Zeitschrift: Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz = Radioactivité de l'environnement et doses de rayonnements en Suisse = Radioattività dell'ambiente e dosi d'irradiazione in Svizzera

Herausgeber: Bundesamt für Gesundheit, Abteilung Strahlenschutz

Band: - (1993)

Rubrik: Allgemeine Überwachung

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Mehr erfahren

Conditions d'utilisation

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. En savoir plus

Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. Find out more

Download PDF: 01.10.2025

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, https://www.e-periodica.ch

3. ALLGEMEINE ÜBERWACHUNG

3.1. LUFT, NIEDERSCHLÄGE, FLUSSWASSER, BODEN, GRAS

H. Surbeck und G. Ferreri Sektion Überwachung der Radioaktivität (SUeR)
Bundesamt für Gesundheitswesen, ch. du Musée 3,
1700 Fribourg

3.1.1 Zusammenfassung

Die Aktivität künstlicher Radionuklide war 1993 in den Niederschlägen und im Flusswasser ausserhalb des Nahbereichs kerntechnischer Anlagen sehr tief. ^{137}Cs war nur in wenigen Proben im Bereich mBq/Liter feststellbar.

Auch in den Aerosolproben waren die Aktivitäten künstlicher Radionuklide 1993 sehr tief. Nur dank den grossen Luftdurchsätzen bei den Stationen Oberschrot/FR und Mte Ceneri/TI konnten noch Spuren von ^{137}Cs und vereinzelt ^{134}Cs nachgewiesen werden.

In Bodenproben war der Einfluss des Tschernobyl-Fallouts von 1986 noch deutlich zu erkennen, in Grasproben nur noch vereinzelt.

3.1.2 Messprogramm

Die Gruppe "Allgemeine Überwachung" ist für die Überwachung der Umweltradioaktivität ausserhalb des Nahbereichs kerntechnischer Anlagen verantwortlich. Sie führt zudem die gammaspektrometrischen Laboranalysen für die gesamte Sektion durch. Die Überwachung der Lebensmittel wird zunehmend von den kantonalen Laboratorien vorgenommen, wie dies auch in der neuen StSV vom 22.6.94 vorgesehen ist. Deshalb sind in diesem Kapitel keine Resultate mehr für Lebensmittel enthalten. Es existiert dafür ein spezielles, in Zusammenarbeit mit den kantonalen Laboratorien erstelltes Kapitel.

3.1.3 Methodik

Probenahme und Probenvorbereitung für die routinemässige gammaspektrometrische Analyse wurden in früheren Jahresberichten zur Genüge beschrieben. Hier soll nur auf Neuentwicklungen und Verbesserungen der Messmethodik eingegangen werden. Die teilweise Entlastung von Routinemessungen durch die kantonalen Laboratorien hat uns ermöglicht, in diese Gebiete etwas mehr Zeit zu investieren.

Low-level Gammaspektrometrie

Mit zwei Bohrlochdetektoren (HP-Ge) ist es uns nun möglich, zuverlässige Analysen an Proben von einigen Gramm durchzuführen. Die Nachweisgrenze mit diesen Detektoren liegt für eine Probe von 3 g und eine Messzeit von 2 Tagen z.B. für ^{137}Cs unter 1 Bq/kg.

Proben im Gramm-Bereich und darunter fallen bei der Untersuchung von Trinkwasser an. Jeweils 1 Liter Wasser werden für die Analyse eingedampft und im Bohrlochdetektor gemessen. Auf dem Umweg über gammastrahlende Tochterprodukte können wir damit auch einen grossen Teil der natürlichen Alphastrahler im Wasser im 100 mBq/Liter-Bereich erfassen. Eine Untersuchung des Trinkwassers in der Schweiz wurde 1993 gestartet. Erste Resultate werden im nächsten Jahresbericht folgen. Bisher existieren kaum nuklidspezifische Daten für unsere Trinkwässer, inbesondere nicht für natürliche Radionuklide. Dabei weisen einige der natürlichen Radionuklide, die im Trinkwasser auftauchen können hohe Radiotoxizitäten auf.

Alphaspektrometrie

Alphaspektrometrie ist das Stiefkind der meisten Labors, die routinemässig Umweltproben analysieren, obwohl gerade die Alphastrahler aufgrund ihrer hohen Radiotoxizität besondere Beachtung verdienen. Der Grund dafür liegt bei der, mit der traditionellen Radiochemie, sehr zeitaufwendigen Probenpräparation. Wir versuchen daher seit mehreren Jahren neue, wesentlich vereinfachte Probenvorbereitungen zu entwickeln.

Für die Analyse von Trinkwasserproben haben wir dazu in Zusammenarbeit mit der Ingenieurschule Fribourg und dem Fraunhofer-Institut für Mikroelektronik in Dresden selektiv Radium und Polonium adsorbierende dünne Schichten entwickelt. Die Bestimmung von Radium und Polonium im 10 mBq/Liter-Bereich im Trinkwasser ist damit sehr einfach geworden. Mit diesen Schichten belegte Si-Plättchen werden wärend 20 h in die zu untersuchende Probe gehängt, anschliessend getrocknet und mit einem Si-Sperrschicht-Detektor gemessen. Etwa 70% der in der Probe enthaltenen Radium- und Poloniumaktivität sind nach 20 h Exposition als dünne Schicht auf dem Plättchen abgelagert. Die aktive Schicht ist so dünn, dass sie die Energieauflösung bei der Alphaspektrometrie kaum beeinflusst. Fig. 1 zeigt das Alphaspektrum einer damit untersuchten Probe eines in der Schweiz verkauften ausländischen Mineralwassers.

Ebenfalls für die Untersuchung von Wasserproben benützen wir seit 1993 einen Flüssig-Szintillator-Detektor mit einer Alpha/Beta-Diskriminierung. Wir haben die Präparation so weit vereinfacht, dass nur noch ca. 30 Minuten dafür nötig sind und auf gefährliche Chemikalien verzichtet werden kann. Wir erreichen damit bei Messzeiten von einem Tag Nachweisgrenzen für z.B. ^{238}U von etwa 30 mBq/Liter.

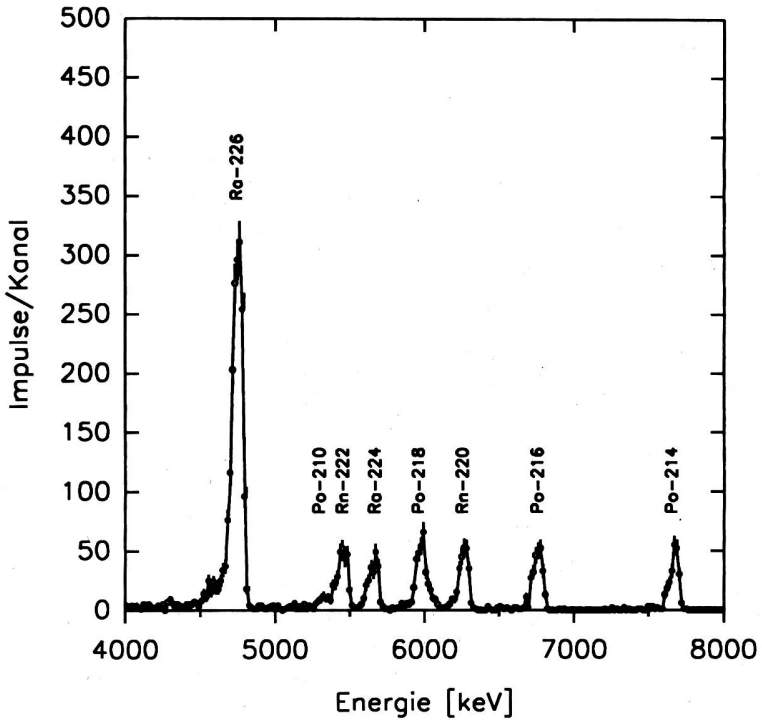


Fig. 1 : Alphaspektrum einer Mineralwasserprobe. Radium absorbierendes Plättchen wärend 20 h in 80 ml der Probe exponiert. Messung mit Si-Oberflächen-Sperrschicht Detektor. Messzeit 160'000 s.

Ergebnisse

Untenstehend werden nur die Resultate der Proben gezeigt, die gemäss dem Probenahmeplan genommen und im Labor der SUeR gemessen wurden. Resultate von Proben aus der Umgebung von kerntechnischen Anlagen sind hier nicht enthalten; dafür existiert ein separates Kapitel (Kapitel 4). Resultate für Lebensmittel sind im Kapitel "Lebensmittel" und für diverse Boden- und Grasproben, die von anderen Labors gemessen wurden, im Anhang zu diesem Kapitel aufgeführt.

Aerosolproben

a) Höhenflugfilter

Figur 2 zeigt die der Resultate der Messungen an Höhenflugfiltern seit 1990. Nicht nur die ^{7}Be-Aktivität steigt innerhalb der Tropopause (ca 11'000 m ü M) steil an, sondern auch die Cs-Aktivität. Das ^{137}Cs/^{134}Cs Verhältnis zeigt, dass das Cs-Inventar in der Stratosphäre nun im wesentlichen vom Unfall in Chernobyl stammt. Aus den Daten in Figur 2 ist auch ersichtlich, dass ein erheblicher Transport von Cs aus der Stratosphäre in die Troposphäre stattfindet.

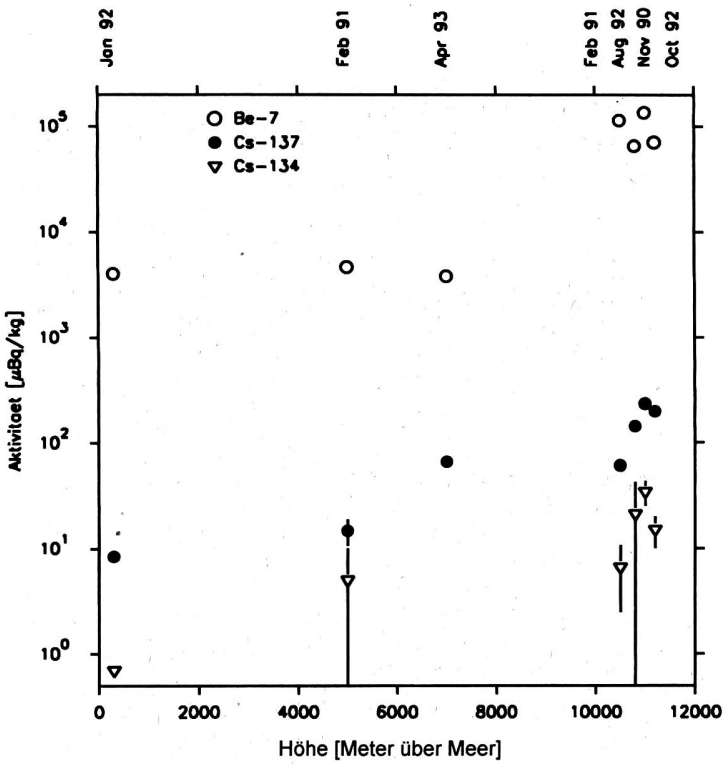


Fig. 2 : ^{7}Be, ^{134}Cs und ^{137}Cs auf den Höhenflugfiltern seit 1990.

b) Aerosol-Sammler mit grossem Durchfluss

Die Daten, die mit den beiden Aerosolsammler seit ihrer Inbetriebnahme gesammelt wurden, sind auf den Figuren 3 und 4 zu sehen. Für die Perioden, in denen die Durchflussmessung ausgefallen war, kann nur das Verhältnis der Aktivitäten angegeben werden. Der Aerosolsammler I wurde im April 1991 von Fribourg nach Oberschrot versetzt, der Aerosolsammler II im Juli 1991 von Fribourg auf den Mte. Ceneri.

Die Werte auf dem Mte. Ceneri liegen deutlich höher als in Oberschrot, was auf die höhere Aktivität der resuspendierten Teilchen im Tessin zurückzuführen sein könnte.

Für die Aerosolproben von Januar bis Juli 1992 vom Mte. Ceneri, als die ^{134}Cs-Aktivitäten noch gut messbar waren, sind in Fig. 5 die ^{134}Cs-Werte gegen die ^{137}Cs-Werte aufgetragen. Die Steigung der Regressionsgeraden stimmt recht gut mit dem für den Tschernobyl-Fallout zu erwartenden Wert überein.

Während des Ausfalls des Gerätes in Oberschrot wurden die Filter des kleinen Aerosolsammlers in Fribourg gemessen. Die ^{137}Cs Aktivität lag 1993 in allen mit dem kleinen Aerosolsammler erhobenen Proben unter 10 µBq/m^3.

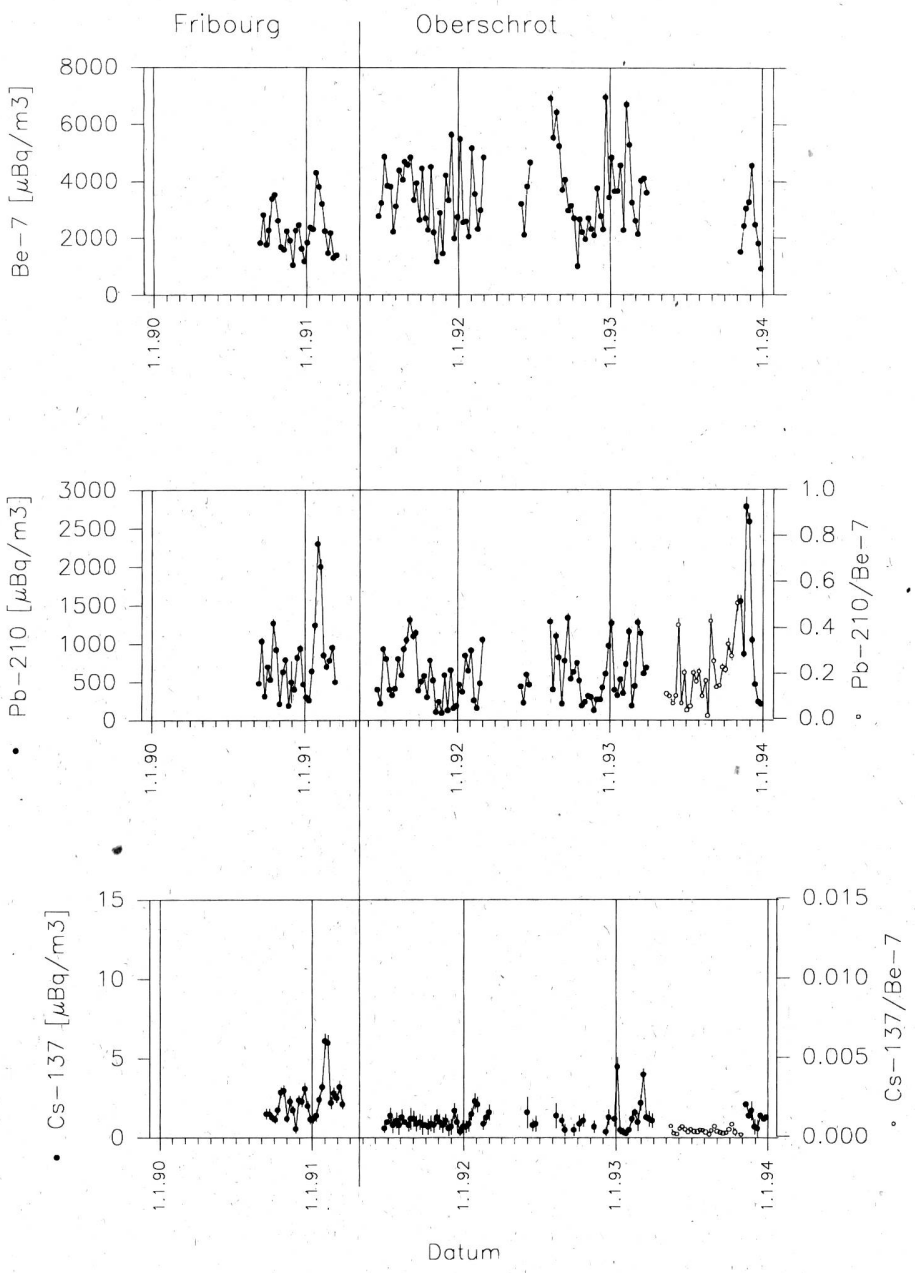


Fig. 3 : ^{7}Be, ^{210}Pb und ^{137}Cs für den Aersolsammler I, der zuerst am Standort Fribourg (Physikinstitut) und später in Oberschrot/FR aufgestellt war. Für die Perioden, in denen die Durchflussmessung ausgefallen war, sind ^{210}Pb und ^{137}Cs relativ zum ^{7}Be angegeben (offene Kreise).

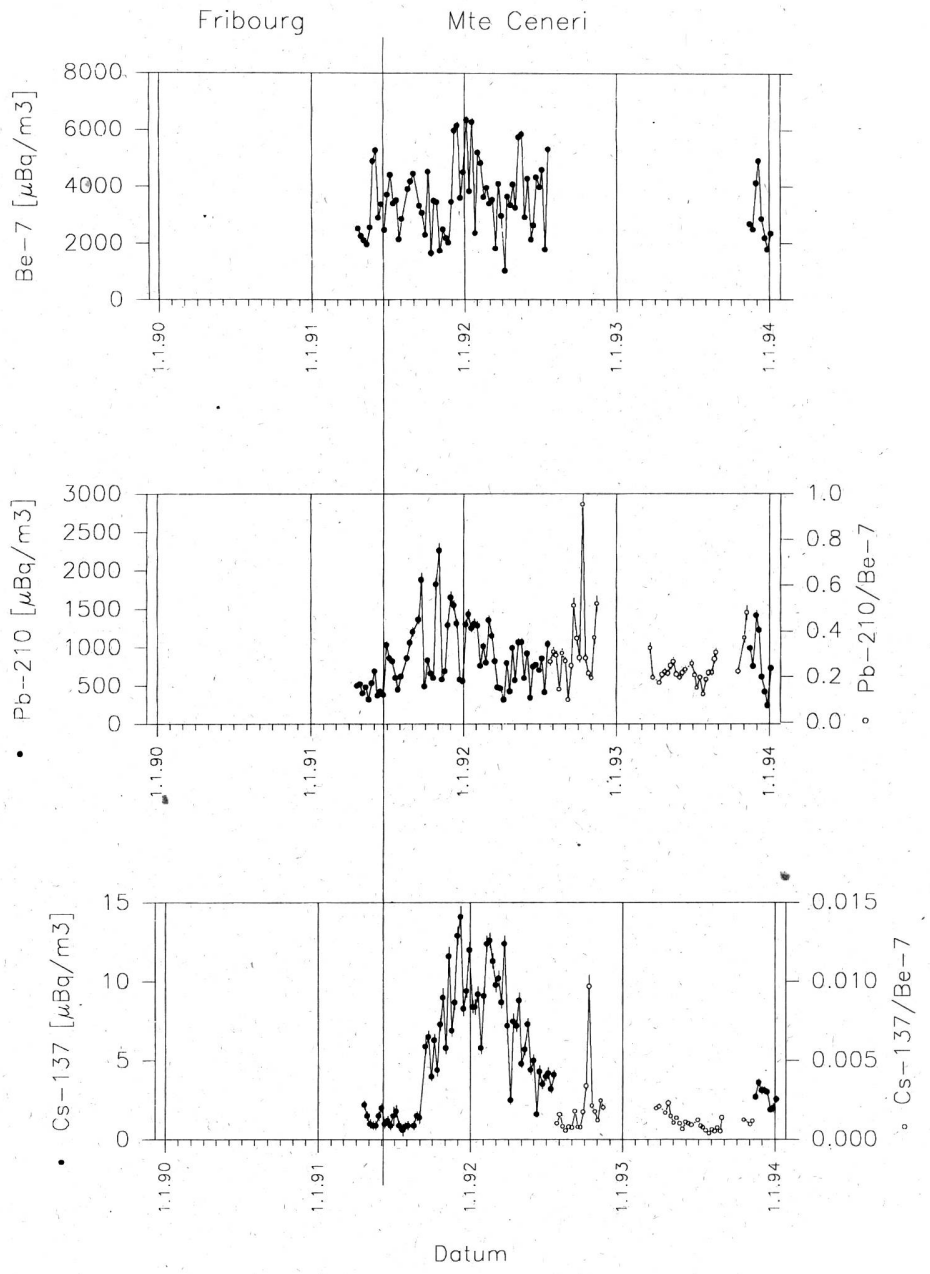


Fig. 4 : ^{7}Be, ^{210}Pb und ^{137}Cs für den Aersolsammler II, der zuerst am Standort Fribourg (Physikinstitut) und später in Monte Ceneri/TI aufgestellt war. Für die Perioden, in denen die Durchflussmessung ausgefallen war, sind ^{210}Pb und ^{137}Cs relativ zum ^{7}Be angegeben (offene Kreise).

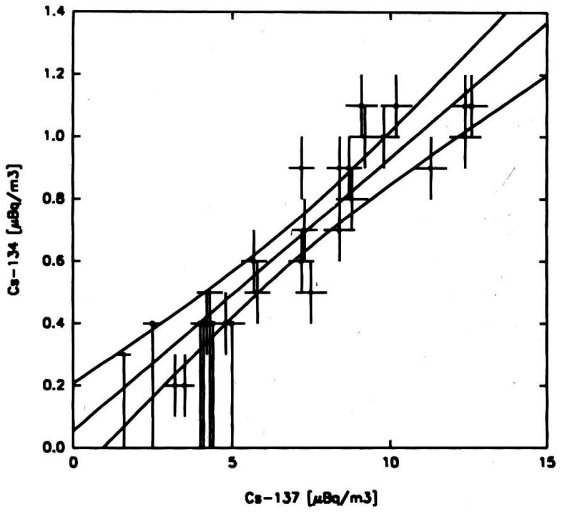


Fig. 5 : ^{134}Cs und ^{137}Cs für den Aerosolsammler II am Standort Monte Ceneri für die Periode Januar bis Juli 1992. Eingetragen ist auch die Regressionsgerade mit 99% Vertrauensgrenzen.

Regen und Trockenstaub-Ablagerungen

Die ^{137}Cs Aktivitäten im Regen von Cernier/NE, Davos, Fribourg, Locarno und Valsainte/FR lagen 1993, mit einer Ausnahme, in allen Monaten unter 15 mBq/Liter. Die Ausnahme betrifft die Januar-Probe von Locarno. Wegen der sehr kleinen Regenmenge lag hier die Nachweisgrenze bei 70 mBq/Liter.

