adsorboida radiumia. Uraanin poistumat ovat hyvin lähellä nollaa, joten uraania ei pidäty juurikaan jakeluverkostoon.

Lyijyn osalta poistumien mediaani on negatiivinen, eli verkostossa lyijyn määrä lisääntyy. Tämä johtuu radonin hajoamisen seurauksena syntyvästä lyijystä. Radonista syntyvän lyijyn määrä voidaan laskea, kun tiedetään veden radonpitoisuus ja kulunut aika. Jos radontiiviissä astiassa olevan veden radonpitoisuus on 100 Bq/l, niin neljän tunnin aikana lyijyä syntyy 0,0010 Bq/l ja 72 tunnin aikana 0,019 Bq/l.

Poloniumpitoisuuksien osalta verkostojen vaikutukset olivat melko vaihtelevia, mutta suurimmassa osassa verkkoja poistuma on positiivinen. Polonium on partikkelireaktiivinen, joten se saattaa kiinnittyä putkistojen ja vesisäiliöiden pinnoille. Tutkimuksissa, joissa on selvitetty poloniumin partikkelijakaumaa pohjavedessä suodatuskokeilla, on havaittu osan poloniumista adsorboituvan sekä suodatussystemin että säilytysastian seinämiin (Lehto ym. 1999, Vaaramaa ym. 2003). Jakeluverkoston pinnoille muodostuva biofilmi saattaa tehostaa poloniumin adsorptiota. Lisäksi bakteeritoiminnalla on todettu olevan vaikutuksia poloniumin liikkuvuuteen vedessä (Harada ym. 1989, Larock ym. 1996), joten putkiston pintojen biofilmissä olevat bakteerit saattavat vaikuttaa veden poloniumpitoisuuksiin.

## 7 Johtopäätökset

Tässä tutkimuksessa vedenottamoilla käytössä olevat käsittelymenetelmät, joita ei ole suunniteltu radioaktiivisten aineiden poistoon, laskivat jonkin verran veden radionuklidipitoisuuksia. Poistuman suuruus riippui tutkittavasta nuklidista, käsittelymenetelmästä ja käsiteltävän veden laadusta.

Ilmastusmenetelmä on tehokas radonin poistokeino sekä yksittäisenä käsittelynä että yhdistettynä muihin käsittelyihin. Keskimääräinen radonin poistuma tutkituilla ottamoilla oli 70 %. Ainoastaan paineellinen ilmastus oli tehoton radoninpoistossa. Muut käsittelymenetelmät eivät vaikuttaneet merkittävästi veden radonpitoisuuteen.

Hiekkasuodatukset poistivat uraanista noin 20 % lukuun ottamatta Tampereen Messukylän ottamoa, jolla poistuma oli yli 80 %. Tutkittujen hidassuodattimien uraanipoistumat vaihtelivat 0 – 70 % välillä. Koska joillakin hiekka- tai sepelisuodatusta sekä hidassuodatusta käyttävillä ottamoilla uraanin poistumat ovat pienempiä kuin pelkkää hiekka- tai sepelisuodatusta käyttävällä ottamalla, voivat myös hiekkasuodatusten uraanin poistumaprosentit olla pienempiä kuin tässä tutkimuksessa hiekkasuodatuksille saadut tulokset antavat olettaa. Nanosuodatus ja käänteisosmoosi olivat tehokkaita uraanin poistomenetelmiä.

Radiumpitoisuudet olivat tutkituissa vesissä niin pieniä, että poistumaprosentteja radiumille saatiin laskettua vain muutamalle ottamolle. Hiekkasuodatusta käyttävillä ottamoilla radiumia poistui vedestä, mutta kahden ottamon tuloksen perusteella ei voi vetää johtopäätöksiä hiekkasuodatusten yleisestä tehokkuudesta radiumin poistossa.

Lyijyn poistumat olivat hyvin vaihtelevia käsittelymenetelmästä riippumatta. Ottamoilla, joilla hiekkasuodatus oli osana käsittelymenetelmää, poloniumista poistui noin 50 – 80 %. Muiden käsittelyiden vaikutukset olivat hyvin vaihtelevia. Poistumaprosenttien vaihtelu aiheutuu lyijyn ja poloniumin hyvin vaihtelevista esiintymismuodoista vedessä. Molemmat ovat partikkelireaktiivisia, mutta ne esiintyvät vedessä myös liukoisessa muodossa.

Verkostossa veden radonpitoisuus laskee radioaktiivisen hajoamisen seurauksena. Pitoisuuden pienentymiseen vaikuttaa veden viipymä verkostossa. Radonin lisäksi myös radiumin pitoisuudet pienenevät jonkin verran verkoston vaikutuksesta. Radium pidättyy todennäköisesti putkistoon saostumalla kalkkikivisaostumien yhteydessä tai adsorboitumalla putkiston

biofilmiin. Uraanipitoisuuksien vaihtelut verkostossa olivat hyvin vähäisiä. Poloniumpitoisuuksien muutokset verkostossa olivat hyvin vaihtelevia, mutta lyijyn osalta verkostossa pitoisuudet kohosivat suurimmassa osassa tutkimuskohteita. Tämä johtuu radonin hajoamisesta syntyvästä lyijystä.

Radonista syntyvä lyijy voi sopivissa olosuhteissa aiheuttaa komission suosituksessa esitetyn 0,2 Bq/l lyijypitoisuuden ylityksiä verkostovedessä, vaikka ottamolta lähtevässä vedessä pitoisuus alittuisikin. Ylityksiä voi syntyä, jos ottamolta lähtevässä vedessä lyijypitoisuus on lähellä 0,2 Bq/l tai vedessä on paljon radonia.