Die Aktivitäten des natürlicherweise vorhandenen ^{7}Be in den Regenproben sind in Figur 6 zu sehen.

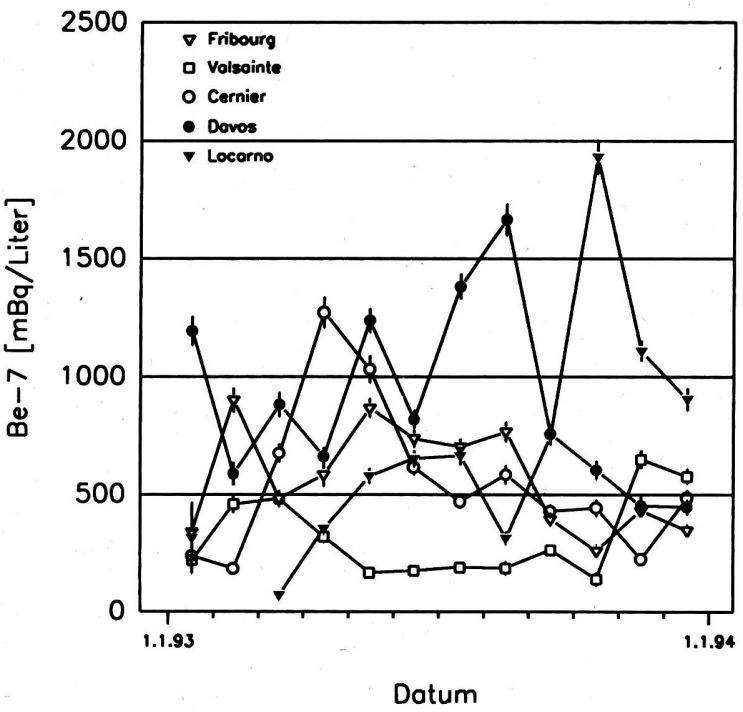


Fig. 6 : ^{7}Be im Regen an den Standorten Fribourg, Valsainte/FR, Cernier/NE, Davos und Locarno.

An einer Stelle in der Schweiz, in Locarno-Monti, werden Regen und Trockenstaubablagerungen separat gesammelt. Figur 7 zeigt einen Vergleich der Nass- und Trockendeposition des ^{7}Be. Die Ablagerung mit dem Regen überwiegt deutlich.

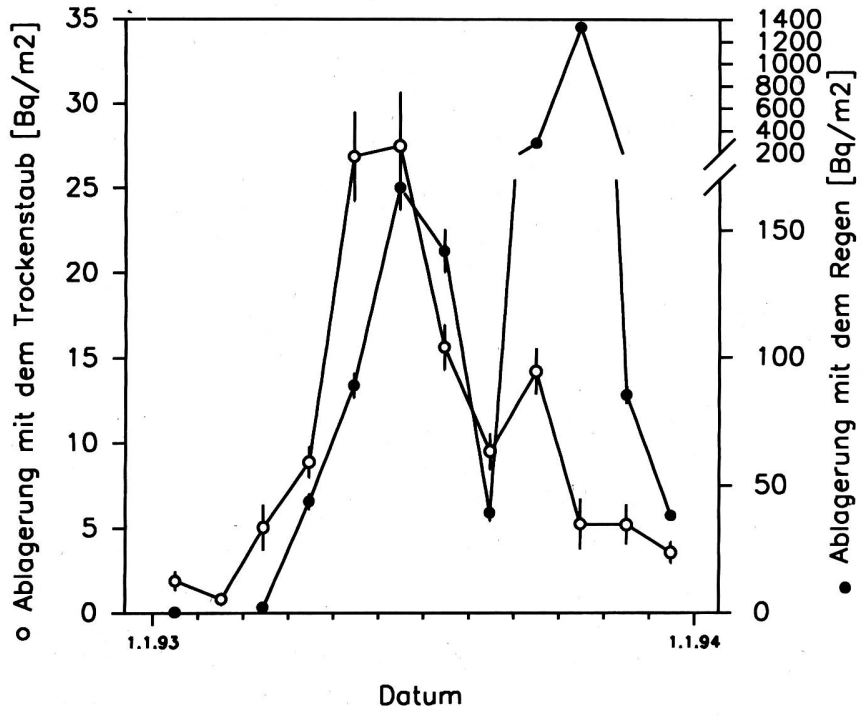


Fig. 7 : ^{7}Be-Ablagerung mit Regen und Trockenstaub in Locarno-Monti.

Die Ablagerung von ^{137}Cs ist auf dieser Figur nicht angegeben, da die ^{137}Cs-Aktivitäten sowohl im Regen als auch im Trockenstaub 1993 kaum je über der Nachweisgrenze lagen. Sie liegt aber sicher zwei Grössenordnungen tiefer als für das ^{7}Be.

Flusswasser

Die ^{137}Cs Aktivitäten lagen 1993 in allen Flusswasserproben (Rhône Valais, Rhône Genève, Ticino, Doubs) unter 30 mBq/Liter (monatliche Sammelproben).

Erde

Die ^{137}Cs Aktivitäten im Boden zeigen das schon 1986 festgestellte Muster des Tschernobyl-Fallouts (Tab. 1).

Gras

Die ^{137}Cs Aktivitäten liegen in allen Proben in Tab. 2 unter 100 Bq/kg Trockensubstanz. Zum Vergleich beträgt die natürliche ^{40}K-Aktivität in diesen Proben im Mittel ca. 900 Bq/kg Trockensubstanz.

Tab. 1: ^{40}K-, ^{134}Cs- und ^{137}Cs-Aktivitäten in **Bodenproben**. Werte in Bq/kg Trockengewicht, bezogen auf das Probenahmedatum. Wenn nicht anders angegeben, wurde die Schicht 0-5 cm erhoben.

Ort	Probenahme-datum	^{40}K	^{134}Cs	^{137}Cs
Arenenberg/TG	13.05.93	370±15	5±1	87±3
Sessa / TI	07.06.93	600±20	19±1	360±7
Rasa / TI	03.06.93	640±20	13±1	280±6
Rodi-Fiesso/TI	02.06.93	450±20	9±1	170±3
Grangeneuve / FR	28.06.93	340±15	< 0.4	12±1
Davos-Stillberg/GR	29.06.93	640±20	2±1	130±4
Mürren / BE	27.07.93	380±20	< 0.5	35±1

Tab. 2: ^{40}K-, ^{134}Cs- und ^{137}Cs-Aktivitäten in **Grasproben**. Werte in Bq/kg Trockengewicht, bezogen auf das Probenahmedatum.

Ort	Probenahme-datum	^{40}K	^{134}Cs	^{137}Cs
Grangeneuve/FR	28.06.93	920±40	< 2	< 3
Römerswil/FR	18.10.93	860±40	< 2	< 4
Arenenberg/TG	13.05.93	1030±50	< 1	2.0±0.5
Chur/GR	13.05.93	790±40	< 1	< 2
Mürren/BE	27.07.93	940±50	< 4	3±2
Davos-Stillberg/GR	29.06.93	830±40	< 1	10±2
Davos-Stillberg/GR	22.09.93	690±40	< 1	2±1
Rodi-Fiesso/TI	02.06.93	850±40	< 2	< 3.5
Rodi/Fiesso/TI	27.07.93	2330±230	< 13	44±15
Intragna / TI	22.07.93	940±50	4.4±0.9	98±5
Rasa/TI	03.06.93	910±50	< 1	21±2
Sessa/TI	07.06.93	990±50	< 1.5	4±1
Sessa TI	26.07.93	1440±70	< 3	7±2

Anhang:

Weitere Resultate von Erde, Gras und Tritium in den Niederschlägen

a) Untersuchung von Erde- und Grasproben an Kantonalen Laboratorien
(ohne Proben aus der Umgebung von Kernanlagen)

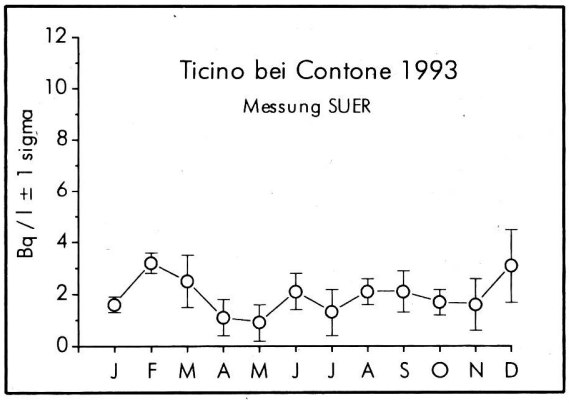
Angaben in Bq/kg Trockensubstanz

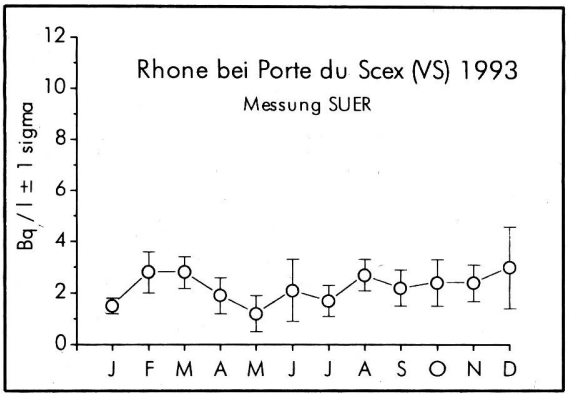
Probe	Ort/Gegend	Anzahl	Kalium-40	Caesium-137	Caesium-134
Erde	Sissach/BL	1	590	52	2
Gras	Sissach/BL	1	1600	1.7	≤ 0.2
Heu	Val Poschiavo/GR	1	430	7.5	≤ 2
Heu	Val Bregaglia/GR	2	390 - 460	31 - 59	≤ 2 - 3
Heu	Val Mesolcina/GR	5	500 - 1040	8 - 56	> 2 - 3
Gras	Wil/SG	1	1300	≤ 0.4	≤ 0.3

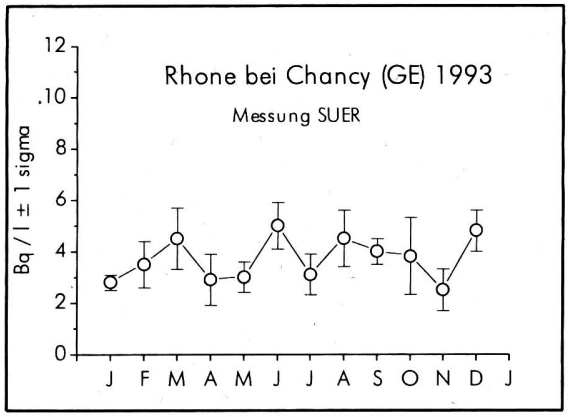
b) Tritium-Messungen in Niederschlägen und Flüssen

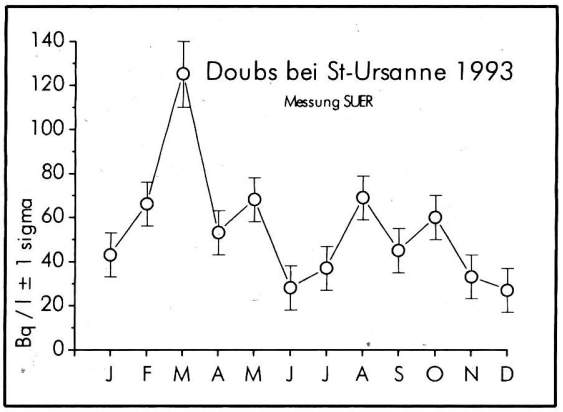
Die 1993 durch die SUER aufgenommenen Tritium-Messungen im Low-Level-Bereich sind auf Fig. 8 graphisch dargestellt. Niederschlagsproben von Basel-Stadt werden vom Kantonalen Laboratorium Basel-Stadt (z.T. wöchentlich und z.T. auch täglich) auf Tritium untersucht. Die auf die Monate umgerechneten Werte sind auf Fig. 8 dargestellt.

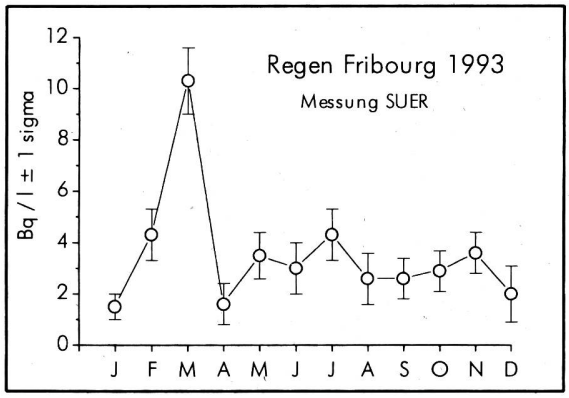
Fig. 8 : Tritium-Messungen in Flusswasser und Niederschlägen 1993
(monatliche Sammelproben)

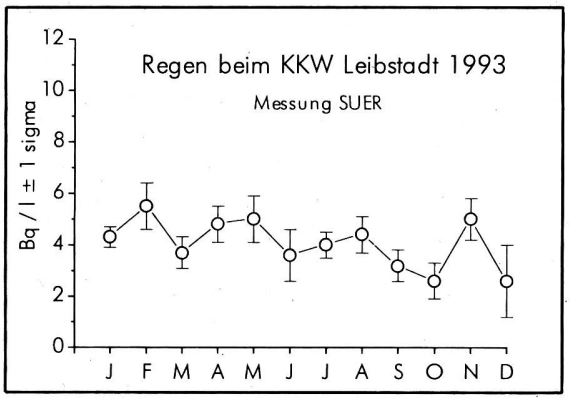


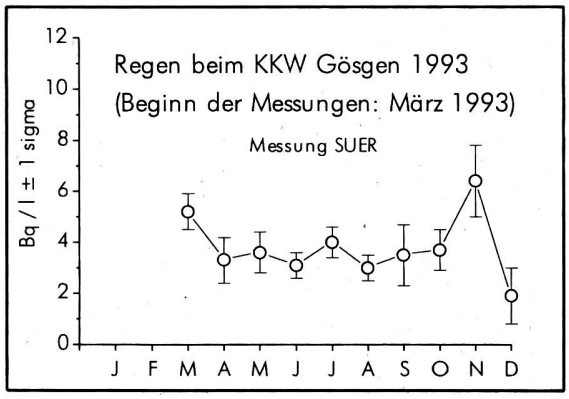


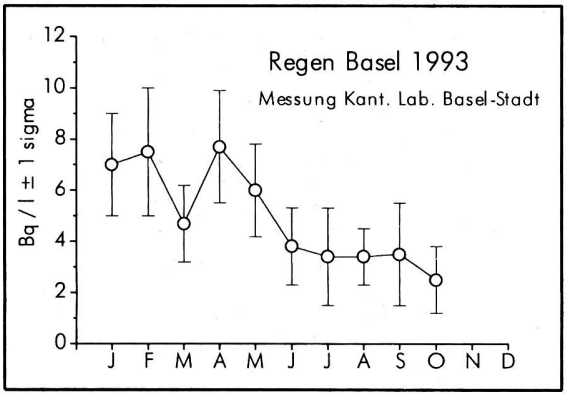












3.2. TRITIUM-, KOHLENSTOFF-14-, ARGON-37- UND KRYPTON-85-AKTIVITÄTEN IN UMWELTPROBEN

H. Loosli und U. Schotterer

Abt. Klima- und Umweltphysik, Physikalisches Institut, Universität Bern
Sidlerstr. 5, 3012 BERN

W. Weiss Institut für Atmosphärische Radioaktivität, Bundesamt für Strahlenschutz
Rosastrasse 9, D-79098 FREIBURG IM BREISGAU

3.2.1. Zusammenfassung

Tritium-Aktivitäten in Niederschlägen werden seit Juli 1992 auch im Auftrag der Landeshydrologie und -geologie an gewissen Stationen gemessen. Deshalb sind in diesem Bericht neu auch Resultate der Stationen Vaduz/FL und Changins/VD aufgeführt. Die gemessenen Tritium Aktivitäten in Niederschlägen liegen zwischen 0,4 und 27 Bq/l und sind eine Kombination von natürlichem durch die kosmische Strahlung produziertem Tritium, von Bombenbeiträgen und von Industrietritium. Ein Jahresgang ist höchstens bei La Brévine und ev. Locarno zu sehen; bei Stationen mit Industrietritium (z. B. Bern und Basel) zeigen sich unregelmässige Schwankungen. Der Tritium-Gehalt in der Aare bei Brienzwiler beträgt im Mittel 1,6 Bq/l; die Aare kann dort als von Industrieabgaben unbeeinflusstes Oberflächengewässer angesehen werden. Demgegenüber zeigt das Aarewasser bei Brugg wegen künstlichen Beiträgen erhöhte Werte mit einem Mittel von ca. 7 Bq/l. Allfällige Strahlendosen, falls jemand Regen- oder Flusswasser trinkt, fallen nicht ins Gewicht.

$\Delta^{14}C$ Aktivitäten sind in Baumblättern aus der Umgebung von Schweizer Kraftwerken bis ca. 100 ‰ gegenüber derjenigen an Referenzstationen erhöht (z. B. in der Umgebung des KKL). Drei Stichproben aus der Umgebung des KKG zeigen jedoch sehr geringe Erhöhungen; diese liegen nahe an der Nachweisgrenze. Die grössten Erhöhungen (bis 600 ‰) treten nach wie vor in der unmittelbaren Umgebung des Forschungsreaktors Saphir auf.

Die ^{37}Ar-Aktivität in Troposphärenluft lag 1993 wie in früheren Jahren zwischen ca. 1 und 4 mBq/m^3 Luft.

Der ^{85}Kr-Level in der Troposphäre liegt heute bei knapp über 1 Bq/m^3 Luft. Die auf dem Jungfraujoch gewonnenen wöchentlichen Proben zeigen oft eine etwas geringere ^{85}Kr-Aktivität als Proben aus tieferen Lagen. Ferner weisen die Kurzzeitschwankungen (wegen schlecht verdünnter Abluftfahnen einer Wiederaufbereitungsanlage) auf dem Jungfraujoch kleinere Amplituden auf als an der Station Schauinsland.

3.2.2. Tritium in Niederschlägen (Tabelle 1, Figuren 1a-1e)

Seit Juli 1992 wird von der Abteilung Klima- und Umweltphysik (KUP) im Auftrage der Landeshydrologie- und geologie (LHG) ein Messnetz betrieben, für das ebenfalls Tritium in

Niederschlägen und Flusswasser gemessen wird. Die Daten werden von der LHG in einer noch zu bestimmenden Form regelmässig publiziert. Im Laufe der 1 1/2-jährigen Pilotphase wurde dem Vorschlag der KUP zugestimmt, die Daten auf Wunsch beiden Partnern, der LHG und dem BAG, zur Verfügung zu stellen. Die Niederschlagsstationen umfassen:

- Bern (KUP, BAG)
- Meiringen (KUP)
- Guttannen (KUP, BAG)
- Grimsel (KUP, LHG)
- Locarno (KUP, BAG)
- Vaduz (LHG)
- Changins (LHG)
- La Brevine (BAG)
- Basel (BAG)

Ein klarer jahreszeitlicher Verlauf der Tritiumaktivitäten ist nur in La Brevine erkennbar, wobei dieser durch deutlich erhöhte Sommerwerte hervorgerufen wurde. Bei den übrigen Stationen ist der Jahresgang durch erhöhte Herbst- oder Winterwerte verdeckt. Eine flächenmässige Systematik der erhöhten Werte ist nicht erkennbar. Die Ursachen dafür liegen, wie schon in früheren Berichten erwähnt, in den lokal stark wechselnden Anteilen von Industrietritium. Laborinterne Kontamination kann aufgrund systematischer Kontrollmessungen ausgeschlossen werden. Zudem ist zu beachten, dass ein möglicher Jahresgang bei den heutigen geringen Konzentration schwierig zu sehen ist, weil die statistischen Schwankungen bei der Messung im Liquid-Szintillationszähler bereits zu einem relativen Fehler von 10 bis ca. 30 % führen.

Die niederschlagsgewichteten Jahresmittel der Tritiumkonzentrationen liegen bei den 9 angeführten Stationen (Tabelle 1) zwischen 1,5 und 5,5 Bq/l Wasser.

3.2.3. Tritium in Flüssen (Tabelle 1, Figuren 1f und 1g)

Für die LHG wird seit Juni 1992 auch Tritium an 2 Flusswasserstationen an der Aare gemessen. Die Station Aare/Brienzwiler wird in diesem Bericht als Referenzstation für junges, von Industrietritium weitgehend unbeeinflusstes Oberflächenwasser angegeben (Figur 1f und Tabelle 1). Die Jahresmittelwerte der Aare bei Brugg (Figur 1g und Tabelle 1) sind dagegen deutlich erhöht. Der weitaus grösste Anteil der Erhöhung dürfte von Industrietritium und Kernanlagen stammen. Die Erhöhung der Tritiumkonzentrationen wegen den gegenüber Brienzwiler längeren mittleren Verweilzeit in Grundwasser und Seen spielt dagegen vermutlich eine untergeordnete Rolle. Es ist geplant, für das BAG an der Aare unterhalb Bern die Tritiumbilanzierung zu verbessern.

3.2.4. Kohlenstoff-14 in Baumblättern

An den Referenzstationen (Imihubel auf dem Längenberg, BE, und Wiler auf dem Belpberg, ebenfalls ca. 15 km südlich von Bern) zeigt sich immer noch eine Überschuss-^{14}C-Aktivität von ca. 130 ‰ (Figur 2). Diese stammt grösstenteils noch von den Kernwaffentests der 60er-Jahre. Die atmosphärische ^{14}C-Aktivität hat in den letzten Jahren und Jahrzehnten deshalb abgenommen, weil das CO_2 der Atmosphäre langsam mit dem weniger aktiven CO_2 der

Weltmeere ausgetauscht wird und weil die $^{14}CO_2$-Aktivität durch C-14-freies CO_2 aus der Verbrennung von Oel und Kohle verdünnt wird. Während die zusätzliche Aktivität gemäss unseren Messungen von 1977 bis ca. 1989 ungefähr linear abzunehmen schien, ist in den letzten 3 - 4 Jahren eine verlangsamte Abnahme festzustellen. Dies stimmt besser mit einem von Modellen vorausgesagten exponentiellen Rückgang überein als mit einem linearen Rückgang.

Die Netto $\Delta^{14}C$-Erhöhungen in der Umgebung des Kernkraftwerkes Leibstadt sind in Fig. 3 für die letzten 3 Jahre dargestellt. Die grössten Erhöhungen kommen in ca. 1 - 2 km Entfernung vom Emissionspunkt vor und betragen 80 - 120 ‰. Mit zunehmender Distanz nehmen die Netto ^{14}C-Erhöhungen in dem ausgemessenen West-Ost-Profil infolge der Verdünnung im Rheintal rasch ab. Die Netto $\Delta^{14}C$-Werte der letzten Jahre sind mit den Erhöhungen früherer Jahre vergleichbar; so ist beispielsweise am Standort Schlüsselgraben auch 1987 und 1988 schon ein Nettowert von ca. 110 ‰ bestimmt worden (vergl. 30. KUeR-Bericht für die Jahre 1987 und 1988, Seite 98). Aus diesen Beobachtungen kann geschlossen werden, dass das Produkt aus Emissionen und Langzeitverdünnungsfaktor in den letzten Jahren schätzungsweise auf ca. 50 % gleich geblieben ist.

Die zusätzliche ^{14}C-Aktivität an Standorten in der Nähe des KKB/PSI, welche in der Figur 4 dargestellt sind, können von beiden Anlagen stammen. Die am Standort Wasserkraftwerk gemessenen Erhöhungen sprechen im Vergleich zu denjenigen am Ort EIR-Ost eher dagegen, dass der Reaktor Saphir alleinige Quelle der zusätzlichen ^{14}C-Aktivität ist. In den letzten 10 Jahren wurde ein recht konstanter Level an den 4 Standorten festgestellt; beispielsweise wiesen die Bäume am Standort Au, der zwischen KKB und PSI gelegen ist, immer etwa eine Erhöhung von 100 ‰ auf.

Nach wie vor weisen die Bäume in der Nahumgebung des Reaktors Saphir die grössten Netto $\Delta^{14}C$-Werte auf (Tabelle 2). Der ca. 30 m vom Emissionspunkt entfernte Baum "Saphir 1" kann ab 1993 nicht mehr gemessen werden, weil er gefällt wurde. An den übrigen vier Standorten (Saphir 2 bis 5, siehe Figur 2 des BAG-Berichts 1992, Seite B.3.2.8) wurde eine deutlich geringere Aktivität festgestellt als 1992 (und früher). Ob sich dieser Trend fortsetzt und ob er auf geringere Abgaben zurückzuführen ist, soll 1994 genauer untersucht werden.

Im Jahre 1992 wurden in der Umgebung des KKG 3 Stichproben erhoben (Tabelle 2). Sie zeigten in Übereinstimmung mit früheren Resultaten, dass die ^{14}C-Abgaben eines Druckwasserreaktors in CO_2-Form wesentlich geringer sind als diejenigen eines Siedewasserreaktors und höchstens zu Erhöhungen in der Umgebung führen, die nahe an der Nachweisgrenze liegen (vergl. mit 28. KUeR-Bericht für das Jahr 1984 und mit dem BAG-Bericht 1989-1990).

Für eine konservative Dosisabschätzung soll angenommen werden, dass jemand in seinem Körper eine ^{14}C-Konzentration aufweist, die gegenüber dem heutigen Referenzwert um ca. 80 ‰ erhöht ist. Die zusätzliche jährliche effektive Dosis beträgt dann ca. 1 µSv, was verglichen mit anderen Strahlendosen nicht ins Gewicht fällt.

3.2.5. Krypton-85 in Luftproben vom Jungraujoch

Die Sammlung und ^{85}Kr-Messung von wöchentlichen Luftproben vom Jungfraujoch wurde auch 1993 fortgesetzt (siehe Figur 5). ^{85}Kr entsteht als Produkt der Uranspaltung und wird bei

der Aufarbeitung abgebrannter Brennelemente in die Luft abgegeben. Die Quellen von neuer ^{85}Kr-Aktivität sind also die Wiederaufarbeitungsanlagen, die sich praktisch auf Meereshöhe befinden, während der radioaktive Zerfall in der ganzen Atmosphäre die Senke darstellt. Es ist also zu erwarten, dass sich mit der Höhe in der Atmosphäre ein Gradient einstellt, in dem sich eine tiefer gelegene Sammelstation im weniger verdünnten Abluftbereich der europäischen Quellen als das Jungfraujoch befindet resp. dass auf Jungfraujoch häufiger radioaktivitätsärmere Luft aus grösserer Höhe ankommt als an tieferen Stationen.

Das Ziel der ^{85}Kr-Messungen auf dem Jungfraujoch ist es nun, eben diese Konzentrations-Unterschiede mit der Höhe festzustellen und damit die Vertikalkomponente von Atmosphären-Mischungsmodellen zu kalibrieren. In der Figur 5 mit den Ergebnissen von 1993 ist sehr deutlich zu sehen, dass an der tiefergelegenen Station "Schauinsland" (bei Freiburg im Breisgau/D) grössere Spitzenwerte wegen weniger verdünnter Abluft vorkommen als auf Jungfraujoch. Natürlich ist die geringere Konzentration der beobachteten Spitzen auf dem Jungfraujoch auch dadurch zu begründen, dass der Weg bis aufs Joch von La Hague und Sellafield länger und damit die Verdünnung grösser ist als bis nach Freiburg i. B. Zudem ist aber aus der Figur 5 zu sehen, dass die Basiswerte, d. h. die tiefsten heute vorkommenden Level in der Luft, auf dem Jungfraujoch geringer sind als auf dem Schauinsland. Dies belegt den oben erwähnten Gradienten der ^{85}Kr-Konzentration mit der Höhe in der Atmosphäre. Die auf dem Jungfraujoch gemessenen tiefsten Level entsprechen den heutigen mittleren ^{85}Kr-Konzentrationen in der nördlichen Troposphäre.

Zur Überprüfung der langfristigen Entwicklung der ^{85}Kr-Aktivität in der Troposphäre wurden auch einige Stichproben von Luft gemessen, welche in Bern genommen wurden. Die Resultate lauten:

Probenahmedaten	**^{85}Kr-Aktivität**	
	(dpm/cm^3 Kr)	(Bq/m^3 Luft)
05.02.1993	54.4 ± 2.7	1.03 ± 0.05
12.02.1993	49.0 ± 1.3	0.93 ± 0.025
17.08.1993	58.9 ± 5.1	1.12 ± 0.10
18.11.1993	55.6 ± 4.9	1.06 ± 009

Diese Resultate sind in Übereinstimmung mit denjenigen anderer europäischer Stationen.

Obschon die ^{85}Kr-Aktivität in der Luft den höchsten künstlichen Beitrag einer Aktivität darstellt, fällt die dadurch bewirkte Dosis nicht ins Gewicht.

3.2.6. Argon-37 in Troposphärenluft

Die Argon-Proben, welche uns die Firma Carbagas in Wiler bei Utzensdorf in verdankenswerter Weise zur Verfügung stellte, zeigten Aktivitäten zwischen 0.6 und 3.8 m Bq/m^3 Luft. Diese Aktivität ist von vergleichbarer Grösse wie in früheren Jahren und zeigt, dass die Ursachen der Erhöhung über dem natürlichen Level von ca. 0.5 m Bq/m^3 auch etwa konstant geblieben sind. Als Verursacher kommen europäische Quellen, z. B. Nuklearanlagen in Frage. Die durch ^{37}Ar bewirkte Jahresdosis ist vernachlässigbar.

Tabelle 1: Tritium in Niederschlägen in Bq/l, 1993

Monat	Basel	Bern	Grimsel	Guttannen
Januar	1.7±0.3	27.1±0.8	1.6±0.3	0.9±0.3
Februar	5.7±0.4	8.3±0.4	3.7±0.3	1.2±0.3
März	3.0±0.4	11.8±0.5	2.5±0.4	2.8±0.4
April	4.8±0.4	4.3±0.4	0.8±0.3	1.0±0.3
Mai	3.4±0.4	6.5±0.4	2.1±0.4	1.7±0.3
Juni	3.3±0.4	3.9±0.4	1.6±0.3	2.0±0.4
Juli	3.4±0.4	5.1±0.4	2.4±0.4	2.6±0.3
August	2.4±0.4	1.3±0.4	1.1±0.3	1.6±0.3
September	2.7±0.4	5.0±0.4	0.8±0.3	2.0±0.3
Oktober	2.3±0.4	4.2±0.4	1.5±0.4	1.7±0.3
November	5.6±0.4	12.2±0.5	1.9±0.4	1.5±0.3
Dezember	2.7±0.4	6.7±0.4	1.0±0.3	0.5±0.3
Mittel:	**3.1**	**5.5**	**1.5**	**1.7**

Monat	Meiringen	La Brévine	Vaduz	Locarno	Changins
Januar	2.4±0.4	keine Probe	1.4±0.3	keine Probe	2.1±0.4
Februar	2.6±0.4	1.1±0.4	3.5±0.4	0.8±0.3	2.6±0.4
März	4.0±0.4	2.5±0.4	0.4±0.3	2.0±0.4	3.2±0.4
April	1.8±0.3	1.5±0.3	2.6±0.4	2.1±0.4	1.3±0.4
Mai	2.3±0.4	3.0±0.4	3.3±0.4	2.4±0.4	1.9±0.4
Juni	2.3±0.4	5.0±0.4	2.3±0.4	2.4±0.4	4.9±0.4
Juli	2.7±0.4	3.0±0.4	2.9±0.4	1.8±0.3	2.9±0.4
August	3.2±0.4	2.3±0.4	2.0±0.4	0.8±0.3	1.6±0.4
September	2.2±0.4	1.3±0.3	3.1±0.4	1.5±0.3	0.7±0.3
Oktober	1.8±0.4	1.1±0.3	4.2±0.4	1.9±0.3	1.5±0.3
November	2.1±0.3	2.4±0.4	1.1±0.3	0.6±0.3	2.8±0.4
Dezember	1.2±0.3	0.5±0.4	0.7±0.3	1.0±0.3	1.4±0.3
Mittel:	**2.3**	**1.9**	**2.6**	**1.8**	**1.8**

Tritium in Aare bei Brugg und Brienzwiler in Bq/l

Ort	Brugg				Brienzwiler
Monat	**1990**	**1991**	**1992**	**1993**	**1993**
Januar	keine Probe	4.1±0.4	7.7±0.4	4.3±0.4	2.2±0.4
Februar	5.0±0.6	5.3±0.4	7.5±0.4	7.0±0.5	1.7±0.4
März	keine Probe	3.5±0.4	6.6±0.4	16.1±0.6	1.4±0.3
April	4.7±0.5	4.3±0.4	14.2±0.5	21.2±0.6	1.4±0.4
Mai	17.6±0.7	18.2±0.6	7.9±0.4	5.2±0.4	1.5±0.3
Juni	6.7±0.5	8.6±0.5	7.4±0.5	9.3±0.5	2.2±0.4
Juli	4.4±0.4	4.0±0.4	4.2±0.4	3.6±0.4	1.6±0.3
August	3.5±0.4	3.0±0.4	4.2±0.4	3.2±0.4	1.7±0.3
September	4.3±0.4	5.1±0.4	4.8±0.4	4.2±0.4	1.3±0.3
Oktober	4.3±0.4	6.7±0.4	6.8±0.4	3.2±0.4	keine Probe
November	3.7±0.4	4.9±0.4	5.4±0.4	4.4±0.4	1.4±0.3
Dezember	3.8±0.4	7.6±0.5	4.0±0.4	keine Probe	1.6±0.3
Mittel:	**5.8**	**6.3**	**6.7**	**7.4**	**1.6**

Tabelle 2

$\Delta^{14}C$-Werte von Laubproben 1992 und 1993

Name der Station	Umgebung	$\Delta^{14}C$ (1992) (‰ ± 1 σ)	Netto Erhöhung 1992 (relativ zu Ref. Stationen ‰ ± 1 σ)	$\Delta^{14}C$ (1993) (‰ ± 1 σ)	Netto Erhöhung 1993 (relativ zu Ref. Stationen ‰ ± 1 σ)
Imihubel	Referenzstation	140±3		137±3	
				132±3	
Wiler	Referenzstation	142±3		134±3	
Chlämmi	KKL	220±3	79±5	221±3	87±5
Station Leibstadt	KKL	218±3	77±5	225±3	91±5
Schibenächer	KKL	173±3	32±5	195±3	61±5
Weidhof	KKL	167±3	26±5	158±3	24±5
Schlüsselgraben	KKL	229±3	88±5	251±3	117±5
Ried	KKL	222±3	81±5	233±3	99±5
Unterem Tal	KKL			202±3	67±5
Laufenburg	KKL			162±3	28±5
Au	KKB/PSI	237±3	96±5	239±3	105±5
Wasserkraftwerk	KKB/PSI	167±3	26±5	165±3	30±5
EIR Ost	KKB/PSI	204±6	63±7	180±3	46±5
EIR Süd	KKB/PSI	193±4	52±5	177±3	43±5
Saphir 1	PSI	995±5	854±6	496±4	361±5
Saphir 2	PSI	623±5	482±6	602±4	467±5
Saphir 3	PSI	761±5	620±6	409±3	274±5
Saphir 4	PSI	482±5	341±6	259±3.5	125±5
Saphir 5	PSI	311±4	170±5		
Aarfeld	KKG	162±3	21±5		
Gretzenbach Waldrand	KKG	147±3	6±5		
Obergösgen	KKG	159±3	18±5		

Tritium in Niederschlägen

Fig. 1a: Basel und La Brévine

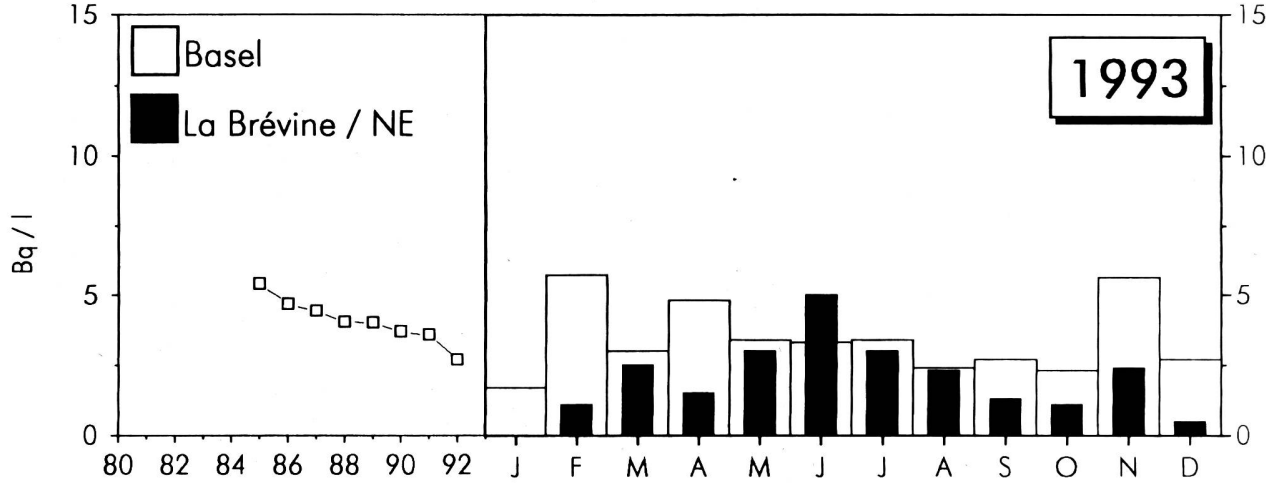


Fig. 1b: Guttannen und Locarno

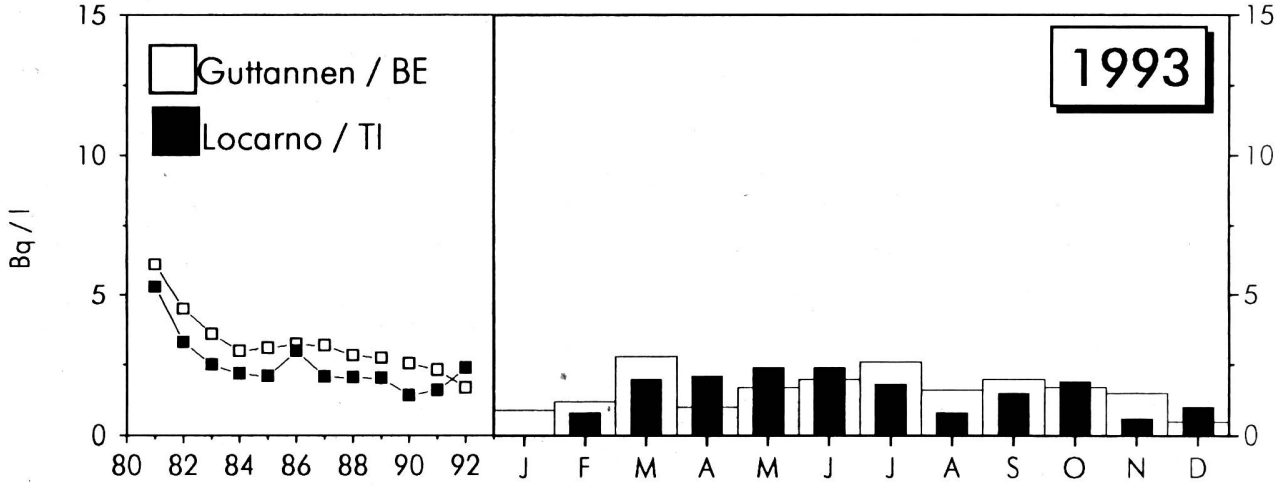
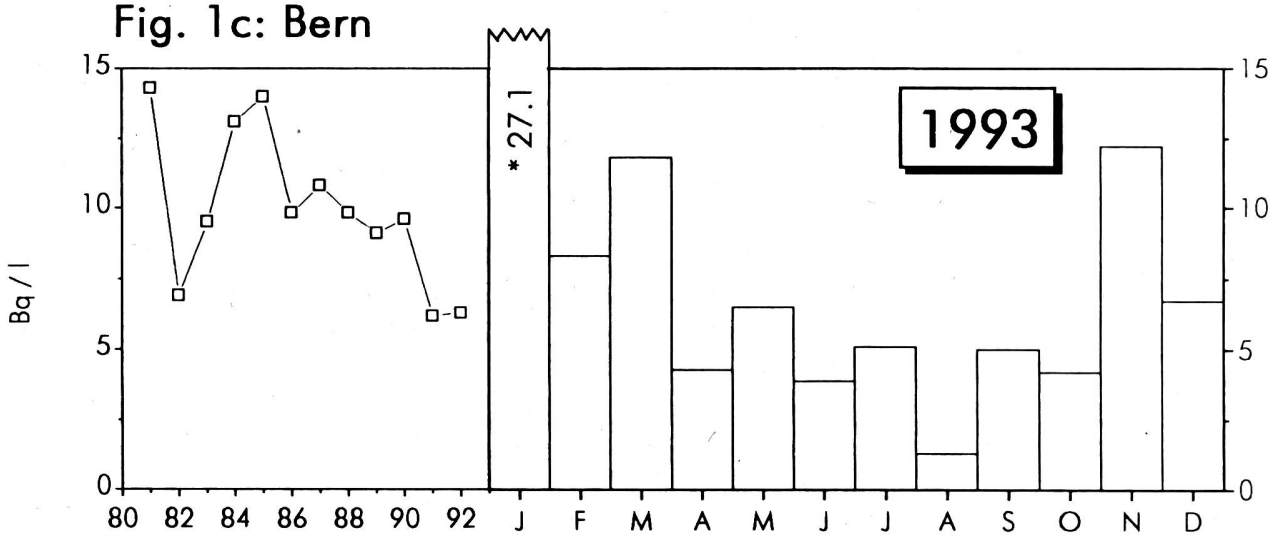