Vedenottamoiden raakaveden radon- ja uraanipitoisuuden ajallinen vaihtelu on tämän tutkimusten tulosten perusteella vähäistä, mikäli veden muu laatu pysyy muuttumattomana. Suurin vaihtelu radonpitoisuuksilla oli noin 20 %, kun verrattiin pienintä ja suurinta pitoisuutta samasta vesilähteestä otetusta vesinäytteestä. Lyijy- ja poloniumpitoisuuksien vaihtelu lyhyellä aikavälillä oli radon- ja uraanipitoisuuksien vaihtelua suurempaa. Raakavedessä lyijyn pitoisuudet saattoivat muuttua viisinkertaisiksi ja poloniumin seitsenkertaisiksi.

Yksityisessä käytössä olevissa kaivoissa on havaittu selvästi suurempia, jopa kolmen kertaluokan, vaihteluita veden radon- ja uraanipitoisuudessa. Pohjavedenottamoiden kaivojen vedentuottomäärät ovat suuria verrattuna yksityisessä käytössä oleviin kaivoihin, mikä todennäköisesti pienentää radon- ja uraanipitoisuuksien vaihteluita. Maaperän pohjavettä käyttävien vesilaitosten kaivojen rakenteissa on eroja yksityisiin kaivoihin verrattuna, mutta näiden vaikutukset radon- ja uraanipitoisuuksiin ja niiden ajallisiin vaihteluihin lienevät pieniä.

Tutkimuskohteissa ohjeen ST 12.3 aktiivisuusindeksin ylityksiä havaittiin ainoastaan kolmella kalliopohjavettä käyttävällä ottamalla. Kaikki ylitykset johtuivat veden radonista. Verrattaessa tämän tutkimuksen tuloksia 0,1 mSv/a turvallisuustavoitteen mukaan laskettuihin raja-arvoihin, pitkäikäisten nuklidien ylityksiä havaitaan lyijyn ja poloniumin osalta. Uraanin säteilystä aiheutuvan haitallisuuden perusteella lasketun raja-arvon, 100 µg/l, ylityksiä ei havaittu, mutta kemiallisen myrkyllisyyden perusteella annetun WHO:n suositusohjeen 15 µg/l ylityksiä havaittiin sekä kalliopohjavettä että maaperän pohjavettä käyttävillä vedenottamoilla.

## 8 Kirjallisuusviitteet

Ala-Peijari T. Ultraviolettivalon käyttö verkostoveden desinfiointiin. *Vesitalous* 1992; 2: 28–31.

Antola S. Pohjaveden alkalointi kalsiittisella kalkkikivellä. Diplomityö. Tampere: Tampereen teknillinen korkeakoulu; 1998.

Asikainen M, Kahlos H. Internal radiation doses from radioactivity of drinking water in Finland. *Health Physics* 1980; 39: 108–111.

Atkins PW. *Physical chemistry*. 6<sup>th</sup> edition. Oxford University Press; 1998.

Backman B, Lahermo P, Väisänen U, Paukola T, Juntunen R, Karhu J, Pullinen A, Rainio H, Tanskanen H. Geologian ja ihmisen toiminnan vaikutus pohjaveeseen. Seurantatutkimuksen tulokset vuosilta 1969 – 1996. Tutkimusraportti 147. Espoo: Geologian tutkimuskeskus; 1999.

Van der Bruggen B, Schaep J, Wilms D, Vandecasteele C. Influence of molecular size, polarity and charge of organic molecules by nanofiltration. *Journal of Membrane Science* 1999; 156: 29–41.

Choppin G, Liljenzin JO, Rydberg J. *Radiochemistry and nuclear chemistry*. 3<sup>rd</sup> edition. Butterworth-Heinemann 2002.

Environmental Protection Agency. National Primary Drinking Water Regulations; Radionuclides; Final Rule. 7.12.2000. <<http://www.epa.gov/fedrgstr/EPA-WATER/2000/December/Day-07/w30421.pdf>>

Neuvoston direktiivi 98/83/EY, annettu 3 päivänä marraskuuta 1998, ihmisten käyttöön tarkoitetun veden laadusta. Euroopan yhteisöjen virallinen lehti L 330, 5.12.1998 s. 32–54.

Komission suositus 2001/928/Euratom, annettu 20 päivänä joulukuuta 2001, väestön suojelemiseksi altistumiselta juomaveden radonille. Euroopan yhteisöjen virallinen lehti L 344, 28.1.2001, s. 85–88.



Gorenflo A, Velázquez-Padrón D, Frimmel FH. Nanofiltration of a German groundwater of high hardness and NOM content: performance and costs. *Desalination* 2002; 151: 253–265.

Harada K, Burnett WC, Larock PA, Cowart JB. Polonium in Florida groundwater and its possible relationship to the sulphur cycle and bacteria. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 1989; 53: 143–150.

Hatva T. Artificial groundwater recharge in Finland. Kirjassa Kivimäki A-L, Suokko T. (toim.). Artificial recharge of groundwater. Proceedings of an International Symposium, Helsinki, Finland, June 3-5, 1996. The Nordic Coordination Committee for Hydrology. NHP-report No. 38. Helsinki: 1996. s. 3–12.

Hatva T, Seppänen H. Pohjaveden puhdistus hidassuodatusmenetelmällä. Suomen itsenäisyyden juhluvuoden 1967 rahasto, Sarja A, Nro 75. Helsinki: 1983.

Hodgman CD (toim.). Handbook of chemistry and physics. 44<sup>th</sup> edition. 1962-1963.

Holden WS (toim.). Water treatment and examination. London: J. & A. Churchill; 1970.

Härmä V. Nanosuodatus talousveden valmistuksen viimeistelevänä käsittelynä. Diplomityö. Teknillinen korkeakoulu, Vesihuoltotekniikan laboratorio, Julkaisu 19. Otaniemi: 1996.

International Commission on Radiological Protection. Annual limits on intake of radionuclides by workers based on the 1990 recommendations. ICRP Publication 61. Oxford: Pergamon Press; 1991.

International Commission on Radiological Protection. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 2. Ingestion dose coefficients. ICRP Publications 67. Oxford: Pergamon Press; 1994.

International Commission on Radiological Protection. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 3. Ingestion dose coefficients. ICRP Publications 69. Oxford: Pergamon Press; 1995.

- Isoaho S, Valve M. Vesikemian perusteet. Helsinki: Otakustantamo; 1986.
- Kajosaari E. RIL 124 Vesihuolto. Helsinki: Suomen Rakennusinsinöörien Liitto; 1981.
- Kendall GM, Fell TP, Phipps AW. A model to evaluate doses from radon in drinking water. *National Radiological Protection Bulletin* 1988; 97: 7–8.
- Kettunen R, Keskitalo P. Combination of membrane technology and limestone filtration to control drinking water quality. *Proceedings of the Conference on Membranes in Drinking Water Production* 2000; 1: 467–479.
- Kurttio P, Auvinen A, Salonen L, Saha H, Pekkanen J, Mäkeläinen I, Väisänen SB, Penttilä IM, Komulainen H. Renal effects of uranium in drinking water. *Environmental Health Perspectives* 2002; 110 (4): 337–342.
- Lahermo P, Tarvainen T, Hatakka T, Backman B, Juntunen R, Kortelainen N, Lakomaa T, Nikkarinen M, Vesterbacka P, Väisänen U, Suomela P. Tutkimusraportti 155: Tuhat kaivoa – Suomen kaivovesien fysikaaliskemiallinen laatu vuonna 1999. Espoo: Geologian tutkimuskeskus; 2002.
- Lahermo P, Väänänen P, Tarvainen T, Salminen R. Suomen geokemian atlas. Osa 3: Ympäristö geokemia – purovedet ja -sedimentit. Espoo: Geologian tutkimuskeskus; 1996.
- Lapinlampi T, Raassima S (toim.). Suomen ympäristö 541: Vesihuoltolaitokset 1998-2000, Vesilaitokset. Helsinki: Suomen ympäristökeskus; 2002.
- Larock P, Hyun J-H, Boutelle S, Burnett WC, Hull CD. Bacterial mobilization of polonium. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 1996; 60 (22): 4321–4328.
- Lehto J, Kelokaski P, Vaaramaa K, Jakkola T. Soluble and particle-bound  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in groundwaters. *Radiochimica Acta* 1999; 85: 149–155.
- Lieser KH, Ament A. Radiochemical investigation of the behaviour of lead in groundwaters. *Radiochimica Acta* 1993; 60: 27–32.

Lieser KH, Ament A. Radiochemical investigation of the partition and sorption of lead in groundwater/sediment systems. *Radiochimica Acta* 1993; 60: 153–158.

Liikanen R, Yli-Kuivila J. Nanosuodatus on uusinta tekniikkaa vedenpuhdistuksessa. *Kemia-Kemi* 2000; 27 (8): 683–686.

Långvik V-A. Klooridesinfioidun juomaveden mutageenisuuden muodostumisesta. *Vesitalous* 1991; 4: 30–33.

Myllymäki P. Suomen ympäristö 50: Radonin ja uraanin poisto kalliopohjavedestä. Helsinki: Suomen ympäristökeskus; 1996.

Mäkeläinen I, Huikuri P, Salonen L, Markkanen M, Arvela H. Talousveden radioaktiivisuus – perusteita laatuvaatimuksille. STUK-A182. Helsinki: Säteilyturvakeskus; 2001.

National Research Council. Risk Assessment of Radon in Drinking Water. BEIR 6. Washington DC: National Academy of Sciences; 1999.

Nissinen TK, Miettinen IT, Martikainen PJ, Vartiainen T. Disinfection by-products in Finnish drinking waters. *Chemosphere* 2002; 48: 9–20.

Ohje ST 12.3. Talousveden radioaktiivisuus. Helsinki: Säteilyturvakeskus; 1993.

Orava M, Ala-Peijari T, Pan H. Talousveden desinfiointi ultraviolettivalolla. *Vesitalous* 2003; 1: 10–14.

Osmond JK, Cowart JB. The Theory and Uses of Natural Uranium Isotopic Variations in Hydrology. *Atomic Energy Review* 1976; 14: 621–679.

Pääkkönen J. Veden laatu ja korroosio. *Vesitalous* 1993; 4: 8–10.

Pääkkönen J. Nanosuodatus pohjavesien käsittelyssä. *Vesitalous* 1999; 6: 11–13.

Rontu M. Vesi- ja Ympäristöhallinnon julkaisuja- sarja A 107: Pohjaveden alkalointi kalkkikivisuodatuksella. Helsinki: Vesi- ja ympäristöhallitus; 1992.

Rönkä E, Kuoppala H. Monikerrossuodatin porakaivoveden raudan ja mangaanin poistamisessa. *Vesitalous* 1995; 3: 33–35.

Salonen L.  $^{238}\text{U}$  series radionuclides as a source of increased radioactivity in groundwater originating from Finnish bedrock. *Future Groundwater Resources at Risk (Proceedings of the Helsinki Conference, June 1994)* IAHS Publ. 1994; 222: 71–84.

Salonen L, Huikuri P. Elevated levels of uranium series radionuclides in private water supplies in Finland. Kirjassa: Peter J, Schneider G, Bayer A. *High Levels of Natural Radiation and Radon Areas: Radiation Dose and Health Effects, Volume II: Poster Presentation*. Bundesamt für Strahlenschutz 24/2002.

Salonen L, Saxén R. Talusvesien radioaktiivisuus Suomessa. *Kemia-Kemi* 1991; 18: 400–406.

Salonen L, Turunen H, Mehtonen J, Mjönes L, Hagberg N, Wilken R-D, Raff O. Removal of radon by aeration: Testing of various aeration techniques for small waterworks. STUK-A193. Helsinki: Säteilyturvakeskus; 2002.

Schaep J, Van der Bruggen B, Uytterhoeven S, Croux R, Vandecasteele C, Wilms D, Van Houtte E, Vanlerberghe F. Removal of hardness from groundwater by nanofiltration. *Desalination* 1998; 119: 295–302.

Schaep J, Van der Bruggen B, Vandecasteele C, Wilms D. Influence of ion size and charge in nanofiltration. *Separation and Purification Technology* 1998; 14: 155–162.