Fig. 1c: Bern



Tritium in Niederschlägen und Flusswasser

Fig. 1d: Grimsel und Meiringen

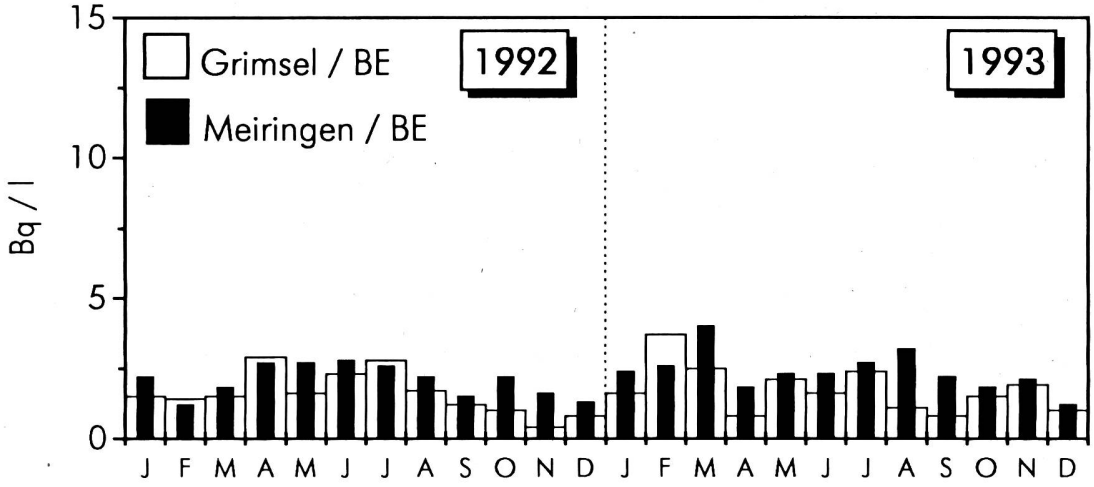


Fig. 1e: Changins und Vaduz FL

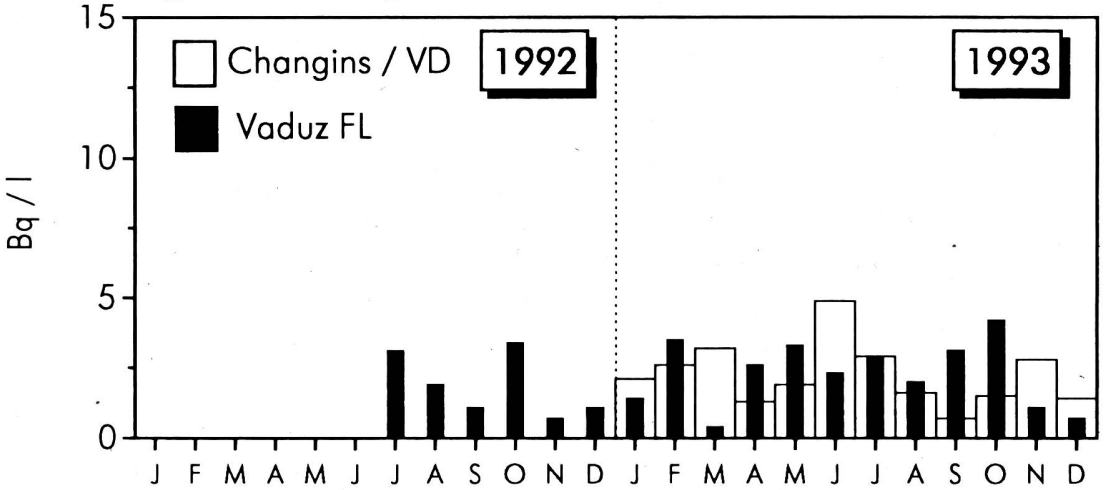


Fig. 1f: Aare Brienzwiler

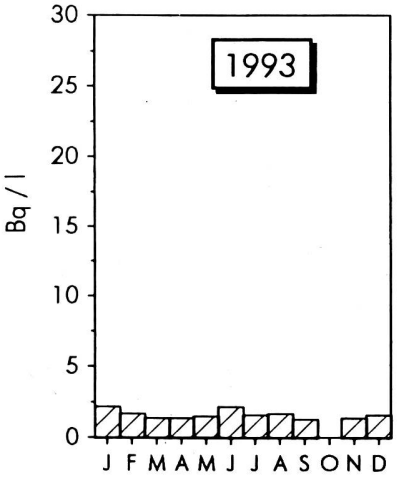
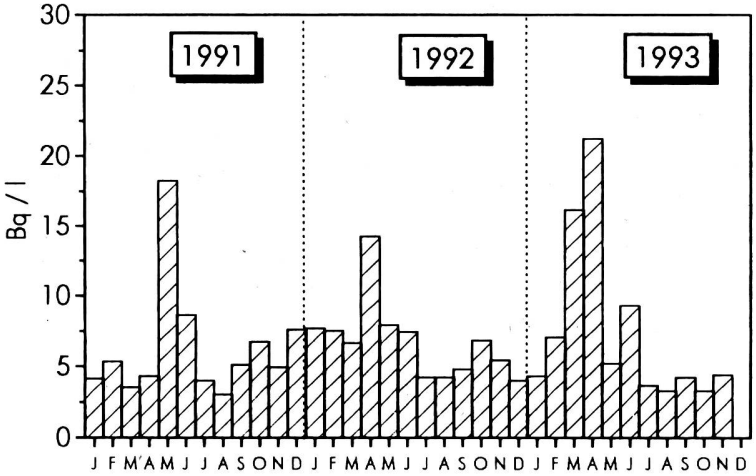
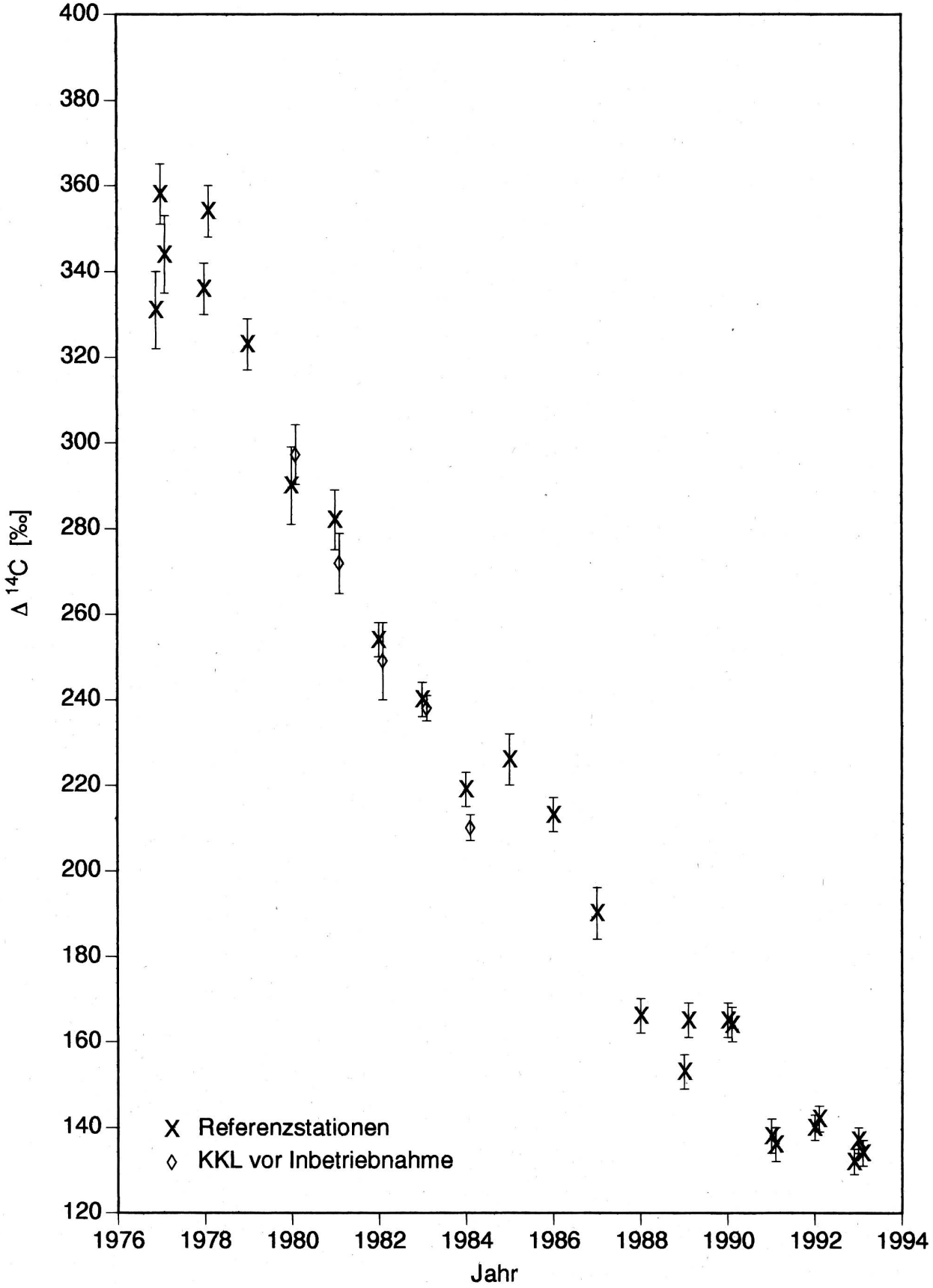


Fig. 1g: Aare bei Brugg

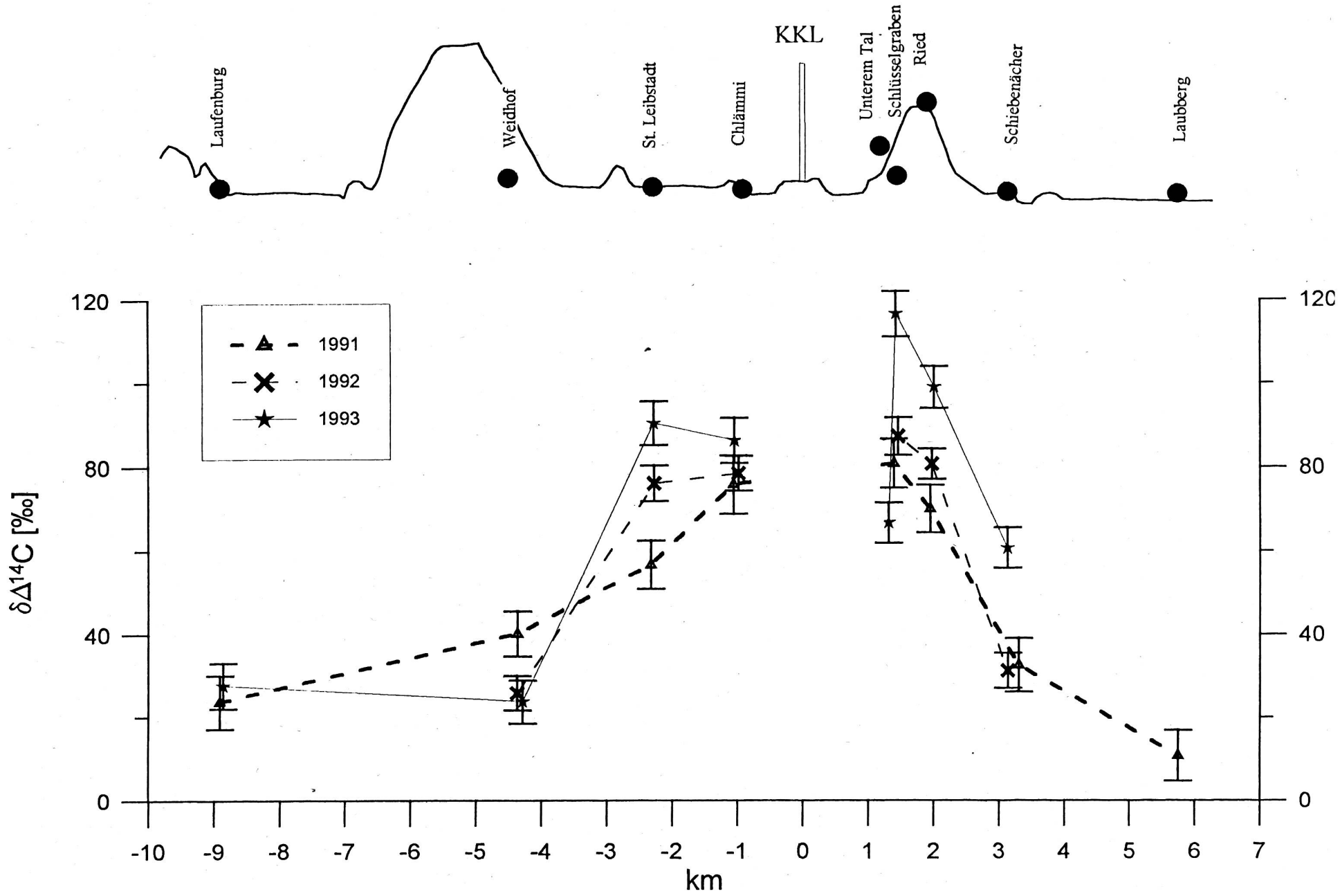


Figur 2 **$\Delta^{14}C$ Konzentrationen in Buchenblättern von den Referenzstationen**

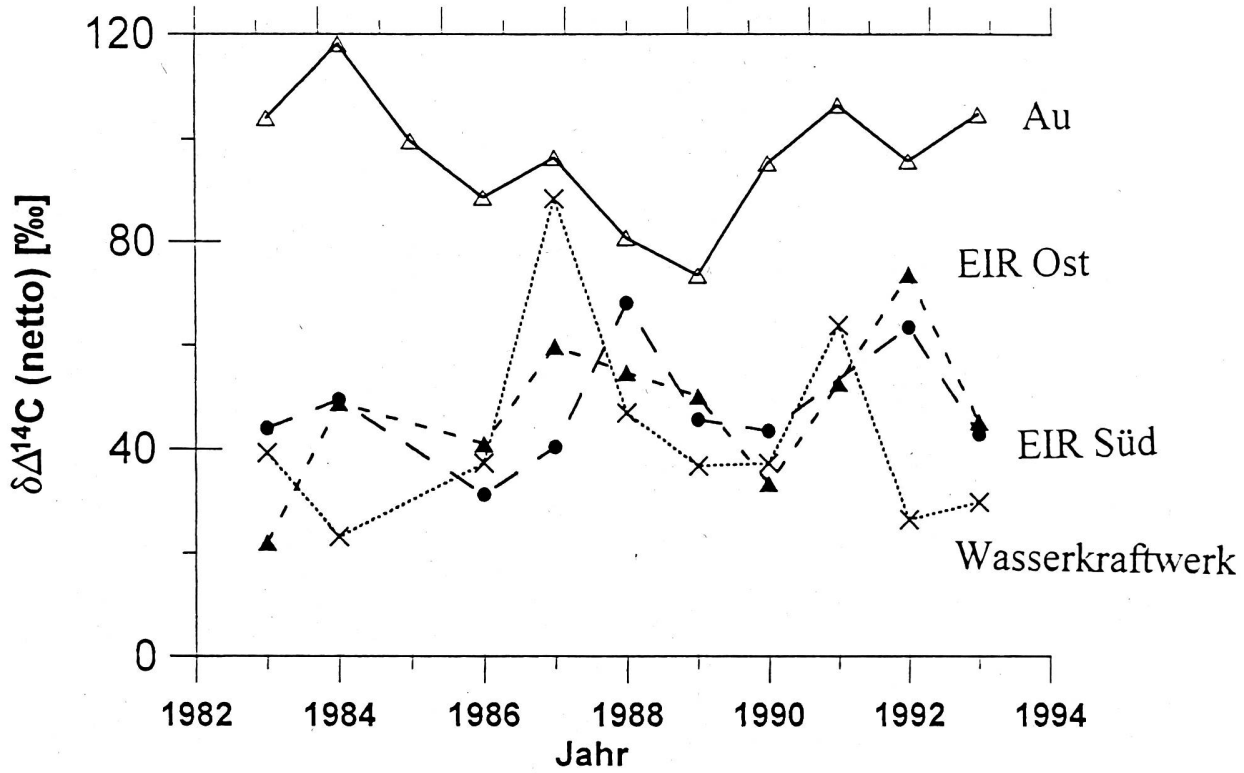


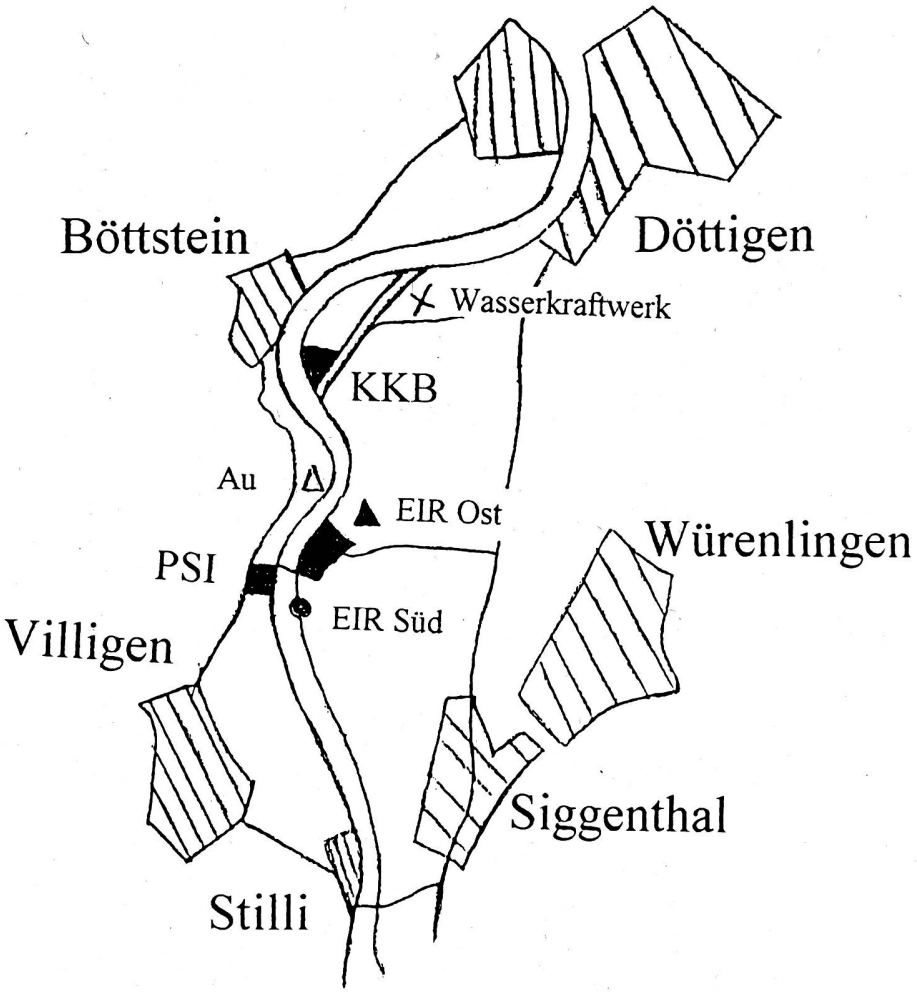
Figur 3

Netto $\Delta^{14}C$ in der Umgebung des KKL



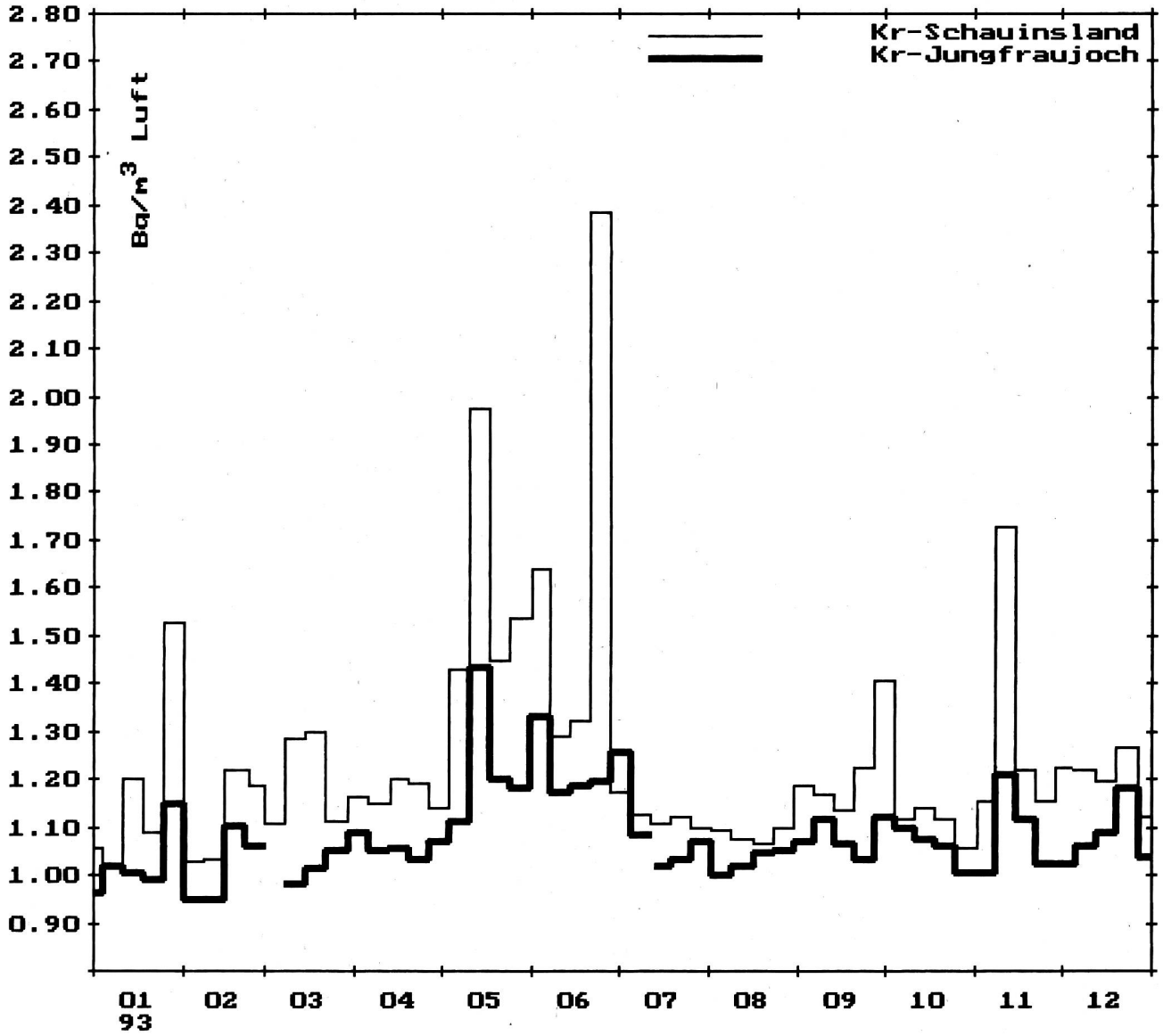
Figur 4 **Netto $\Delta^{14}C$ Werte in der Umgebung vom KKB und vom PSI**





Figur 5

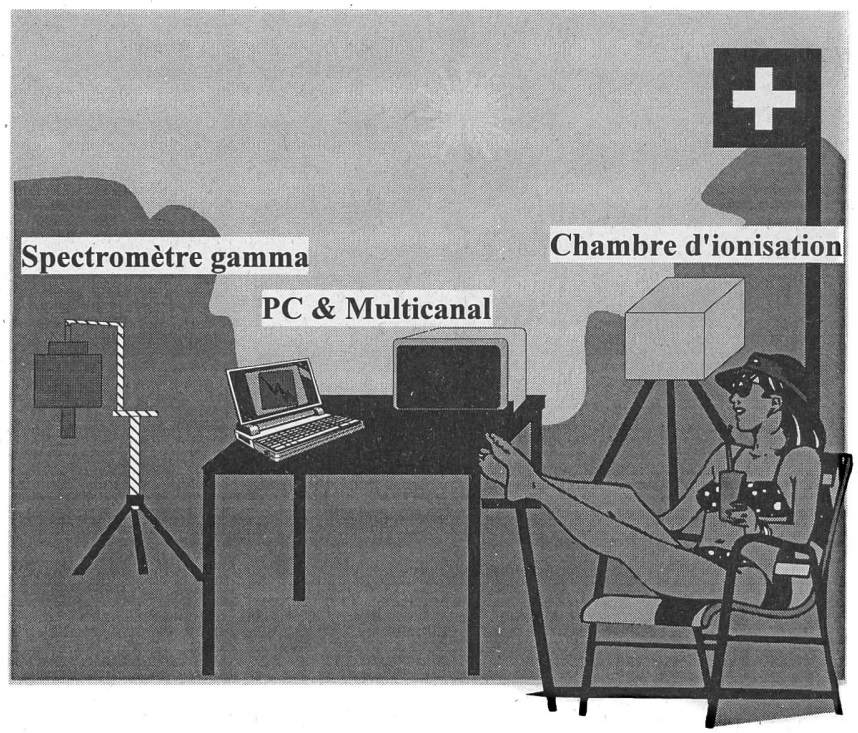
Krypton-85-Aktivität in der Luft auf dem Jungfraujoch und dem Schauinsland/D



3.3. MESURES IN SITU ET IRRADIATION EXTERNE

Ch. Murith, A. Gurtner : Section de surveillance de la radioactivité, SUER
Office fédéral de la santé publique
Ch. du Musée 3, 1700 FRIBOURG

MESURES IN SITU



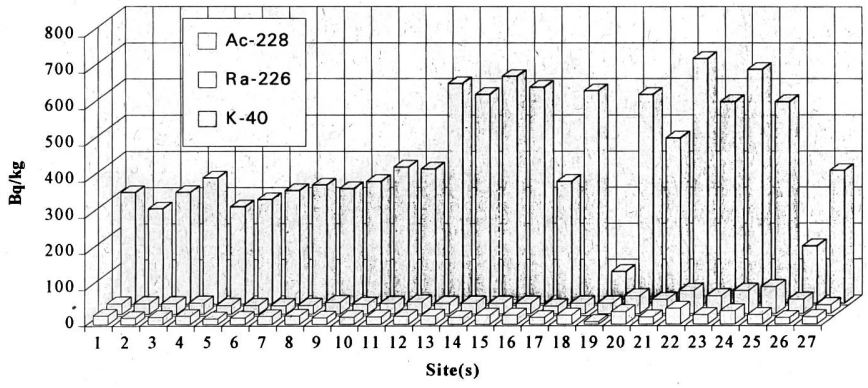
Résumé

La mesure directe sur le site (spectrométrie gamma in situ) constitue une méthode appropriée pour caractériser rapidement l'état des lieux au niveau des émetteurs gamma naturels et artificiels déposés à la surface du sol ou présents dans ses couches supérieures. Les mesures in situ 1993 ne signalent aucune nouvelle contamination dans les sites examinés, qu'ils appartiennent ou non au voisinage des centrales nucléaires. Le recul de la contribution à l'irradiation externe des contaminations passées se poursuit en raison de la décroissance des radionucléides artificiels impliqués et de leur transfert en profondeur, alors que la contribution naturelle se maintient quasi constante. Cette dernière prédomine dans l'ensemble des sites, même au Tessin, où la part Tchernobyl représente actuellement au plus 35% de l'irradiation ambiante globale, dont la valeur maximale dans les sites suisses examinés en 1993 n'excède pas 200 nSv/h. Sur le plan international, la SUER a pris part en octobre 1993 à une intercomparaison in situ sur des sites uranifères de l'ex-RDA, où le débit de dose ambiante incombant aux descendants de l'uranium est voisin de 1000 nSv/h.