Seppänen H. Biologinen suodatus talusveden valmistuksessa. *Vesitalous* 1981; 6: 1–6.

Seppänen H. *Vesihygienia ja desinfektio*, 528. Helsinki: Otatieto; 1990.

Sosiaali- ja terveysministeriön asetus talusveden laatuvaatimuksista ja valvontatutkimuksista (Suomen säädöskokoelma; N:o 461/2000). Helsinki: Edita; 2000.

Szefer P, Szefer K. Some metals and their possible sources in rain water of the southern Baltic coast, 1976 and 1978–1980. *The Science of the Total Environment* 1986; 57: 79–89.

Szymczyk A, Labbez C, Fievet P, Vidonne A, Foissy A, Pagetti J. Contribution of convection, diffusion and migration to electrolyte transport through nanofiltration membranes. *Advances in Colloid and Interface Science* 2003; 103: 77–94.

Tanttu U. *Hidassuodatus. Vesitalous* 1986; 6: 12-16.

Vaaramaa K, Lehto J, Ervanne H. Soluble and particle-bound  $^{234,238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{210}\text{Po}$  in ground waters. *Radiochimica Acta* 2003; 91: 21–27.

Vesi- ja ympäristöhallinnon julkaisuja, sarja A 192. *Vesihuoltolaitokset 1993*. Helsinki: Vesi- ja ympäristöhallitus; 1995.

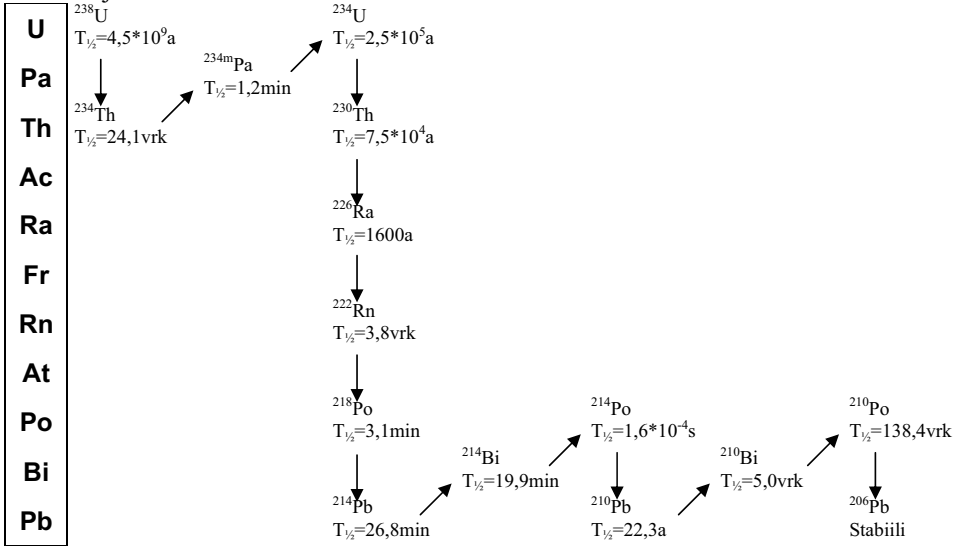
Vesterbacka P, Mäkeläinen I, Tarvainen T, Hatakka T, Arvela H. Kaivoveden luonnollinen radioaktiivisuus, otantatutkimus 2001. STUK A-199. Helsinki: Säteilyturvakeskus; 2004.

Vesterbacka P, Turtiainen T, Hämäläinen K, Salonen L, Arvela H. Talousveden radionuklidien poistomenetelmät. STUK A-197. Helsinki: Säteilyturvakeskus; 2003.

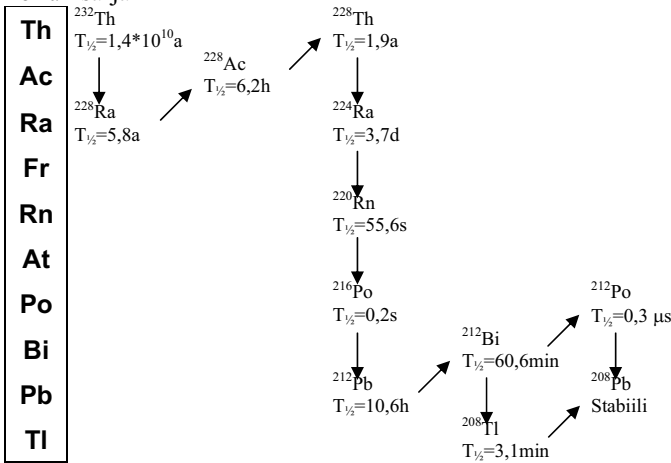
World Health Organization. 3<sup>rd</sup> Edition of Guidelines on Drinking Water Quality, WHO. 2003, in press.

## <sup>238</sup>U:n ja <sup>232</sup>Th:n hajoamissarjat

### Uraanisarja



### Toriumisarja



↓ = Alfahajoaminen  
 ↗ = Beetahajoaminen

## LIITE 2

## Vesilaitoslomake



Vesilaitosveden radioaktiivisuustutkimus  
VEERA-projekti

TILAUSNUMEROT (Säteilyturvakeskus täyttää)	
Tilausnumero:	Selite:
Tilausnumero:	Selite:
Tilausnumero:	Selite:
Tilausnumero:	Selite:
Tilausnumero:	Selite:
Tilausnumero:	Selite:
Tilausnumero:	Selite:
Tilausnumero:	Selite:
Tilausnumero:	Selite:
VESILAITOKSEN YHTEYSTIEDOT	
Nimi:	Laitostunnus:
Lähiosoite:	Postinumero ja – toimipaikka:
Kunta:	Puhelinnumero:
WWW-sivut:	
Omistajan nimi:	
Omistussuhde: <input type="checkbox"/> Kunta <input type="checkbox"/> Osakeyhtiö <input type="checkbox"/> Osuuskunta <input type="checkbox"/> Teollisuus <input type="checkbox"/> Erillislaitos	
Maksajan nimi: (Jos ei tilaaja)	Laskutusosoite:
Postinumero ja – toimipaikka:	Puhelinnumero ja fax:
NÄYTTENOTTAJAN TIEDOT	
Nimi:	Lähiosoite:
Postinumero ja – toimipaikka:	Puhelinnumero:
Terveydensuojeluviranomainen: <input type="checkbox"/> Kyllä <input type="checkbox"/> Ei	

## SÄTEILYTURVAKESKUS

## Tutkimus ja ympäristönvalvonta

## Vedenottamot

VEDENOTTAMO	
Nimi:	Ottamotunnus:
Otettu vesimäärä:	Otetun vesimäärän osuus koko laitoksen vedestä:
Vesilähde: <input type="checkbox"/> Pintavesi <input type="checkbox"/> Maapohjavesi <input type="checkbox"/> Tekopohjavesi <input type="checkbox"/> Kalliopohjavesi	Kaivojen lukumäärä ja tyypit Kuilukaivo _____ kpl Siiviläkaivo _____ kpl Putkikaivo _____ kpl Muu, mikä _____ Porakaivo _____ kpl _____ kpl
Vedenkäsittely: <input type="checkbox"/> Ei <input type="checkbox"/> Kyllä <input type="checkbox"/> Fe- ja Mn-poisto Menetelmä _____ <input type="checkbox"/> Alkalointi Menetelmä _____ <input type="checkbox"/> Humuksen poisto Menetelmä _____ <input type="checkbox"/> Ilmastus Menetelmä _____ <input type="checkbox"/> Desinfiointi Menetelmä _____ <input type="checkbox"/> Muu Mikä _____	
Lisätietoja vedenkäsittelystä:	

## SÄTEILYTURVAKESKUS

## Tutkimus ja ympäristönvalvonta

## Näytetiedot

NÄYTE		Näyttenumero (STUK täyttää):	
<input type="checkbox"/> Ottamolta Ottamon nimi: _____	<input type="checkbox"/> Verkosta <input type="checkbox"/> Laitokselta <input type="checkbox"/> Kuluttajan hanasta		
<input type="checkbox"/> Raakavesi Kaivontyyppi: _____ <input type="checkbox"/> Käsitelty vesi Käsittely: _____ <input type="checkbox"/> Verkostoon menevä vesi Vedenkäsittely: 1. Alkalointi, 2. Raudan/Mangaaninpoisto, 3. Humuksen poisto, 4. Ilmastus, 5. Desinfiointi, 6. Muu, mikä: _____	Mistä ottamosta verkostonäyte tulee: <input type="checkbox"/> Yksi ottamo Ottamon nimi: _____ <input type="checkbox"/> Sekoitus eri ottamoiden vesistä Ottamoiden nimet: _____		
Tuikepullon tunnus: _____ Näytteenottopäivä: _____ Kellonaika: _____ Tuikepullon tunnus: _____ Näytteenottopäivä: _____ Kellonaika: _____ 3 litran näytteen tunnus: _____			
<b>Analyysitulokset</b>			
<sup>222</sup> Rn Bq/l	Kok. α-aktiivisuus Bq/l	Kok. β-aktiivisuus Bq/l	
<sup>226</sup> Ra Bq/l	<sup>228</sup> Ra Bq/l	Uraani μg/l	
<sup>238</sup> U Bq/l	<sup>234</sup> U Bq/l	<sup>234</sup> U/ <sup>238</sup> U	
<sup>210</sup> Pb Bq/l	<sup>210</sup> Po Bq/l	Tutkimushanke:	



## LIITE 3

## Analyysimenetelmät

### <sup>222</sup>Rn

Radon määritettiin nestetuikepulloon otetusta näytteestä. Tuikepulot esitäytettiin tuikeliuoksella (12 ml Packard Ultima Gold XR). Tuikepulot punnittiin ennen näytteenottoa ja näytteenoton jälkeen, jolloin saatiin selville tuikepulloissa oleva vesimäärä. Radonnäytteet mitattiin Guardian 1414-nestetuikelaskurilla tunnin mittausajalla. Radonpitoisuus määritettiin radonin ja sen lyhytikäisten tyttären (<sup>218</sup>Po ja <sup>214</sup>Po) alfahajoamisten perusteella. Määrittäysraja 10 ml näytteelle on 0,2 Bq/l (Salonen 1993, Salonen ja Hukkanen 1997).

### <sup>226</sup>Ra

<sup>226</sup>Ra määritettiin nestetuikemenetelmällä. Suolahapolla kestäväidystä ilmastetusta näytteestä otettiin 38 ml vettä kahdessa 19 ml osassa teflonoituun nestetuikepulloon. 19 ml näytteet haihdutettiin kylmäkuivaajassa. Jäännös liuotettiin 1 ml:aan 0,5 M HCl, minkä jälkeen tuikepulloon lisättiin 21 ml tuikeliuosta (Wallac Highsafe 2). Tuikepullon korkki suljettiin tiiviisti ja näytteitä seisotettiin kuukauden ajan pimeässä, minkä aikana <sup>222</sup>Rn on kasvanut aktiivisuustasapainoon emonuklidinsa <sup>226</sup>Ra kanssa. Tämän jälkeen näytteet mitattiin 6 tunnin mittausajalla Wallacin matalataustaisella Quantulus 1220 nestetuikelaskurilla. Spektristä erottuu <sup>214</sup>Po:n piikki, minkä perusteella <sup>226</sup>Ra pitoisuus laskettiin. Määrittäysraja <sup>226</sup>Ra:lle on noin 0,01 Bq/l (Salonen ja Hukkanen 1997).

### <sup>238</sup>U ja <sup>234</sup>U

Uraanimääritys näytteille tehtiin konsentroimalla ja erottamalla uraani radiokemiallisesti noin litran vesinäytteestä. Erotettu uraani saostettiin keriumfluoridina alfareparaatille, mikä mitattiin Canberran AlphaAnalyst-spektrometrilla. Saalismääritys tehtiin analyysin alussa lisätyn merkkiaineen (<sup>232</sup>U) avulla (Sill 1981, Sill 1987). Analyysien perusteella laskettua MDA (Minimum Detectable Activity) vaihteli välillä 0,0001 – 0,0008 Bq/l molemmille uraanin isotoopeille (kts. Liite 4).