3.3.1 Les émetteurs gamma naturels (Fig. 1)

Les principaux éléments radioactifs présents dans la croûte terrestre sont des éléments à vie longue, comme le ^{238}U, le ^{232}Th et le ^{40}K. Le ^{238}U et le ^{232}Th sont identifiés en spectrométrie in situ par leurs descendants ^{226}Ra et ^{228}Ac respectivement. Les 27 sites examinés en 1993 sont précisés dans la figure 3. Comme le montre la figure 1, c'est le ^{40}K qui prédomine du point de vue de l'activité naturelle, avec des concentrations comprises entre 100 et 700 Bq/kg. Les concentrations du ^{226}Ra et du ^{228}Ac s'échelonnent comparativement entre 20 et 75 Bq/kg, respectivement 10 et 40 Bq/kg.

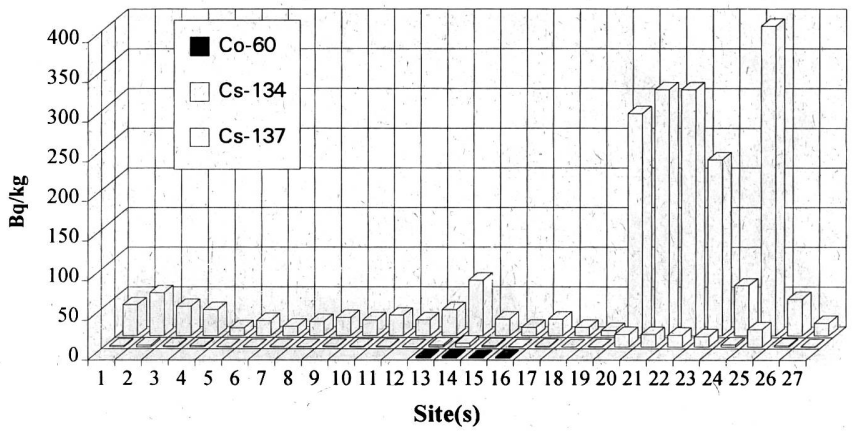
Fig. 1 Activités des émetteurs gamma naturels du sol (matière fraîche): mesures SUER 1993



3.3.2 Les émetteurs gamma artificiels (Fig. 2)

Comme pour les émetteurs gamma naturels, l'évaluation des activités artificielles in situ se base sur une répartition homogène des radioéléments dans le sol. La figure 2 montre que le ^{137}Cs prédomine au niveau artificiel avec des concentrations comprises entre 10 et 400 Bq/kg. Il provient en majeure partie de Tchernobyl, comme le confirme la part subsistante de ^{134}Cs (0.5 à 20 Bq/kg) dans un rapport isotopique $^{137}Cs/^{134}Cs$ voisin de 18 en 1993. Pour le reste, le ^{137}Cs incombe généralement aux injections chroniques des essais nucléaires passés. L'émission de résines radioactives en septembre 1986 à Mühleberg se traduit encore localement par des traces additionnelles des isotopes du césium et par 1 à 2 Bq/kg de ^{60}Co.

Fig. 2 Activités des émetteurs artificiels du sol (matière fraîche): mesures SUER 1993



3.3.3 Irradiation externe (Fig. 3)

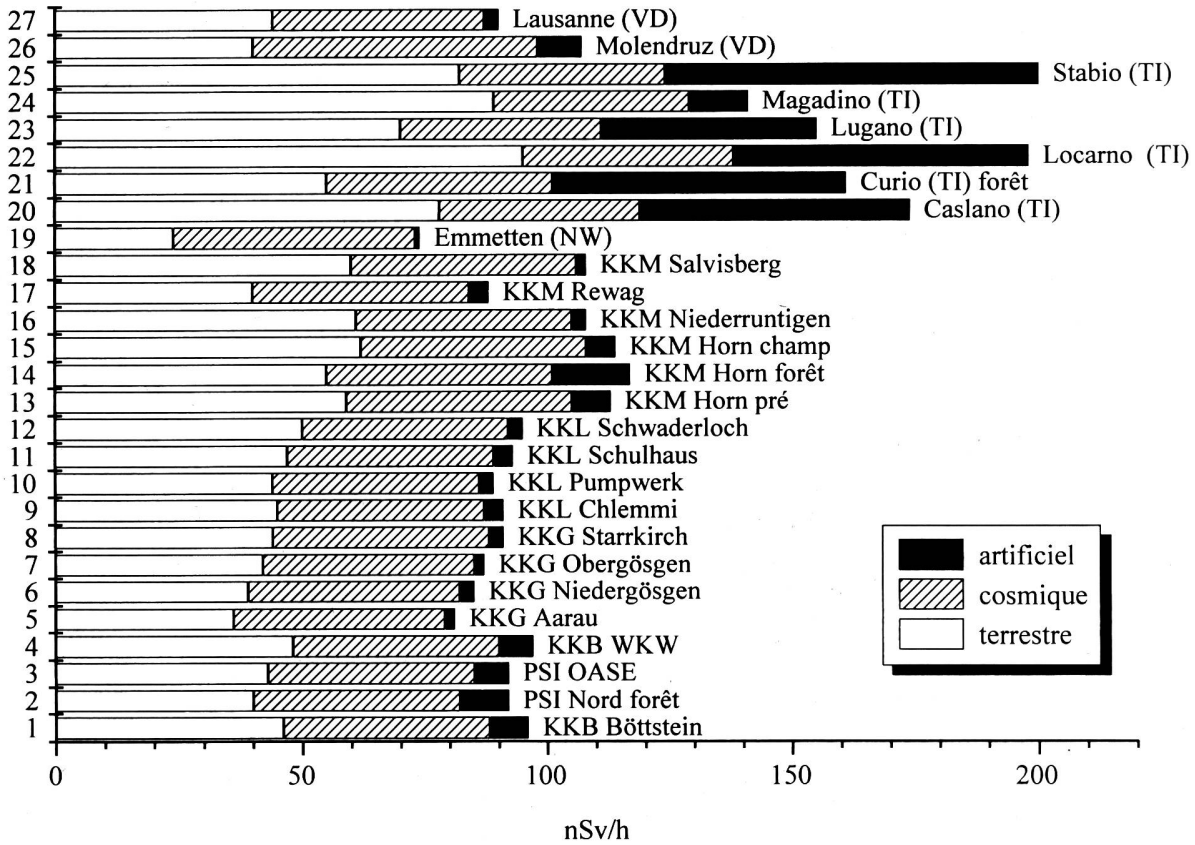
A partir des activités in situ, les facteurs de conversion suivants permettent de calculer les débits de dose ambiante correspondants 1 mètre au-dessus du sol .

	Radionucléides naturels			Radionucléides artificiels		
Emetteurs gamma	^{238}U (^{226}Ra)	^{232}Th (^{228}Ac)	^{40}K	^{137}Cs	^{134}Cs	^{60}Co
$nSv.h^{-1}$ / $Bq.kg^{-1}$	0.50	0.70	0.05	0.17	0.48	0.74

Ces facteurs tiennent compte de l'ensemble des rayonnements gamma émis par le nucléide en question et ses descendants. L'exposition externe des émetteurs gamma du sol peut ainsi être distinguée selon son origine naturelle ou artificielle.

A ces contributions, s'ajoute essentiellement la part naturelle de la composante ionisante du rayonnement cosmique dans l'air. La relation $\dot{D}(nSv/h) = 37 \exp(0.38 * Z)$ en décrit approximativement la dépendance selon l'altitude Z exprimée en kilomètre. Cette composante a été comprise entre 40 nSv/h (200 mètres) et 60 nSv/h (1200 mètres) dans les sites examinés en 1993. La figure 3 donne un aperçu de l'état des lieux du point de vue de ces différentes contributions à l'exposition externe.

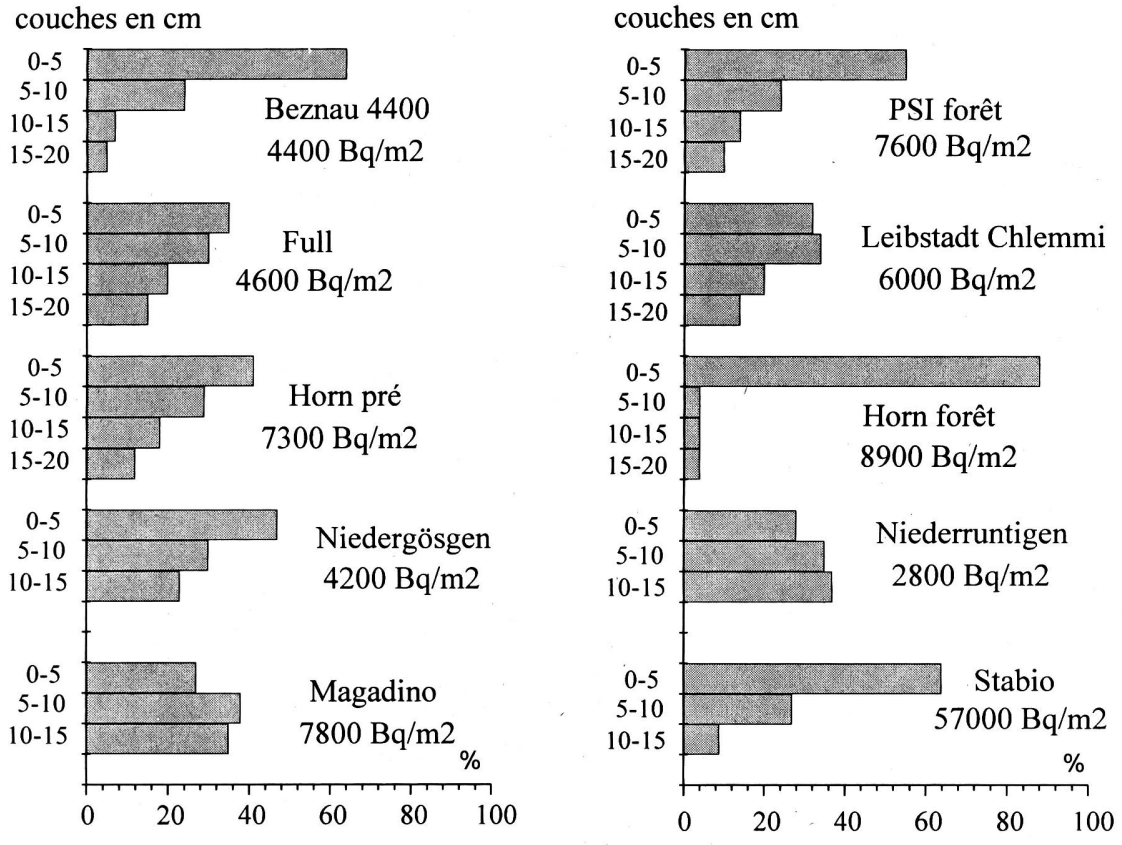
Fig.3 Contributions à l'exposition externe; mesures SUER 1993



3.3.4 Profils (Fig. 4)

Le devenir des contaminations dépend principalement de leur transfert dans le sol récepteur. Ce transfert, plus ou moins rapide selon les types de sol et les remaniements auxquels ils sont soumis, modifie le profil de l'activité artificielle d'un an sur l'autre et par conséquent l'exposition externe qui en résulte. La figure 4 donne l'activité ^{137}Cs déposée sur la profondeur de sol prélevé ainsi que son pourcentage dans chacun des profils. Par exemple le réaménagement du site à Magadino, où le dépôt de ^{137}Cs était voisin de 30'000 Bq/m^2 en 1986, a modifié le profil naturel de migration du césium. On ne retrouve par conséquent plus le dépôt intégral dans les couches supérieures, ce qui explique un recul sensible de l'exposition externe artificielle (voir fig. 3), contrairement aux sites tessinois non remaniés tels Stabio, Caslano, Locarno, Lugano et Curio. L'influence des caractéristiques du site sur le transfert des contaminations dans le sol apparaît clairement dans les profils Horn forêt, Horn pré (non cultivé) et Niederruntigen (champ cultivé) du voisinage de Mühleberg.

Fig. 4 Répartition relative du ^{137}Cs dans les profils: mesures SUER 1993



L'activité déposée (Bq/m^2) peut aussi s'estimer en multipliant l'activité in situ homogène correspondante (Bq/kg) par un facteur tenant compte de la répartition des contaminations. Ce facteur varie entre 50 et 350 pour le ^{137}Cs, suivant qu'il est réparti essentiellement en surface ou transféré de manière quasi homogène dans les 30 premiers centimètres du sol. Outre les répartitions spécifiques des contaminations selon leur provenance (dépôts 1986, retombées des essais nucléaires passés), la disparition progressive des nucléides de plus courte période comme le ^{134}Cs ne permet pratiquement plus de distinguer les injections artificielles sur la base des rapports isotopiques caractéristiques de leur émission.

3.3.5 Mesures particulières

La SUER a participé à une intercomparaison in situ sur les anciens sites (haldes) d'extraction d'uranium de la firme Wismut à Ronneburg (ex-RDA), qu'il est prévu de réhabiliter. Chaque équipe a effectué de manière autonome du point de vue de l'approvisionnement en azote liquide et en courant, une quinzaine de mesures en trois jours sur des sols présentant une situation radiologique particulière au niveau des équilibres dans les chaînes ^{238}U et ^{235}U et de l'exposition ambiante (jusqu'à 1'000 nSv/h). L'équipement in situ de la SUER a permis de remplir le programme requis et l'évaluation a indiqué que 75% du débit de dose ambiante provient des concentrations ^{214}Bi voisines de 2'000 Bq/kg. Le rapport isotopique ^{234m}Pa / ^{226}Ra de l'ordre de 0.20 montre un rendement de près de 80% au niveau de l'extraction du ^{238}U. L'évaluation comparative des résultats qui est en cours à l'Office fédéral de radioprotection de Berlin sera présentée dans le prochain rapport.

3.3.6 Conclusions et bilan radiologique

Les mesures in situ effectuées dans les sites suisses en 1993 n'ont indiqué aucune contamination attribuable au fonctionnement d'installations nucléaires suisses ou étrangères dans l'année en cours. L'ensemble des mesures in situ acquises à ce jour confirme les domaines suivants au niveau des contaminations ^{137}Cs subsistantes en 1993 sur le territoire suisse:

Tchernobyl :	environ 100 à 40'000 Bq/m^2
essais nucléaires :	environ 1'000 à 7'000 Bq/m^2
Mühleberg :	au plus 3'000 Bq/m^2 (résines radioactives de 1986)

Du point de vue de l'exposition externe, la composante naturelle (terrestre + cosmique) prédomine avec des valeurs comprises en 1993 entre 0.6 et 1.2 mSv pour un séjour permanent d'une personne dans les sites examinés. Ces valeurs sont comparables à celles des années précédentes. En comparaison, la part correspondante artificielle s'échelonne de 0.01 à 0.7 mSv. Sa contribution maximale s'observe toujours au Tessin et provient en majeure partie du ^{137}Cs de Tchernobyl. Une faible contribution d'environ 0.01 à 0.03 mSv incombe encore au ^{137}Cs des essais nucléaires qui a été partiellement transféré, voire homogénéisé sur une plus grande profondeur. Ce transfert respectivement cette homogénéisation explique qu'à dépôt égal, le césium des essais nucléaires contribue environ 5 fois moins à l'exposition externe que s'il était essentiellement concentré dans la couche superficielle du sol. Enfin le seul impact de rejets atmosphériques d'une centrale nucléaire suisse reste décelable au point critique Ufem Horn, où subsistent des traces des résines radioactives émises à Mühleberg en septembre 1986, dont la contribution se monte actuellement à quelque 0.04 mSv. Par rapport aux années précédentes, on enregistre un recul de l'exposition externe incombant aux contaminations plus rapide que ne le laissaient prévoir les périodes des radionucléides impliqués en raison de leur transfert progressif dans le sol. Les résultats des mesures in situ 1993 n'indiquent pas de doses ambiantes significatives du point de vue de la radioprotection. Ce constat se confirme en particulier dans le voisinage des centrales nucléaires suisses.

Des remerciements particuliers s'adressent aux responsables des diverses stations de l'Institut Suisse de Météorologie, aux exploitants et aux collaborateurs de la DSN ainsi qu'aux personnes privées qui ont favorisé la réalisation de nos mesures.

3.4. RADIOAKTIVITÄT IN AQUATISCHEN SYSTEMEN

J. Beer, S. Bollhalder, A. Lück und Yvo Weidmann

Abteilung Umweltphysik, EAWAG, Postfach, 8600 DÜBENDORF

3.4.1. Zusammenfassung

In aquatischen Systemen wurden nur vereinzelt künstliche Radionuklide nachgewiesen. In Sedimenten von Aare und Rhein wurden Spuren (einige Bq/kg) von ^{137}Cs, ^{134}Cs, ^{60}Co, ^{58}Co, ^{54}Mn und ^{65}Zn festgestellt, die grösstenteils aus Kernanlagen stammen.

In einigen Wasserpflanzen konnte ^{54}Mn (220 Bq/kg), ^{65}Zn (bis zu 55 Bq/kg) und vor allem ^{58}Co (bis zu 330 Bq/kg) und ^{60}Co (bis zu 600 Bq/kg) gemessen werden.

Trotz häufiger Stichproben konnten dagegen nur in drei Fischen künstliche Radionuklide nachgewiesen werden. ^{65}Zn (2.7 Bq/kg, Hecht, Stausee Niederried), ^{137}Cs (2.4 Bq/kg, Barbe, Stausee Klingnau und 0.4 Bq/kg, Alet, Stausee Klingnau).

Die grössten an die Umwelt abgegebenen Aktivitäten stammen aus der Tritium-verarbeitenden Industrie. Die mittlere Tritiumaktivität im Abwasser der ARA von La Chaux-de-Fonds liegt mit 4.4 kBq/l noch unterhalb der maximal zulässigen Aktivität für öffentlich zugängliche Gewässer von 12 kBq/l.

Der starke Anstieg der Tritium-Konzentration im Niederschlag von La Chaux-de-Fonds gegen Ende 1992 hat sich 1993 nicht fortgesetzt, doch zeigt sich über die letzten fünf Jahre weiterhin ein steigender Trend.

Nach einem Spitzenwert von 8.7 kBq/l im Januar 1993 ist die Tritiumaktivität auf dem Areal der Radiumchemie in Teufen auf Werte unter 3 kBq/l zurückgegangen.

Die Gesamt-a-Aktivität im Rheinwasser liegt im Bereich des Vorjahres und zeigt keine grossen Schwankungen.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass in aquatischen Systemen keine Überschreitungen der Richtwerte der Strahlenschutzverordnung durch künstliche Radionuklide beobachtet werden konnten.

3.4.2. Ziele

Die Gruppe "Radioaktive und chemische Tracer" der Abteilung Umweltphysik der EAWAG konzentriert sich bei der Überwachung der Umgebungsradioaktivität vor allem auf den aquatischen Bereich. Wasser stellt neben Luft das wichtigste Transportmedium für lokal freigesetzte Radioaktivität dar und bedarf deshalb besonderer Aufmerksamkeit.

Das Ziel der Überwachung besteht darin, Aenderungen der natürlichen Umgebungsradioaktivität festzustellen und die Radionuklide, die dafür verantwortlich sind, zu identifizieren.

Überwacht werden die Umgebungen wichtiger potentieller Quellen wie Kernanlagen und Isotopen-verarbeitende Betriebe, sowie das Abwasser der ARA-Zürich und der Rhein, der Hauptabfluss der Schweiz.

Zu den Kernanlagen gehören die Kernkraftwerke Beznau, Mühleberg, Gösgen-Däniken und Leibstadt sowie das Paul Scherrer Institut. Die Überwachung erfolgt durch halbjährliche Stichproben. Untersucht werden Wasserproben aus dem jeweiligen Fluss ober- und unterhalb der Anlage, Plankton, Wasserpflanzen, Sediment und, falls möglich, Fische sowie Grundwasser aus der Umgebung.

Zu den überwachten Isotopen-verarbeitenden Betrieben gehören die Uhrenindustrie von La Chaux-de-Fonds und die Radiumchemie Teufen/AR, die beide Tritium verarbeiten. In der Umgebung dieser Betriebe werden ein- bis dreimonatige Niederschlagsproben gesammelt, die Auskunft geben über die Tritiummenge, die in Form von HTO an die Luft abgegeben wird. Parallel dazu werden die Abflüsse der lokalen Abwasserdeponien beprobt.

Die ARA-Zürich wird kontinuierlich mittels wöchentlicher Sammelproben überwacht. Schliesslich werden im Rhein bei Rekingen/AG, Village-Neuf (unterhalb Basel) und Schmitter (bei Diepoldsau/SG) monatliche Sammelproben erhoben, die im Rahmen der Internationalen Rheinkommission zusätzlich auf verschiedene Schadstoffe untersucht werden.

3.4.3. Methoden und Messverfahren

Die meisten Proben werden mit Hilfe von Germanium-Detektoren analysiert. Diese Methode erlaubt den Nachweis der meisten natürlichen und künstlichen Radionuklide. Zusätzlich werden Wasserproben aus Fliessgewässern noch auf Tritium und in wenigen Fällen auf α-Strahler untersucht. ^{90}Sr wird nur im Abwasser von Abfalldeponien gemessen. Alle Angaben von spezifischen Aktivitäten beziehen sich auf Trockengewichte.

3.4.4. Zusammenfassung der Ergebnisse

Die ausführliche Datensammlung in Tabellenform ist bereits im Laborbericht 93 erschienen.

3.4.4.1. Kernanlagen

Wasserproben aus den Flüssen Aare und Rhein sowie Grundwasserproben im Bereich von Kernanlagen zeigen nur vereinzelt Tritiumkonzentrationen, die über der Nachweisgrenze von 10 Bq/l liegen. Bis auf eine Ausnahme (0.6 Bq/l ^{137}Cs) konnten keine γ-aktiven Radionuklide im Wasser nachgewiesen werden.

In den Sedimentproben aus der Umgebung von Kernanlagen wurden jedoch weiterhin ^{137}Cs (bis 21 Bq/kg) und ^{134}Cs (bis 2 Bq/kg) gemessen. Das $^{137}Cs/^{134}Cs$-Verhältnis von ca. 10 weist darauf hin, dass es sich immer noch vor allem um Cäsium vom Tschernobyl-Unfall im Jahr 1986 handelt.

In den Sedimenten von Aare und Rhein wurden verschiedene künstliche Radionuklide gefunden, die aus den Kernanlagen (vor allem Mühleberg und Beznau) stammen: ^{54}Mn 0.9 Bq/kg im Stausee Niederried, ^{60}Co 17 Bq/kg im Stausee Niederried, ^{58}Co 4.5 Bq/kg im Rhein oberhalb Kernkraftwerk Leibstadt, ^{65}Zn 0.9 Bq/kg im Stausee Niederried.

Wasserpflanzen aus dem Stausee Niederried zeigen Konzentration von ^{60}Co (bis zu 600 Bq/kg), ^{58}Co (130 Bq/kg), ^{65}Zn (65 Bq/kg) und ^{54}Mn (220 Bq/kg).

Wasserpflanzen im Rhein unterhalb des Kernkraftwerks Leibstadt enthielten ebenfalls teilweise ^{58}Co (330 Bq/kg), ^{60}Co (35 Bq/kg) und ^{54}Mn (12 Bq/kg).

Von den insgesamt zwölf untersuchten Fischen aus Aare und Rhein zeigten nur drei Spuren von künstlichen Radionukliden. Eine Barbe und ein Alet aus dem Stausee Klingnau enthielten ^{137}Cs (2.4 resp. 0.4 Bq/kg), ein Hecht aus dem Stausee Niederried ^{65}Zn (2.7 Bq/kg).

Im Rahmen eines gemeinsamen Projektes mit der HSK wird die Ausbreitung von ^{60}Co und anderer anthropogener Radionuklide aus Kernkraftwerken im aquatischen Bereich näher untersucht (siehe Kap. 3.10.).

3.4.4.2 Isotopen-verarbeitende Betriebe

La Chaux-de-Fonds

In Fig. 1 ist die Tritiumaktivität im Niederschlag (oben) und im gereinigten Abwasser der ARA (unten) für die Jahre 1989 bis 1993 dargestellt. Der im Jahr 1992 beobachtete Anstieg der Tritium-Aktivität im Niederschlag hat im Januar 1993 einen Spitzenwert von 290 Bq/l erreicht. Obwohl die Werte anschliessend wieder deutlich sinken, ist seit 1992 ein steigender Trend festzustellen.

Der wesentliche Teil der Abgabe erfolgt weiterhin über die Abwässer der ARA. Dort zeigt sich eher eine Abnahme, sind doch 31 TBq Tritium im Jahr 1993 durch die Kläranlage abgeflossen, was einer Abnahme von 6 TBq gegenüber 1992 entspricht. Insgesamt wurden laut SUVA in 1993 285 TBq in La Chaux-de-Fonds verarbeitet.

Radiumchemie Teufen/AR

Die Tritiummessungen im Regenwasser, das 65 m östlich des Kamins der Radiumchemie in Teufen gesammelt wird, sind in Figur 2 dargestellt. Der höchste Wert der fünfjährigen Periode wird im Januar 1993 mit 8.7 kBq/l erreicht. Der schon früher beobachtete Jahresgang setzt sich fort.

3.4.4.3 Deponien

Die ehemalige Abfalldeponie Teufen/AR sowie die Deponie von Stein/AR zeigen in ihrem Sickerwasser α-Strahler (bis zu 1.3 Bq/l), Tritium (bis zu 7.5 kBq/l) sowie ^{90}Sr (1.4 Bq/l). γ-aktive Radionuklide konnten keine festgestellt werden.

3.4.4.4 Kläranlagen

Messungen am gereinigten Abwasser der ARA Zürich zeigen keine Tritiumwerte oberhalb der Nachweisgrenze von 10 Bq/l.

Mit Ausnahme einer einzigen Probe, die 0.5 Bq/l ^{137}Cs enthielt, konnten keine γ-aktiven Radionuklide nachgewiesen werden. Dies gilt insbesondere auch für das in Spitälern verwendete ^{131}J, das die Nachweisgrenze von ca. 0.2 Bq/l nie überschritt.

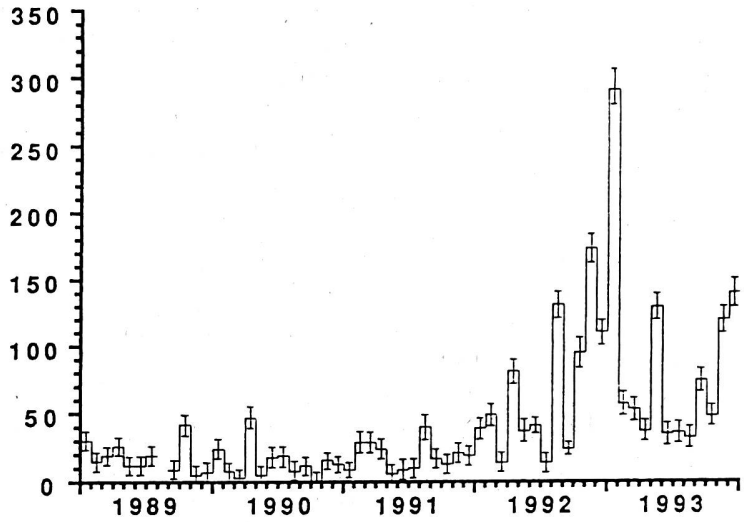
3.4.4.5 Oberflächengewässer

Im Rhein wurden an den Stationen Rekingen, Village Neuf und Diepoldsau abflussgewichtete Monatsproben erhoben. Der Verlauf der Gesamt-α-Aktivität von Rekingen und Village-Neuf ist in Figur 3 dargestellt. Beide Stationen zeigen einen ähnlichen Verlauf wie in früheren Jahren mit Werten zwischen 14 und 58 mBq/l (Rekingen) und zwischen 13 und 30 mBq/l (Village Neuf). Bis auf eine Probe, die 0.6 Bq/l ^{137}Cs enthielt, konnten keine künstlichen γ-aktiven Radionuklide festgestellt werden.

Figur 1

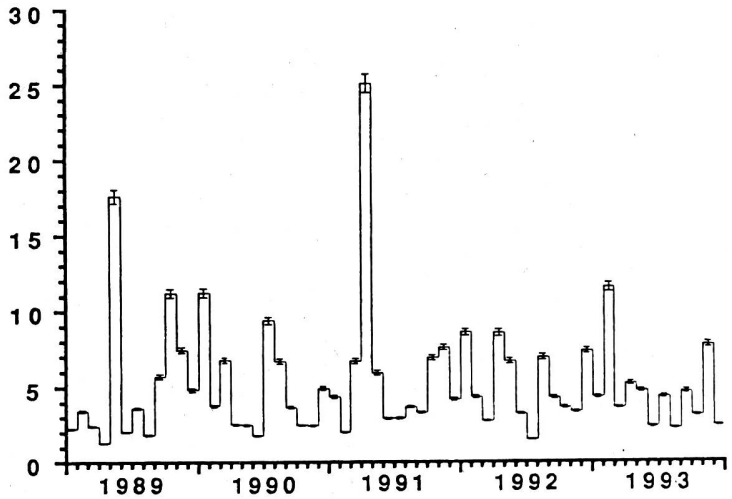
Niederschlag
La Chaux-de-Fonds

Tritium (Bq/l)



Gereinigtes Abwasser ARA
La Chaux-de-Fonds

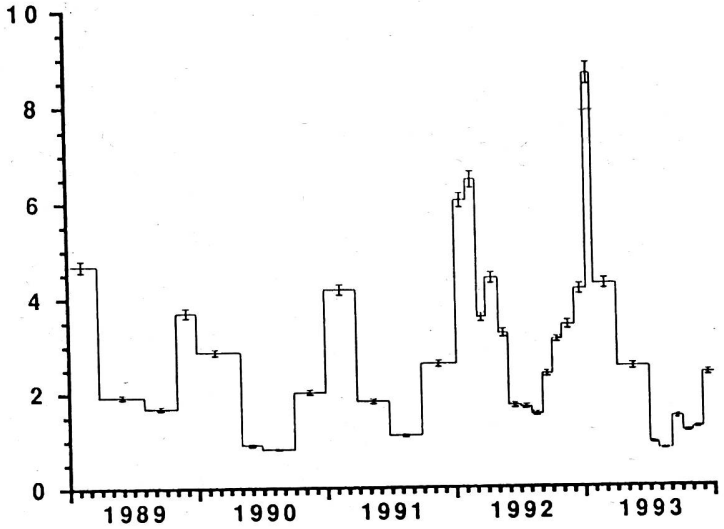
Tritium (Bq/l)



Figur 2

Niederschlag
Teufen / AR
65 m östlich des Kamins

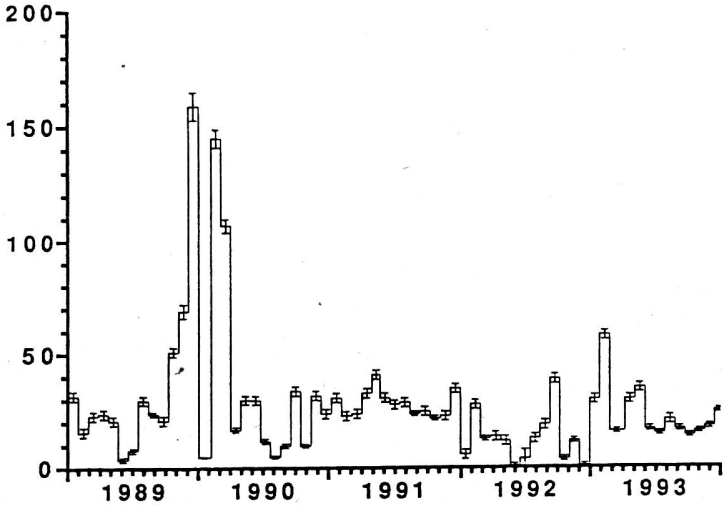
Tritium (kBq/l)



Figur 3

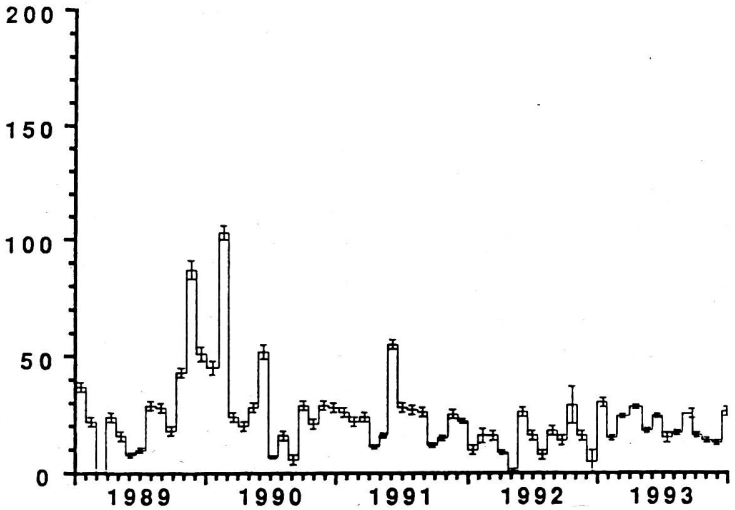
Rhein
bei Rekingen

Alpha (mBq/l)



Rhein
bei Village Neuf

Alpha (mBq/l)



3.5. RADIOAKTIVITÄT IN DEN LEBENSMITTELN

(und weitere Messungen der Kantonalen Laboratorien)

H. Völkle [1], C. Bajo [2], V. Figueiredo [3] und U. Vögeli [4]

[1] Sektion Überwachung der Radioaktivität, Ch. du Musée 3, 1700 FRIBOURG
[2] Kantonales Laboratorium Aargau, Kunsthausweg 24, 5000 AARAU
[3] Kantonales Laboratorium Basel-Stadt, Kannenfeldstr. 2, 4012 BASEL
[4] Kantonales Laboratorium Bern, Muesmattstr. 19, 3000 BERN 9

3.5.1. Zusammenfassung

An der Radioaktivitätsüberwachung der Lebensmittel sind die kantonalen Laboratorien und Messstellen des Bundes beteiligt. In den Hauptnahrungsmitteln war 1993 künstliche Radioaktivität, ausser Strontium-90 (siehe Kapitel 3.6.), meist nicht mehr nachweisbar. Wildfleisch und gewissen Pilze zeigen als Folge des Reaktorunfalles von Tschernobyl immer noch teilweise erhöhte Caesium-Werte, zum Teil mit abnehmender Tendenz. Infolge der geringen Konsumraten führen sie nicht zu nennenswerten Strahlendosen. Die künstliche Radioaktivität in Lebensmitteln führte 1993 im Landesdurchschnitt zu Strahlendosen von weniger als einigen Tausendsteln mSv.

3.5.2. Ziele, Messprogramm und Messverfahren

Die Radioaktivitätsüberwachung der Lebensmittel erfolgt in Zusammenarbeit zwischen Kantonalen Laboratorien und Bundesstellen (BVET, IRA, PSI, BAG etc.) und hat zum Ziel, den Gehalt an künstlichen und natürlichen Radionukliden in der Nahrung zu verfolgen, um daraus die Strahlendosen der Bevölkerung herzuleiten. Überwacht werden in erster Linie die Hauptnahrungsmittel wie Milch und Getreide sowie stichprobenweise weitere landwirtschaftliche Produkte und Fleisch, seit dem Reaktorunfall von Tschernobyl auch Wildfleisch und Wildpilze, sowie gezielt bestimmte importierte Lebensmittel (z.B. Wildfleisch).

In der Nahumgebung der Kernanlagen werden Milch, Getreide und weitere Lebensmittel gemäss den jeweiligen, mit der HSK abgesprochenen Umgebungsüberwachungsprogrammen analysiert (siehe Kap. 4).

Für die Tritiummessungen in Gemüse- und Milchproben aus der Umgebung der Firma mb-Microtec in Niederwangen/BE sei auf Kap. 5.3.2. verwiesen. Hinweise zu neuen Nachweisverfahren für natürliche Alphastrahler in Trink- und Mineralwässern finden sich in Kap. 3.1. (Seite B.3.1.2.).

3.5.3. Zusammenfassung der Ergebnisse

Im folgenden sind die Ergebnisse der Radioaktivitätsmessungen an Lebensmitteln zusammengestellt. Als künstliche Radioaktivität in Lebensmitteln sind nebst Strontium-90 und Tritium, lediglich noch die Nuklide Caesium-134 und Caesium-137 teilweise nachweisbar.

a. Hauptnahrungsmittel: Milch, Getreide und Fleisch

Die folgende Tabelle gibt als Überblick die Wertebereiche in Bq/Liter der untersuchten **Milchproben**. Meist werden die Proben als Milchpulver gemessen und die Resultate durch Multiplikation mit einem Faktor 8.1 auf Frischmilch umgerechnet (durchschnittlicher Trockengehalt der Milch = 12.3 Gew. -%).

Tabelle 1: Radioaktivität in Kuhmilch in Bq/l 1993 (n.g. = nicht gemessen)

Ort	Anzahl	K-40	Cs-137	Cs-134	Sr-90
Lausanne	1	44	< 0.13	< 0.12	0.17
Orlait/VD	1	46	< 0.2	< 0.2	0.12
Lucens/VD	1	29	< 0.2	< 0.2	--
Pfyn /VS	1	40	< 0.3	< 0.3	0.01
Grangeneuve /FR	1	50	< 0.2	< 0.2	0.068
Bern (UHT/past.)	5	44 - 58	< 4	< 4	n.g.
Mürren /BE	2	47	0.2 - 0.69	< 0.2	0.32 - 0.52
Div. Kanton Luzern	14	42 - 55	< 0.13	< 0.12	n.g.
Beurnevesin/JU	4	61 - 67	0.04 - 0.07	< 0.02	0.09 - 0.14
Saignelégier/JU	4	61 - 67	0.05 - 0.28	< 0.02	0.09 - 0.13
Sissach /BL	1	53	< 0.05	< 0.05	0.06
Rossberg/Kemptthal	1	46	< 0.2	< 0.2	0.042
Diverse Kant. Zürich	7	49 - 64	0.06 - 0.32	< 0.12	n.g.
Arenenberg /TG	1	49	< 0.2	< 0.2	0.037
Wil /SG	1	103 (?)	< 0.03	< 0.02	n.g.
Sulgen/TG	1	54	0.15	< 0.02	n.g.
Davos-Dischma /GR	2	37 - 43	0.34 - 0.79	< 0.2	0.31 - 0.36
Davos/GR	12	36 - 66	< 2	< 2	n.g.
Chur	1	50	< 0.2	< 0.2	0.07
Chur	12	36 - 66	< 2	< 2	n.g.
Pontresina/GR	12	36 - 66	< 2	< 2	n.g.
Val Mesolcina/GR	22	36 - 66	< 2 - 5.8	< 2	n.g.
Val Poschiavo/GR	12	36 - 66	< 2	< 2	n.g.
Val Bregaglia/GR	18	36 - 66	2 - 6.7	< 2	n.g.
Rodi/TI	2	49 - 60	2.7 - 4.9	< 0.1	0.23 - 0.24
Rasa/TI	2	51 - 55	1.5 - 12	<0.1 - 0.65	0.21 - 0.50
Sessa/TI	2	55 - 61	0.8 - 1.7	< 0.1	0.40 - 0.50

Gesamthaft ist die künstliche Radioaktivität in der Milch tief und auf der Alpennordseite je unter 0.3 Bq/L für Caesium-137 und Caesium-134. In den Alpen gehen die Caesium-137-Werte noch bis 0.8 Bq/L, im Tessin und den Bündner Südtälern - als Folge des Reaktorun-

falles Tschernobyl - noch bis 12 Bq/L für Caesium-137 bzw. 0.7 Bq/L für Caesium-134. Die Strontium-90-Werte (siehe auch Kap. 3.6.) der Milch liegen auf der Alpennordseite zwischen 0.04 und 0.17 Bq/L, im Tessin und in den Alpen bei 0.2 bis 0.7 Bq/L. Die mittlere Kalium-40-Aktivität der Milch von rund 50 Bq/L entspricht einem Kalium-Gehalt von etwa 1.6 g/L.

Getreidemischproben wurden in den Regionen La Côte/Wallis (GE/VD/VS), Gros de Vaud (VD/FR/NE), Colline Ouest (VD/FR/BE/NE), Jura N-W (NE/JU/BE/BL/AG), Mittelland-West (BE/SO/NE/FR), Hügel-Ost (BE/LU/ZG/ZH/SG/TG), Mittelland-Ost (SO/AG/ZH), Ostschweiz (SH/TG/SG/GR), Tessin sowie in der Umgebung der Kernanlagen durch die Eidg. Getreideverwaltung erhoben. Die zwölf 1993 untersuchten Proben ergaben alle weniger als 1 Bq Caesium-137/kg bzw. weniger als 0.4 Bq Caesium-134/kg sowie zwischen 0.37 und 0.74 Bq Strontium-90/kg (siehe auch Kap. 3.6.), wobei keine signifikanten Unterschiede zwischen den Regionen erkennbar sind. Die Konzentration des natürlichen Kalium-40 im Getreide lag im Durchschnitt bei 115±10 Bq/kg.