### <sup>210</sup>Pb ja <sup>210</sup>Po

Polonium määritettiin konsentroimalla noin litran vesinäyte haihduttamalla ja saostamalla polonium spontaanisti hopealevylle. Saalismääritys tehtiin ennen konsentroitua lisätyn <sup>209</sup>Po-merkkiaineen avulla. Alfareparaatit mitattiin Canberran AlphaAnalyst-spektrometrilla.

Polonium tuloksista vähennettiin näytteenoton ja polonium saostuksen välisenä aikana näytteessä olleesta lyijystä syntynyt polonium. Vähennyksessä on otettu huomioon lyijyn hajoaminen vismutiksi, joka hajoaa edelleen poloniumiksi (Häsänen 1977).

Lyijymäärityksiä tehtiin kahdella eri menetelmällä. Korkeammista pitoisuuksista lyijymääritys tehtiin noin 1,5 litran näytteestä erottamalla lyijy ekstraktiokromatografiahartsin (Eichrom Sr-resin) avulla. Saalismääritys tehtiin atomiadsorptiospektrofotometrisesti alussa lisätyn inaktiivisen lyijykantajan avulla. Näytteet mitattiin Quantulus 1220 alhaistaustaisella nestetuikelaskurilla, reilun kuukauden kuluttua lyijyn erotuksesta, jolloin  $^{210}\text{Pb}$ :n tytär  $^{210}\text{Bi}$  oli ehtinyt kasvaa aktiivisuustasapainoon (Vadja ym. 1997). Ekstraktiokromatografiamenetelmällä tehtyjen lyijyanalyyysien määritysraja vaihteli alueella 0,02 – 0,04 Bq/l.

Suurin osa vesilaitosvesien lyijypitoisuuksista jäi alle tämän määritysrajan. Näistä vesistä tehtiin lyijymääritys saostamalla poloniumsaostuksesta jäänyt liuos uudelleen noin vuoden kuluttua ensimmäisestä poloniumsaostuksesta. Tässä ajassa liuoksessa lyijystä syntyvä polonium on ehtinyt kasvaa noin 80 % aktiivisuustasapainoon  $^{210}\text{Pb}$ :n kanssa. Määrittämällä  $^{210}\text{Pb}$ :stä syntyneen  $^{210}\text{Po}$ :n pitoisuus, voitiin laskea vesinäytteen lyijypitoisuus.

### **Kirjallisuusviitteet**

Häsänen E. Dating of sediments, based on  $^{210}\text{Po}$  measurements. *Radiochemical and Radioanalytical Letters* 1997; 21 (4-5): 207–214.

Salonen L. Measurement of low levels of  $^{222}\text{Rn}$  in water with different commercial liquid scintillation counters and pulse-shape analysis. Kirjassa: Noakes JE, Schönhofer F, Polach HA (toim.). *Liquid scintillation spectrometry* 1992. Radiocarbon 1993. Michigan: Braun-Brumfield, Inc.; 1993. s. 361–372.

Salonen L, Hukkanen H. Advantages of low-background liquid scintillation alpha-spectrometry and pulse shape analysis in measuring  $^{222}\text{Rn}$ , uranium and  $^{226}\text{Ra}$  in groundwater samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 1997; 226 (1–2): 67–74.

Sill CW. Precipitation of actinides as fluorides or hydroxides for high-resolution alpha spectrometry. *Nuclear and Chemical Waste Management* 1987; 7: 201–215.

Sill CW. Preparation of actinides for spectrometry without electrodeposition. *Analytical Chemistry* 1981; 53: 412–415.

Vadja N, Larosa J, Zeisler R, Danesi P, Kis-Benedek Gy. A novel technique for the simultaneous determination of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  using a crown ether. *Journal Environmental Radioactivity* 1997; 37 (3): 355–372.

## LIITE 4

## Analyysien määrittämissrajat

### <sup>222</sup>Rn

Radonille määrittämissraja LLD on laskettu kaavalla 1.

$$LLD(^{222}\text{Rn}) = \frac{4,66 \cdot \sqrt{\left(\frac{R}{t_b + t_s}\right)}}{E \cdot V \cdot 60} \quad (1)$$

R on taustan pulssitaajuus,  $t_b$  taustan mittausaika,  $t_s$  näytteen mittausaika, E laskentatehokkuus ja V näytteen tilavuus (Salonen 1993).

### <sup>226</sup>Ra

Radiumin määrittämissraja on laskettu samalla kaavalla (1) kuin radonin määrittämissraja.

### <sup>238</sup>U, <sup>234</sup>U, <sup>210</sup>Po

Näiden nuklidien pitoisuuksille alfaspektrometri laskee MDA (Minimum Detectable Activity) arvon Currien menetelmään perustuen (Kaava 2).

$$MDA = \frac{k^2 + 2 \cdot k \cdot \sqrt{x_{bg} + (\sigma(x_{bg}))^2}}{t \cdot \epsilon_e \cdot V} \quad (2)$$

k on käytettävään luottamustasoon liittyvä kerroin, t on mittausaika ja  $\epsilon_e$  on efektiivinen efektiivisyys, joka on laskentatehokkuuden ja kemiallisen saaliin tulo. V näytteen tilavuus.  $x_{bg}$  on taustamittauksessa havaittujen pulssien määrä tutkitulta kanava-alueelta suhteutettuna mittausaikoihin (Kaava 3) ja  $\sigma(x_{bg})$  on  $x_{bg}$ :n epävarmuus.

$$x_{bg} = \left(\frac{t}{t_{bg}}\right)y \quad (3)$$

$t_{bg}$  on taustan mittausaika ja y tutkittavan kanava-alueen pulssimäärä taustaspektrissä. MDA arvoja laskettaessa käytettiin 95 % luottamustasoa, jolloin  $k=1,645$  (Currie 1968).