13 am Paul-Scherrer-Institut (PSI) in Villigen untersuchte, für den Export bestimmte, **Fleischproben** aus dem Tessin (3 Schinken-, 6 Speck-, 2 Coppa- und 2 Salamiproben) ergaben für Caesium-137 sowie Caesium-134 durchwegs je weniger als 4 Bq/kg. 10 vom Kantonslabor Graubünden erhobene Fleischproben (1 Bündnerfleisch-, 4 Schinken-, 3 Speck-, 1 Coppa- und 1 Salamiprobe) ergaben alle weniger als je 2 Bq/kg für die beiden Caesiumnuklide.

b. Wild-Importe

1993 wurden von den Grenztierärzten im Auftrag des Bundesamtes für Veterinärwesen (BVET) an der Grenze 34 Proben von **importiertem Wild** für die Radioaktivitätsmessung erhoben und durch das kantonale Labor Basel-Stadt bzw. das Labor Matt in Schaan/FL untersucht. Zusätzlich wurden zehn weitere Proben vom Kantonalen Labor Zürich untersucht. Sie ergaben die folgenden Resultate:

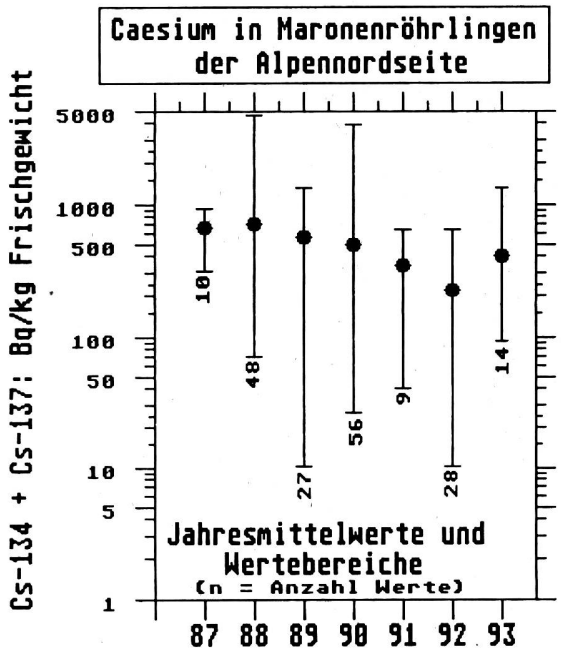
Tabelle 2: Caesium-134 und Caesium-137 (zusammen) in importiertem Wildfleisch.

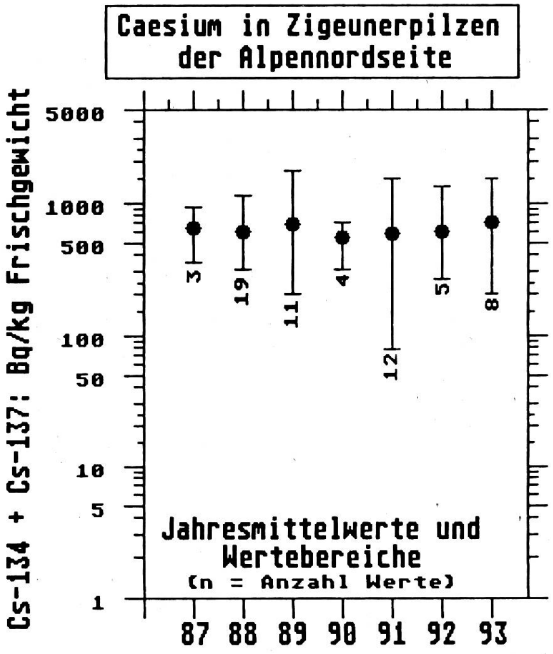
Tier	Herkunft	erhoben durch:	An-zahl	< 100 Bq/kg	100-300 Bq/kg	300-600 Bq/kg	≥ 600 Bq/kg
Reh	Österreich	BVET	12	10	1	1	0
	Deutschland	BVET	3	3	0	0	0
	Schweden	BVET	1	1	0	0	0
Hirsch	Österreich	BVET	2	2	0	0	0
	Deutschland	BVET	3	3	0	0	0
	Polen	BVET	1	1	0	0	0
Gemse	Österreich	BVET	7	6	0	1	0
Ren	Schweden	BVET	4	0	1	1	2
Elch	Schweden	BVET	1	1	0	0	0
Reh	Österreich	KL-ZH	7	7	0	0	0
Hirsch	---	KL-ZH	1	1	0	0	0
Gems	---	KL-ZH	2	1	1	0	0
Total	**---**	**---**	**44**	**36**	**3**	**3**	**2**

Der Anteil der hohen Werte ist gegenüber den Vorjahren weiter zurückgegangen: 80% (1992:70%; 1991: 60%) der Werte lagen unter 100 Bq/kg, ≈ 90% (1992: 90%; 1991: 80%) lagen unter 300 Bq/kg für die beiden Caesium-Nuklide zusammen. 2 von 44 Proben (1992: 1 von 80; 1991: 4 von 94) lagen über dem Toleranzwert von 600 Bq/kg. Bei einer durchschnittlichen Konsumrate von Wildfleisch in der Schweiz von höchstens 1 kg/Jahr ist der Dosisbeitrag durch Wildkonsum unbedeutend.

c. Wildpilze (Fig. 1)

Bei den **einheimischen** Wildpilzen zeigen vor allem Maronenröhrlinge und Zigeunerpilze erhöhte Werte. Berücksichtigt man die geringen Konsumraten von frischen Wildpilzen, dann sind die Dosen durch Pilzkonsum unbedeutend. Eine Übersicht über den Verlauf der Caesium-Aktivitäten (Cs-134 + Cs-137) in den meistkontaminierten Pilzarten (Maronenröhrlinge und Zigeunerpilze) ist in der Fig. 1 dargestellt. Sie zeigen immer noch keinen Rückgang [1], was damit zusammenhängt, dass im Durchschnitt fast die Hälfte des Caesium-137 in den genannten Pilzen noch vom Kernwaffenausfall der 60er- und 70er-Jahre stammt. In Waldböden bleibt nämlich das Caesium stark an den organischen Partikeln der obersten Bodenschicht gebunden, wo sich auch das Pilzmyzel befindet, über welches das Caesium von den Pilzen aufgenommen wird. Es ist deshalb bei den genannten zwei Pilzsorten auch in den nächsten Jahren kaum mit einem starken Rückgang der Caesium-137-Aktivität zu rechnen.





[1] Auch bei Messungen von frischen Wildpilzen in der Bundesrepublik Deutschland (siehe Info-Blatt des Bundesamtes für Strahlenschutz Nr. 4/93 vom 13. September 1993) wurde noch keine signifikante Abnahme der Aktivität festgestellt. Bei einer Caesium-137-Bodenkontamination von 10 bis 15 kBq/m^2 (im Schweizerischen Mittelland ist die Bodenkontamination etwa eine Grössenordnung tiefer) ergaben sich beispielsweise für Maronenröhrlinge im Mittel 2000 Bq Caesium-137/kg Frischgewicht (Wertebereich: 1320 bis 4'365 Bq/kg Frischgewicht). Bei Pfifferlingen lagen die Konzentrationen im Durchschnitt rund 5 mal, bei Steinpilzen rund 9 mal und bei Waldchampignons rund 250 mal tiefer.

Eine Übersicht über die 1993 untersuchten Pilze ist in der folgenden Tabelle dargestellt. Dabei sind alle Angaben auf Frischgewicht bezogen und (+) bedeutet, dass die Probe in getrockneter Form gemessen und die Gehalte an Cs-134 und Cs-137 durch Division mit einem Faktor 10 auf Frischgewicht umgerechnet wurden.

Tabelle 3: Inländische Wildpilze

Pilzart	Kant.	n	Cs-137 (Bq/kg)			Cs-134 (Bq/kg)		
			Min.	Mit	Max.	Min.	Mit.	Max.
Maronenröhrlinge	BE	9	90	246	428	< 4	7	17
" "	LU	1	---	180	---	---	8	---
" "	AG	2(+)	275	---	325	16	---	17
" "	TG	2	660	---	1080	31	---	52
Rotfussröhrlinge	BE	3	111	140	168	< 4	---	5
" "	FR	1(+)	---	19	---	---	0.6	---
" "	AG	1(+)	---	440	---	---	23	---
Steinpilze	LU	1	---	52	---	---	1	---
" "	AG	2(+)	28	---	30	1.2	---	1.3
" "	GR	2(+)	6	---	16	---	< 0.2	---
" "	TI	7	1.6	6	12	---	< 2	---
andere Röhrlinge	BE	1	---	< 4	---	---	< 4	---
" "	AG	1(+)	---	8	---	---	0.5	---
Zigeunerpilze	BE	6	196	530	1363	< 4	7	23
" "	FR	1(+)	---	870	---	---	2	---
" "	AG	1(+)	---	1370	---	---	65	---
Champignons	TG	1	---	1.4	---	---	< 0.2	---
Morcheln	TI	7	1.7	3.1	6.2	---	< 1	---
übrige Pilze	FR	4(+)	2.6	90	181	< 0.2	3	6.7
" "	BE	4	< 4	10	30	---	< 4	---
" "	LU	1	---	20	---	---	1.3	---
" "	AG	11(+)	< 0.5	140	580	< 0.2	7	28
" "	ZH	1(+)	---	0.25	---	---	0.03	---
" "	TG	9	1	56	216	< 0.2	3	12
" "	GR	6(+)	3	85	420	< 0.2	4	19

Von den Kantonalen Laboratorien Aargau, Basel-Stadt, Thurgau und Zürich wurden **importierte** Pilze untersucht; sie ergaben die folgenden Resultate (Mittelwerte mit Wertebereich in Klammern; alle Resultate auf Frischgewicht bezogen):

Tabelle 4: Importierte Pilze: Bq/kg Frischgewicht

Pilzart	Anzahl	Caesium-137		Caesium-134	
Maronenröhrlinge	3	≈ 500	(280 - 790)	≈ 20	(10 - 34)
Steinpilze	6	≈ 20	(0.1 - 110)	≈ 1	(0.2 - 5)
Eierschwämme	3	≈ 30	(1.7 - 82)	≈ 1	(< 0.1 - 4.3)
andere Pilze	15	≈ 0.6	(0.05 - 2.5)	≈ 0.1	(< 0.01 - < 1)

d. Fische aus dem Luganersee

1993 wurden, in Zusammenarbeit mit dem Kantonalen Laboratorium des Tessin, 40 weitere Proben von verschiedenen Fischen aus dem Luganersee, dem nach Tschernobyl meistbelasteten See der Schweiz, auf Radioaktivität untersucht. Gegenüber 1992 (siehe Bericht 1992 Seite B.3.5.5) zeigen diese Proben einen weiteren Rückgang mit einem Medianwert von 31 Bq Caesium-137/kg und einer 10-90% Summenhäufigkeit von 15 resp. 53 Bq Caesium-137/kg. Da auch das Caesium-134 miterfasst wurde, lässt sich abschätzen, dass das Caesium-137 der Fische praktisch ausschliesslich von Reaktorunfall in Tschernobyl stammt. 15 weitere Proben aus dem Langensee ergaben Caesium-137-Werte von im Durchschnitt 10 Bq/kg.

e. Weitere Lebensmittel

6 Proben von importieren Haselnüssen, gemessen durch die Labors BS, TG und ZH ergaben Caesium-137-Werte zwischen < 1 und 34 Bq/kg; für Caesium-134 zwischen 0.5 und 2.4 Bq/kg. Weitere rund 150 Proben von Getreide, Getreideprodukten, Mehl, Brot, Teigwaren, Säuglingsnahrung, Sonnenblumenkerne und andere Kerne, Weich- und Streichkäse, die vom Kantonslabor Zürich untersucht wurden, ergaben weniger als 1 Bq/kg Caesium-137. Reis wies Caesium-137-Werte bis 4 Bq/kg auf, Tee und Arzneimittel bis 25 Bq/kg. Vom Kantonslabor Aargau untersuchte Preiselbeerprodukte, hergestellt aus Preiselbeeren aus den GUS-Staaten sowie aus Polen und Finnland, ergaben Caesium-137-Werte, bezogen auf das Ausgangsprodukt, zwischen 11 und 56 Bq/kg.

f. Glasperlen

Im Herst 1993 tauchten im Handel importierte, uranhaltige, gelbe oder grüne Glasperlen auf. Sie wiesen, wie die Messungen verschiedener Kantonaler Laboratorien und des BAG ergaben, Uran-Aktivitäten bis einige Zehntausend Bq/kg auf. Da diese Aktivitätswerte über der Bewilligungsgrenze liegen, wurden die Glasperlen vom BAG aus dem Verkehr gezogen.

3.5.4. Bewertung und Interpretation

Die Bestimmung der Strahlenexposition der Bevölkerung durch Caesium-137 und Caesium-134 in Lebensmitteln ist nur als grobe Schätzung möglich, da die Aktivitätsmesswerte heute meist unter der Messgrenze liegen. Die Strahlendosen durch diese über die Nahrung aufgenommene **künstliche** Radioaktivität sind daher sehr klein: Für Personen mit durchschnittlichen Ernährungsgewohnheiten lag die Ingestionsdosis durch Caesium-137 (Caessium-134 hat praktisch keine Bedeutung mehr) 1993 unter 0.002 mSv pro Jahr. Die Strahlenexposition durch Strontium-90 in der Nahrung (siehe auch Kap. 3.6) dürfte 1993 aufgrund der Untersuchungen von Wirbelknochen bei etwa 0.002 mSv pro Jahr liegen.

Im Vergleich dazu liegen die jährlichen Dosen durch die, über die Nahrung, aufgenommenen **natürlichen** Radionuklide im menschlichen Körper bei durchschnittlich 0.38 mSv, wovon rund 0.2 mSv von Kalium-40 stammen, der Rest von Rubidium-87 (0.006 mSv), den kosmogenen Radionukliden H-3 (Tritium), Beryllium-7, Kohlenstoff-14, Natrium-22 (0.015 mSv),

Uran, Radium und Thorium (0.03 mSv) und Blei-210 + Polonium-210 (0.12 mSv) [Quelle: UNSCEAR 1982]. (NB. Die direkt über die Atmung in den Körper gelangenden Radon-Folgeprodukte im Hausinnern sind in dieser Auflistung bzw. Darstellung nicht inbegriffen; sie führen in der Schweiz im Durchschnitt zu einer Dosis von 1.6 mSv/Jahr).

Quellen

Die in diesem Bericht enthaltenen Ergebnisse sind den Berichten der kantonalen Laboratorien für 1993 sowie den interne Berichten der übrigen Laboratorien entnommen. All' diesen Stellen sei für die wertvolle Mitarbeit bestens gedankt.

3.6. MESURES DE STRONTIUM-90

F. Carlone, J.-J. Geering, J.-F. Valley

Institut de radiophysique appliquée
Centre Universitaire, 1015 LAUSANNE

3.6.1. Résumé

En 1993, les déterminations de strontium-90 effectuées dans le cadre de la surveillance de la radioactivité en Suisse ont porté essentiellement sur des échantillons de sol, d'herbe, de lait, de froment, ainsi que de vertèbres humaines et de dents de lait. Pour l'ensemble des résultats, les valeurs restent comparables à celles mesurées depuis 1989, lorsque les effets de l'accident de Tchernobyl n'étaient pratiquement plus perceptibles. De même, les facteurs de transfert sol-herbe et herbe-lait restent semblables à ceux des années précédentes.

3.6.2. Introduction

Le strontium-90 encore présent actuellement dans l'environnement provient essentiellement des retombées des essais nucléaires atmosphériques des années soixante. Les déterminations en routine du strontium-90 dans l'environnement doivent permettre de déceler à son tout premier stade une éventuelle augmentation de la concentration de ce radionucléide en raison du risque particulièrement élevé que comporte son ingestion. Ce risque est lié à sa longue période, à l'énergie bêta maximale élevée de son produit de filiation, l'yttrium-90, et au fait que le strontium, dont le métabolisme est apparenté à celui du calcium, se fixe dans le squelette et les autres tissus calcifiés [1, 2].

Comme les années précédentes, les déterminations de strontium-90 ont porté, en 1993, principalement sur des échantillons de sol (couche de 0 à 5 cm de profondeur), d'herbe, de lait et de froment provenant des environs des centrales nucléaires (Beznau, Mühleberg, Gösgen-Däniken et Leibstadt), ainsi que de l'Institut Paul Scherrer à Villigen. De plus, des échantillons de sol, d'herbe et de lait ont été collectés sur les sites de référence suivants: Arenenberg/TG, Coire/GR, Grangeneuve/FR, Lausanne/VD, Finges/VS, Rossberg/ZH, Rodi/TI, Sessa/TI et Sissach/BL, ainsi qu'aux points d'altitude suivants: Davos/GR, Mürren/BE, Rasa/TI et Rodi/TI. Des échantillons de lait ont été collectés dans le canton du Jura à Saignelégier et à Beurnevésin. Des échantillons de froment provenant de chacune des zones de production de Suisse ont également été analysés.

Enfin, des échantillons de vertèbres ont été fournis par les instituts d'anatomie pathologique de Zürich, Bâle, St-Gall, Lausanne, Sion et Locarno. Des dents de lait ont également été collectées dans les cabinets dentaires scolaires de Zürich, St-Gall, Lausanne, Sion, Coire et du Tessin, ainsi qu'auprès de dentistes privés dans les cantons du Valais et du Tessin.

3.6.3. Résultats de la surveillance

A titre de comparaison, les résultats de la surveillance du strontium-90 en 1992 ont également été reportés. Les marges d'erreur sur les valeurs individuelles indiquent l'incertitude de comptage au niveau de confiance de 95%, alors que les marges d'erreur sur les moyennes indiquent la fluctuation statistique, au même niveau de confiance.

Sol et herbe

Les activités en strontium-90 mesurées en 1993 dans le sol et l'herbe sont reportées respectivement dans les tableaux 1 et 2. Les prélèvements sont effectués selon les directives de l'Office fédéral de la santé publique.

Dans l'ensemble, les résultats de mesure restent comparables à ceux des années précédentes. Les sites en altitude présentent des activités plus élevées qu'en plaine. Comme précédemment, on constate d'importantes fluctuations de l'activité du strontium-90 dans l'herbe d'une saison à l'autre, pouvant être attribuées à la diversité des espèces végétales et des microclimats, particulièrement en montagne.

Comme ce fut déjà le cas en 1991 et 1992, l'activité en strontium-90 de l'herbe de Sessa, situé dans le Sottoceneri particulièrement touché par l'accident de Tchernobyl, reste plus élevée en 1993 que dans les autres sites de référence.

Tableau 1. Concentration en strontium-90 dans le sol (Bq/kg MS*)

	1992	1993
Centrales nucléaires et PSI	1,5 - 3,0	2,3 - 2,9
Sites de référence	0,3 - 10,5	0,4 - 6,3
Sites en altitude		
Davos/GR	37,1 ± 0,9	47,1 ± 1,4
Mürren/BE	28,8 ± 0,8	44,7 ± 1,4
Rodi/TI	6,7 ± 0,4	5,5 ± 0,4

* matière sèche

Tableau 2. Concentration en strontium-90 dans l'herbe (Bq/kg MS)

		1992	1993
Centrales nucléaires et PSI		3,0 - 5,4	2,7 - 7,6
Sites de référence		0,9 - 11,5	0,6 - 5,5
Exception:	Sessa	21,2 ± 0,4	22,3 ± 0,4
Sites en altitude			
Davos/GR	été	46,2 ± 0,7	53,8 ± 0,3
	automne	12,9 ± 0,4	10,6 ± 0,3
Mürren/BE		7,1 ± 0,2	11,4 ± 0,2
Rodi/TI		5,7 ± 0,2	7,4 ± 0,2

Froment

Les activités en strontium-90 mesurées en 1993 dans les blés, tant au voisinage des centrales nucléaires que dans les 8 zones de production couvrant l'ensemble du territoire suisse, à l'exception du Tessin, ne permettent pas de mettre en évidence des différences significatives entre régions. Les activités sont comprises entre 0,27 et 0,74 Bq/kg et confirment les valeurs mesurées les années précédentes, mis à part un échantillon fourni par une exploitation de Leibstadt où l'on a mesuré 1,00 Bq/kg. Remarquons que depuis plusieurs années, l'activité en strontium-90 mesurée dans ce blé était systématiquement plus élevée que celle du mélange de froment des exploitations situées dans les environs de la centrale.

Lait

Le tableau 3 présente les résultats des analyses de lait, qui ne diffèrent guère, dans l'ensemble, des valeurs mesurées les années précédentes.

Au voisinage des centrales nucléaires, l'activité en strontium-90 du lait reste comparable à celle mesurée dans l'ensemble des points de prélèvements en plaine.

Tableau 3. Concentration en Sr-90 dans le lait (Bq/l)

		1992	1993
Centrales nucléaires		0,06 - 0,12	0,07 - 0,10
	moyenne	0,09 ± 0,01	0,08 ± 0,01
Sites de référence		0,05 - 0,15	0,01 - 0,20
	moyenne	0,08 ± 0,02	0,08 ± 0,04
Exception: Sessa/TI		0,42 ± 0,02	0,45 ± 0,05
Autres sites (Canton du Jura)		0,06 - 0,12	0,09 - 0,14
	moyenne	0,08 ± 0,02	0,10 ± 0,02
Sites en altitude			
Davos/GR	été	0,44 ± 0,02	0,46 ± 0,02
	automne	0,48 ± 0,01	0,38 ± 0,02
Mürren/BE	été	0,31 ± 0,01	0,53 ± 0,01
	automne	0,17 ± 0,01	0,41 ± 0,01
Rasa/TI	été	0,30 ± 0,02	0,21 ± 0,01
	automne	0,58 ± 0,04	0,50 ± 0,03
Rodi/TI	été	0,23 ± 0,01	0,23 ± 0,01
	automne	0,45 ± 0,03	0,24 ± 0,01

- Les résultats pour le site de Mühleberg ont été fournis par le laboratoire cantonal de Berne.

- Les résultats pour les sites de Sissach/BL (site de référence), Rasa/TI, Rodi/TI et Sessa/TI, ainsi que du canton du Jura (Saignelégier, Beurnevésin) ont été fournis par le laboratoire cantonal de Bâle-Ville.

L'activité en strontium-90 plus élevée mesurée dans le lait de Sessa (Sud-Ouest du Tessin) reflète celle de l'herbe et confirme les valeurs mesurées en 1992.

Les sites en altitude, soit Davos, Mürren, Rodi et Rasa, présentent des activités en strontium-90 dans le lait plus élevées; il en est de même dans l'herbe.

D'une manière générale, la dispersion des résultats de mesure du strontium-90 diminue en passant du sol à l'herbe, puis au lait. Elle est encore plus faible dans les vertèbres humaines. Ce phénomène d'homogénéisation est certainement dû à un effet de moyenne.

Vertèbres

Le tableau 4 présente les résultats d'analyses de strontium-90 dans les vertèbres humaines d'adultes décédés en 1992 et 1993. La teneur moyenne de strontium dans les os correspond à une dose effective d'environ 0,002 mSv/année. Le nombre restreint d'échantillons ne permet pas de mettre en évidence des différences significatives entre régions, sexes ou classes d'âge. Aucune augmentation de l'activité en strontium-90 imputable à l'accident de Tchernobyl n'a été constatée. Comme les années précédentes, on constate que la dispersion des résultats est plus élevée pour les vertèbres collectées au Tessin que dans les autres régions.