### <sup>210</sup>Pb

Ekstraktiokromatografiamenetelmällä tehdyille lyijyanalyysille laskettiin määrittämissraja kaavalla 4.

$$LLD = \frac{k^2 + 2 \cdot k \cdot \sqrt{N_p}}{E \cdot V \cdot t} \quad (4)$$

$N_p$  on taustaspektrin pulssimäärä tutkitulla kanava-alueella.

**Kirjallisuusviitteet**

Salonen L. Measurement of low levels of  $^{222}\text{Rn}$  in water with different commercial liquid scintillation counters and pulse-shape analysis. Kirjassa: Noakes JE, Schönhofer F, Polach HA (toim.). Liquid scintillation spectrometry 1992. Radiocarbon 1993. Michigan: Braun-Brumfield, Inc.; 1993. s. 361–372.

Currie LA. Limits for qualitative detection and quantitative determination. Analytical Chemistry 1968; 40 (3): 586–593.

## LIITE 5

## Tulosten käsittely

### Analyysien tulokset

Radonin, lyijyn ja poloniumin pitoisuuksiin tehtiin puoliintumisaikakorjaukset näytteenottohetkeen. Uraanille ja radiumille puoliintumisaikakorjauksia ei tehty, koska analysoitujen uraanin ja radiumin isotooppien puoliintumisajat ovat niin pitkiä,  $T_{1/2}({}^{238}\text{U})=4,5 \cdot 10^9$  a,  $T_{1/2}({}^{234}\text{U})=2,5 \cdot 10^5$  a ja  $T_{1/2}({}^{226}\text{Ra})=1602$  a, että aktiivisuuspitoisuuden pieneneminen lyhyellä aikavälillä radioaktiivisen hajoamisen kautta on merkityksetön.

Radonpitoisuus laskettiin radonin ja sen lyhytikäisten tyttären alfahajoamisten perusteella kaavan 1 mukaisesti.

$$A = \frac{x_a}{t \cdot E \cdot V \cdot (2)^{-\frac{t_n}{T_{1/2}}}} \quad (1)$$

missä  $x_a$  on näytteestä mitattu nettopulssimäärä,  $V$  näytteen tilavuus,  $E$  mittalaitteen laskentatehokkuus,  $t_n$  näytteenoton ja mittauksen välissä kulunut aika ja  $T_{1/2}$  radonin puoliintumisaika.

Aktiivisuuspitoisuuden kokonaisepävarmuus ( $\Delta A$ ) laskettiin kaavalla 2, mihin lasketaan näytteen pulssimäärälle statistinen virhe 68 % luottamustasolla ( $\Delta x_a$ ), pipetoinnista aiheutuva epävarmuus ( $\Delta V$ ) ja nestetuikelaskurin kalibroinnista aiheutuva epävarmuus ( $\Delta E$ ).

$$\Delta A = A \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta x_a}{x_a}\right)^2 + \left(\frac{\Delta V}{V}\right)^2 + \left(\frac{\Delta E}{E}\right)^2} \quad (2)$$

Nettopulssimäärän statistinen virhe 68 % luottamustasolla ( $\Delta x_a$ ) on laskettu kaavalla 3.

$$\Delta x_a = \sqrt{\frac{X_b}{t_b^2} + \frac{X_t}{t_t^2}} \quad (3)$$

missä  $X_b$  on näytteestä mitattu bruttopulssimäärä,  $t_b$  on näytteen mittausaika,  $X_t$  on taustan pulssimäärä ja  $t_t$  on taustan mittausaika.

Ekstraktiokromatografiamenetelmällä tehtyjen lyijyanalyysien tulokset laskettiin vastaavalla kaavalla kuin radontulokset (Kaava 1). Lisäksi tulokseen tehtiin saaliskorjaus, jonka suuruus määritettiin inaktiivisen lyijyn avulla atomiadsorptiospektrofotometrillä (AAS). Ekstraktiokromatografiamenetelmällä tehtyjen lyijyanalyysien kokonaisepävarmuudeksi arvioitiin

15 % suhteellinen epävarmuus, mihin sisältyy epävarmuus mittauksesta, mittalaitteen kalibroinnista ja saalismäärityksestä.

Lyijytuloksista vähennettiin näytteenoton ja ilmastuksen välisenä aikana radonista syntyneen lyijyn määrä (Vesterbacka ja Mäkeläinen 2002). Kuljetuksen aikana syntyneen  $^{210}\text{Pb}$ :n määrä on laskettu näytteenotto paikalla otetun  $^{222}\text{Rn}$ -näytteen perusteella. Tällöin pitää ottaa huomioon näytteenoton yhteydessä lyijynäytteestä poistuva ja kuljetuksen aikana näyteastiasta vuotava radon. Radonin vuotoa tutkimuksessa käytetyistä 3 litran kanistereista arviointiin tekemällä koesarja, jossa tunnetun radonpitoisuuden sisältävää vettä säilytettiin muovikanistereissa 4 – 72 tuntia. Näistä otettiin 4 – 6 tunnin väliajoin radonnäytteet, joiden perusteella laskettiin radonin vuototekijä. Radonin karkaamista näytteenotossa tutkittiin ottamalla näytteitä vedestä, jonka radonpitoisuus tunnetaan, erilaisilla valutusnopeuksilla. Näiden perusteella pystyttiin laskemaan näytteenotossa keskimäärin poistuvan radonin määrä.

Radonista syntyvän lyijyn määrän epävarmuus laskettiin virheen kasautumislailalla. Vähennettäessä radonista syntyneen lyijyn määrä mitatusta lyijymäärästä, mittausepävarmuus laskettiin vähennettävän ja vähentäjän epävarmuuksien neliösumman neliöjuurena.

Uraani- ja poloniumanalyysissä alfaspektrometrin ohjelma Genie-2000 laskee tulokset kaavan 1 mukaisesti. Saaliskorjaus tehdään analyysin alussa lisätyn merkkiaineen avulla. Näytteen ja taustan pulssimäärien mittausepävarmuudet on laskettu 68 % luottamusvälillä. Mittausepävarmuuden lisäksi lopputuloksen epävarmuudessa on huomioitu merkkiaineen aktiivisuuspitoisuuden ja merkkiaineen mittauksesta aiheutuneet epävarmuudet. Kokonaisepävarmuutta laskettaessa (Kaava 2) analyysiin otetun vesimäärän virhe jätettiin huomioimatta, koska se on hyvin pieni ( $< 0,1\%$ ).

Poloniumin lopullinen tulos laskettiin vähentämällä näytteenottohetken korjatusta poloniumtuloksesta näytteenoton ja poloniumsaostuksen välisenä aikana lyijystä syntyneen poloniumin määrä. Vähennyksessä lyijytuloksena käytettiin lyijyn aktiivisuuspitoisuutta, josta ei ole vähennetty radonista syntyvän lyijyn määrää, koska myös radonista syntynyt lyijy hajoaa poloniumiksi. Periaatteessa vähennys on vähän liian suuri, koska lyijy syntyy radonista vähitellen näytteenoton ja ilmastuksen välisenä aikana. Vähennyksessä taas oletetaan radonista syntyneen lyijyn pitoisuuden olleen koko ajan vakio.

## LIITE 5

Radiumin aktiivisuuspitoisuus laskettiin  $^{214}\text{Po}$ :n piikin pulsseista (Kaava 4).

$$Ra226 = \frac{A(\text{cpm}) - \text{tausta}}{60 \times V \times E} \quad (4)$$

$A$  (cpm) on spektristä rajatun  $^{214}\text{Po}$  piikin laskentataajuus ja tausta vastaavan alueen taustan laskentataajuus.  $E$  on käytetty laskentatehokkuus ja  $V$  näytemäärä.  $^{214}\text{Po}$  piikin laskentataajuuden pulssimäärien epävarmuus on laskettu 68 % luottamusväkillä ja kokonaisepävarmuus on laskettu virheen kasautumislailalla (Kaava 5). Laskentatehokkuudelle arvioitiin suhteelliseksi virheeksi 5 % ja analyysiin käytetylle vesimäärälle 2,6 %.

$$\sigma(Ra226) = \sqrt{\frac{(\sigma(A))^2}{(60 \cdot V \cdot E)^2} + \left(\frac{A}{60 \cdot E \cdot V^2}\right)^2 \cdot (\sigma(V))^2 + \left(\frac{A}{60 \cdot E^2 \cdot V}\right)^2 \cdot (\sigma(E))^2} \quad (5)$$

### Radionuklidien poistumaprosentti vedenkäsittelyprosesseissa

Vedenkäsittelyprosesseissa osa radionuklideista poistuu vedestä. Tulosten perusteella laskettiin eri radionuklideille poistumaprosentit kaavan 6 mukaan.

$$\text{Poistumaprosentti} = \frac{A_1 - A_2}{A_1} \cdot 100\% \quad (6)$$

$A_1$  on radionuklidin aktiivisuuspitoisuus ennen käsittelyä ja  $A_2$  aktiivisuuspitoisuus käsittelyn jälkeen. Tutkittaessa verkoston vaikutusta radionuklidien pitoisuuksiin  $A_1$  on ottamolta lähtevän veden ja  $A_2$  verkostonäytteen aktiivisuuspitoisuus.

Mikäli  $A_2$  on suurempi kuin  $A_1$ , tulee poistumaprosentista negatiivinen. Tämä tarkoittaa käytännössä sitä, että tutkitussa prosessissa kyseisen aineen pitoisuus vedessä on lisääntynyt. Kun vertailtavat pitoisuudet ovat hyvin pieniä, voi negatiivisen poistumaprosentin lukuarvosta tulla itseisarvoltaan hyvinkin suuri. Negatiivinen poistumaprosentti kuvaa lähinnä tutkitussa prosessissa tapahtuvaa pitoisuuden muutosta, eikä niinkään pitoisuuden muutoksen suuruutta.

Yksittäisen poistoprosentin epävarmuus on laskettu virheenkasautumislain (Kaava 7) mukaan.

$$\Delta(\text{Poistumaprosentti}) = \sqrt{\left(\frac{\Delta A_2^2}{A_1^2}\right) + \left(\frac{\Delta A_1^2 \cdot A_2^2}{A_1^4}\right)} \quad (7)$$

Poistumaprosenttia ei ole laskettu, mikäli jompikumpi tai molemmat tuloksista ovat pienempiä kuin menetelmän määrittämissä raja-arvoissa. Poikkeuksena tähän ovat ne tulokset, joissa toinen tulos on selvästi suurempi kuin määrittämissä raja-arvoissa, jolloin poistumaprosenttia laskettaessa toisena arvona on käytetty määrittämissä raja-arvoissa.

### Aktiivisuussuhteet

Verrattaessa kahden näytteenottokerran aktiivisuuksia laskettiin aktiivisuuspitoisuuksien suhde (Kaava 8).

$$r = \frac{A_1}{A_2} \quad (8)$$

$r$  on aktiivisuuspitoisuuksien suhde,  $A_1$  on aktiivisuuspitoisuus ensimmäisellä näytteenottokerralla ja  $A_2$  on aktiivisuuspitoisuus toisella näytteenottokerralla. Suhteen virhe laskettiin kaavalla 9.

$$\Delta r = r \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta A_1}{A_1}\right)^2 + \left(\frac{\Delta A_2}{A_2}\right)^2} \quad (9)$$

### Kirjallisuusviitteet

Vesterbacka P, Mäkeläinen I. Sampling of  $^{210}\text{Pb}$  in radon-bearing drinking water. Kirjassa: Möbius S, Noakes J, Schöhofer F (toim.). LSC 2001, Advances in liquid scintillation spectrometry. Arizona: Radiocarbon; 2002. s. 317-325.