Tableau 4. Concentration en Sr-90 (Bq/g Ca) dans les vertèbres humaines

Région	Année de décès							
	1992				1993			
Tessin	0,032	±	0,021	[5]	0,023	±	0,014	[4]
Lausanne	0,028	±	0,010	[6]	0,024	±	0,008	[9]
St. Gall	0,029	±	0,008	[7]	0,023	±	0,005	[7]
Valais					0,029	±	0,014	[6]
Bâle	0,023	±	0,003	[7]	0,021	±	0,005	[6]
Zürich	0,020	±	0,003	[10]	0,022	±	0,005	[8]
Moyenne générale	0,026	±	0,003	[35]	0,024	±	0,002	[40]

[ ] = nombre de déterminations

Il est intéressant de relever qu'on ne constate actuellement plus de différence significative de l'activité en strontium-90 des vertèbres entre régions (Suisse alémanique, Suisse romande et Tessin) comme ce fut le cas dans les années soixante et septante. Ce nivellement peut s'expliquer par l'uniformisation croissante de la production alimentaire sur l'ensemble du territoire suisse.

Dents de lait

La collecte de dents de lait, commencée en 1988, a été poursuivie en 1993. Le tableau 5 présente, pour chaque région, les moyennes des activités en strontium-90 dans les dents de lait collectées en 1993, comparées à celles de 1992. Aucun effet significatif dû à l'année de naissance, l'âge des enfants, ou la région de collection n'a été constaté. Les mesures effectuées jusqu'à présent constituent un bruit de fond indispensable à la détection, ces prochaines

années, d'un éventuel accroissement de l'activité consécutif à l'accident de Tchernobyl. Les dents de lait d'enfants nés en 1986 pourront être collectées dès 1994.

Tableau 5. Concentration en Sr-90 (Bq/g Ca) dans les dents de lait

Lieu	Année de naissance	1992	Année de naissance	1993
Coire			1980-1985	0,054 ± 0,041
Lausanne	1980-1984	0,045 ± 0,024	1981-1985	0,051 ± 0,008
Tessin	1977-1984	0,063 ± 0,012	1978-1985	0,075 ± 0,022
St. Gall	1980-1985	0,043 ± 0,008	1982-1985	0,032 ± 0,030
Valais	1979-1983	0,055 ± 0,008	1977-1985	0,061 ± 0,013
Zürich	1980-1985	0,045 ± 0,009	1981-1985	0,040 ± 0,013
	Moyenne	0,050 ± 0,005	**Moyenne**	0,056 ± 0,008

Eaux de rejet

Les déterminations de strontium-90 dans les eaux de rejet, effectués en 1993 sur 2 prélèvements dans chacune des centrales de Mühleberg, Gösgen, Beznau et Leibstadt, ainsi qu'au PSI, ont montré que l'activité de ces eaux est restée très faible (< 8 Bq/litre) et du même ordre de grandeur que les années précédentes.

En 1993, les activités en strontium-90 mesurées dans les effluents des dépôts de Teufen/AR et de Stein/AR ne dépassaient pas 1,4 Bq/l et 0,3 Bq/l respectivement. Ces déterminations ont été effectuées par les laboratoires de l'EAWAG; les résultats de mesure restent comparables à ceux des années précédentes.

3.6.4. Facteurs de transfert

Les facteurs de transfert sol-herbe et herbe-lait ont été déterminés sur les sites où des échantillons de sol, d'herbe et de lait ont été prélevés simultanément.

Tableau 6. Facteurs de transfert

	Sol-herbe $(Bq/kg\ MS)_{herbe}$ / $(Bq/kg\ MS)_{sol}$ **Rapportés à la masse**		**Herbe-lait** $(Bq/g\ Ca)_{lait}$ / $(Bq/kg\ MS)_{herbe}$ **Rapportés au calcium**	
	1992	**1993**	**1992**	**1993**
Lausanne/VD	4,6 ± 0,5	0,9 ± 0,1	0,07 ± 0,01	0,18 ± 0,02
Arenenberg/TG	0,5 ± 0,1	0,7 ± 0,1	0,09 ± 0,01	0,10 ± 0,01
Finges/VS	2,7 ± 0,4	1,6 ± 0,9	0,13 ± 0,02	0,26 ± 0,21
Coire/GR	3,0 ± 1,2	1,4 ± 0,4	0,59 ± 0,09	0,66 ± 0,10
Grangeneuve/FR	2,3 ± 0,3	1,6 ± 0,2	0,08 ± 0,01	0,08 ± 0,01
Davos/GR	1,2 ± 0,1	1,1 ± 0,1	0,11 ± 0,01	0,06 ± 0,01

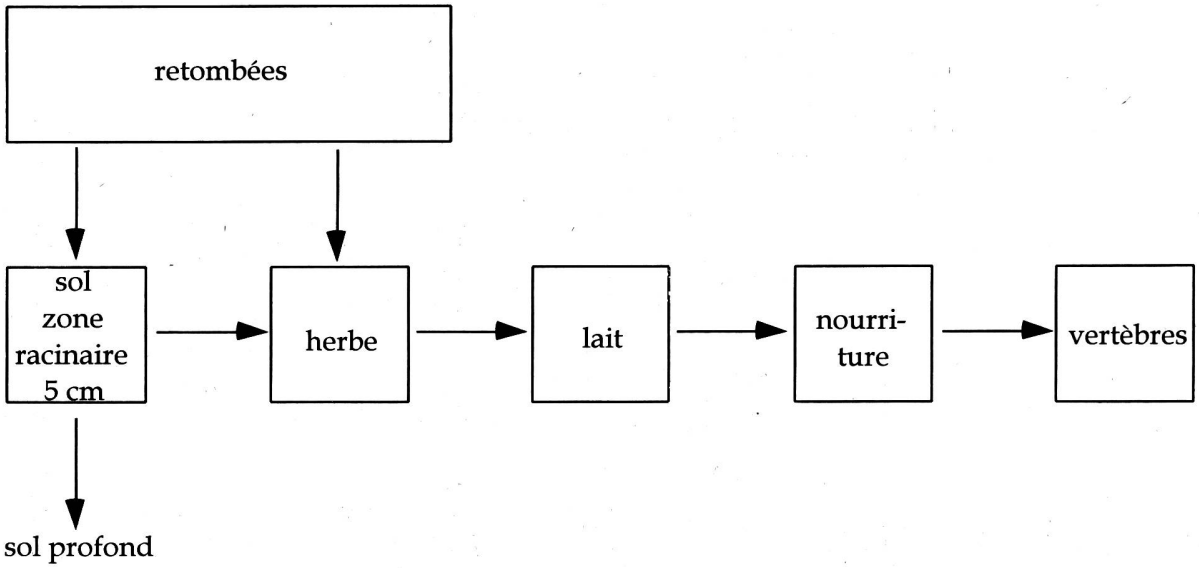
Les marges d'erreur figurant dans le tableau ne comprennent que l'incertitude due aux comptages.

Bien que l'ordre de grandeur de ces facteurs de transfert empiriques reste le même d'une année à l'autre, on observe néanmoins de grandes fluctuations de caractère aléatoire, pour un même site, d'une année à l'autre; les facteurs de transfert sont influencés par de nombreux paramètres qu'il n'est pas possible de contrôler lors de prélèvements sur le terrain, contrairement aux facteurs de transfert déterminés par des cultures en laboratoire (conditions météorologiques, variétés d'herbe, présence de sol dans les échantillons d'herbe, etc.) [3]

3.6.5. Modélisation

Depuis 1960, des mesures de strontium-90 sont effectuées dans les os et les dents de lait. Elles ont été complétées dès 1976 par des mesures de sol, d'herbe, de lait, ainsi que de blé à partir de 1982. Une première tentative de modéliser les résultats obtenus dans les régions de plaine, à l'exclusion du blé et des dents de lait, a été effectuée. Un modèle simple, adapté aux mesures et ne comportant pas de variations saisonnières a été retenu (voir figure 1). Les valeurs des paramètres de transfert applicables à la situation suisse ont été sélectionnées dans la littérature [5].

Figure 1. Modèle de comportement du strontium dans l'environnement

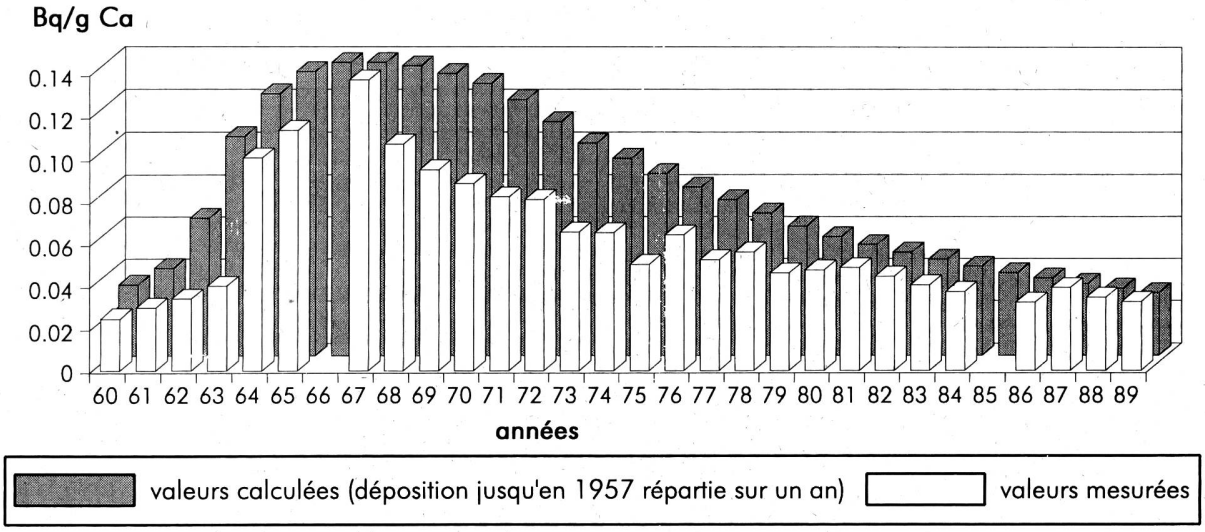


On admet que le strontium-90 entre dans le système directement par les retombées atmosphériques. Le sol est divisé en deux compartiments : le sol racinaire (de 0 à 5 cm) et le sol profond (au-delà de 5 cm). Une fraction de la déposition est interceptée par l'herbe.

Le lait est en équilibre avec l'herbe. Selon UNSCEAR [1], l'activité en strontium-90, rapportée à la concentration de calcium mesurée dans le lait, peut servir d'indicateur à ce rapport dans la nourriture. Ceci permet de calculer l'ingestion annuelle de strontium-90 par la population. Pour le calcul de l'activité en strontium-90 dans les vertèbres, le modèle de la Commission internationale de protection radiologique [6] a été appliqué.

A titre d'exemple les résultats de la modélisation pour le compartiment en bout de chaîne, les vertèbres humaines, sont comparées à la figure 2 avec les moyennes mesurées. Les valeurs calculées sont étonnamment proches des mesures si l'on considère qu'aucun ajustement n'a été effectué et que les valeurs des paramètres de transfert tirés de la littérature peuvent présenter une large dispersion.

Figure 2. Comparaison des valeurs mesurées de l'activité en strontium-90 dans les vertèbres avec celles calculées par le modèle



Les résultats détaillés de cette étude figurent dans un rapport interne [5]. Une analyse plus fine, tenant compte des variations régionales et incorporant les mesures dans le blé et les dents de lait, est envisagée.

Remerciements

Que toutes les personnes qui ont contribué à ce travail en fournissant les échantillons trouvent ici l'expression de notre reconnaissance : la section de surveillance de la radioactivité à Fribourg, les laboratoires cantonaux, les instituts de pathologie de Bâle, Lausanne, Locarno, St. Gall, Sion et Zürich, les médecins dentistes privés concernés et ceux des cabinets dentaires scolaires de Bâle, Coire, Lausanne, Lugano, St. Gall, Sion et Zürich, ainsi que le Dr G. Ferrazzini à Lugano.

Bibliographie

[1] Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects, UNSCEAR Report, United Nations Publication, New-York 1982.

[2] Some Aspects of Strontium Radiobiology, NCRP Report N0. 110, Bethesda, 1991, p. 38-48.

[3] W. Steffens, W. Mittelstädt, F. Führ, The Transfer of Sr-90, Cs-137, Co-60 and Mn-54 from Soils to Plants. Results from Lysimeter Experiments, Pergamon Press, Oxford (1980), p.1139.

[4] C. Friedli, J.J. Geering, P. Lerch, Radiochim. Acta **52/53** (1991) p.237.

[5] F. Carlone, J.J. Geering, J.F. Valley, Modélisation du strontium-90 dans l'environnement, rapport interne IRA, 1994.

[6] Alkaline-earth metabolism in adult man. ICRP Publication 20, 1973.

3.7. ERGEBNISSE DER GANZKÖRPERMESSUNGEN

C. Wernli [1], M. Boschung [1] und A. Donath [2]

1) Abteilung Strahlenhygiene, PSI, 5232 VILLIGEN-PSI
2) Abt. Nuklearmedizin des Kantonsspital, av. Micheli-du-Crest 24, 1211 GENÈVE 4

3.7.1. Zusammenfassung

Ganzkörpermessungen zur Bestimmung des Radioaktivitätsgehaltes im menschlichen Körper werden regelmässig an Mitarbeitern des Paul-Scherrer-Institutes (PSI) in Villigen und an Gymnasiasten aus Genf durchgeführt. Der mittlere Gehalt an Caesium-137 vom Reaktorunfall in Tschernobyl war 1993 vergleichbar mit den Werten des Vorjahres; die Messwerte aus Genf lagen sehr nahe an der Messgrenze.

3.7.2. Ziele und Messprogramm

Zur Zeit werden im PSI die Ganzkörpermessungen nur zur Überwachung der beruflich strahlenexponierten Personen eingesetzt, von denen viele im Kanton Aargau wohnen. Bei Ereignissen mit Verdacht auf Inkorporation radioaktiver Stoffe (wie nach Tschernobyl oder nach atmosphärischen Bombentests) werden auch Personen der Bevölkerung gemessen.

Bei den Messungen am Kantonsspital Genf handelt es sich um rund zwanzig 17-19-jährige Mädchen und Knaben aus einem Genfer Gymnasium. An dieser langjährigen Messreihe kann der zeitliche Verlauf der Caesium-Aktivität sowie der Einfluss des Atombombenausfalles und des Tschernobyl-Unfalles dargestellt werden.

3.7.3. Messverfahren

Für die Ganzkörpermessungen werden grossvolumige NaJ-Kristalle in speziell abgeschirmten Messkammern (mit Blei- und Eisenabschirmung) eingesetzt. Die Messung einer Person dauert in der Regel etwa zehn Minuten. Die Kalibrierung erfolgt mittels eines Phantoms, dessen Aktivität bekannt ist.

3.7.4. Zusammenfassung der Ergebnisse (siehe Fig. 1 und 2)

Im Rahmen der Inkorporationsüberwachung der beruflich strahlenexponierten Personen wurden am PSI 1993 648 Messungen im Ganzkörperzähler durchgeführt. Ueber 95% der Messwerte liegen unterhalb der Nachweisgrenze von 100 Bq.

Die Messwerte an Gymnasiasten aus Genf lagen durchwegs unter 50 Bq Caesium-137, und sind auch im Durchschnitt (im Mittel 17 Bq bei den Knaben und 7 Bq bei den Mädchen) tiefer als jene des Paul-Scherrer-Institutes; sie haben aber gegenüber den Vorjahren nur noch

geringfügig abgenommen, wie aus Fig. 2 ersichtlich ist. Die Werte von 1989 zeigen noch den Einfluss von Tschernobyl.

3.7.5. Bewertung und Interpretation

Ein dauernder Gehalt von 104 Bq Caesium-137 (PSI) im Körper einer erwachsenen Person führt zu einer Jahresdosis von ca. 0.004 milli-Sievert; der Durchschnittswert von 10 bis 20 Bq Caesium-137 bei den Genfer Schülern entspricht < 0.001 milli-Sievert pro Jahr. Demgegenüber beträgt die mittlere Jahresdosis durch das natürliche Kalium-40 (2.3 g/kg d.h. 68 Bq/kg bei den Knaben bzw. 1.8 g/kg d.h. 55 Bq/kg bei den Mädchen), das wie Caesium im Muskelgewebe eingebaut wird, ca. 0.2 milli-Sievert.

Fig. 1: GANZKÖRPERMESSUNGEN AM PSI 1993

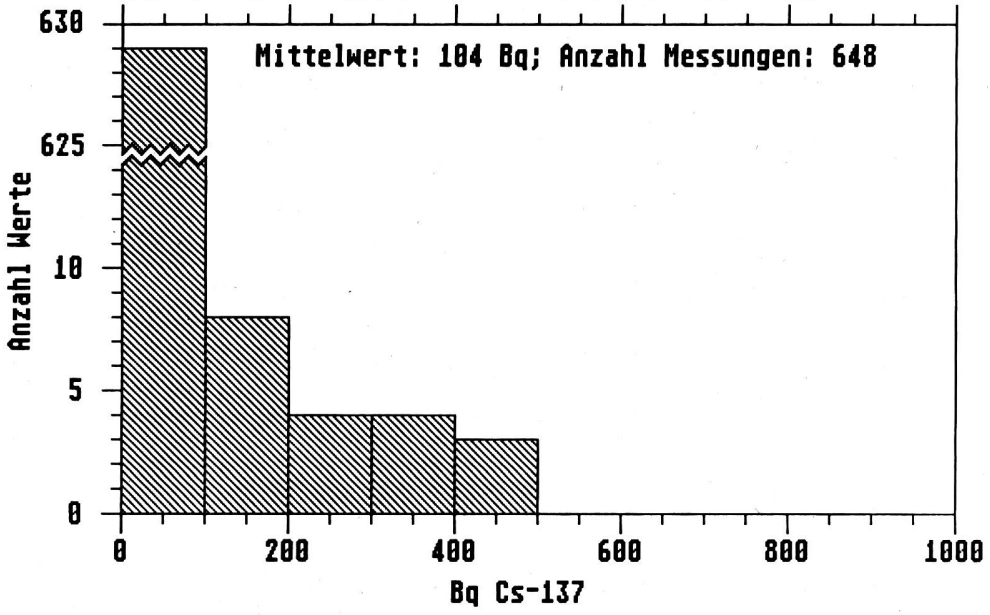
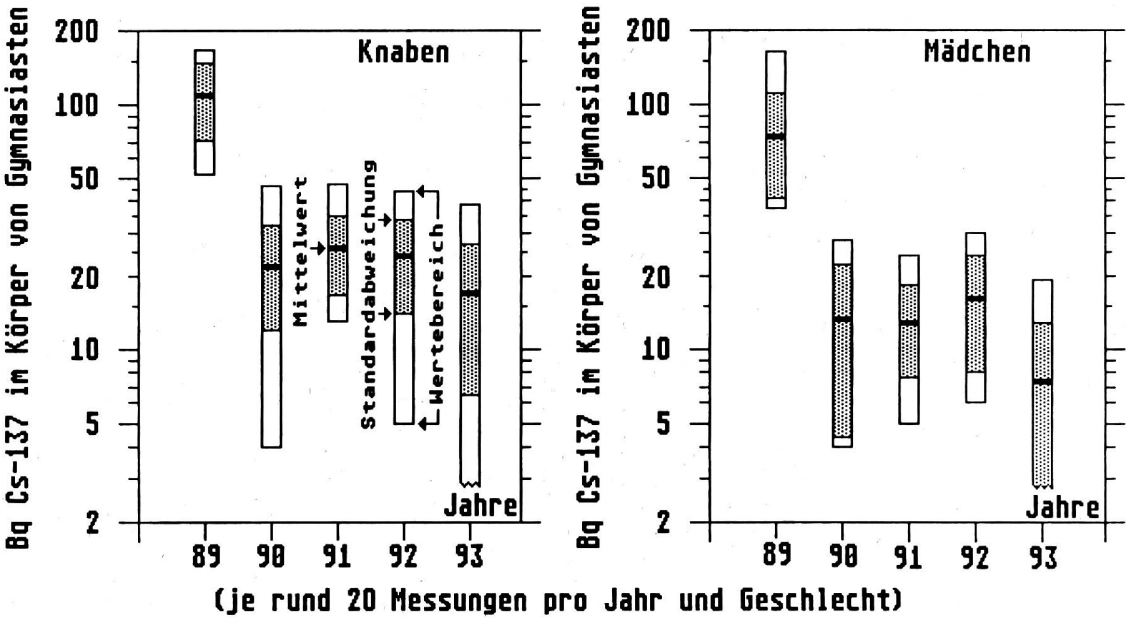


Fig. 2: GANZKÖRPERMESSUNGEN AN GYMNASIASTEN AUS GENF



3.8. DIE AUTOMATISCHE ÜBERWACHUNG DER ORTSDOSEN MIT NADAM

D. Rauber, A. Leonardi

Nationale Alarmzentrale, Postfach, 8044 ZÜRICH
Eidg. Departement des Innern

3.8.1. Übersicht

Das seit 1987 im Routinebetrieb stehende Netz für automatische Dosismessung und -alarmierung NADAM dient der grossräumigen und permanenten Überwachung der externen Strahlung. Auch 1993 konnte praktisch eine räumlich und zeitlich lückenlose, grossräumige Überwachung gewährleistet werden. Mit ein Grund dafür ist die Übermittlung der Daten auf dem separaten Netz der Schweizerischen Meteorologischen Anstalt. Als besondere Vorkommnisse des Jahres 1993 sind der Dampferzeugeraustausch beim Kernkraftwerk Beznau, der Vorfall beim Forschungsreaktor des Paul Scherrer Instituts und die Überschwemmungen am Langensee zu erwähnen. Es sind jedoch keine Messwerte festgestellt worden, die auf eine erhöhte Strahlenbelastung der Bevölkerung schliessen lassen. Immer mehr an Bedeutung gewinnt der rasche, internationale Austausch von Daten aus automatischen Messnetzen.

3.8.2. Spezielle Ereignisse

Im Jahre 1993 sind einzelne Ereignisse eingetreten, die zu deutlichen Abweichungen der Messwerte von den Erfahrungswerten führten.

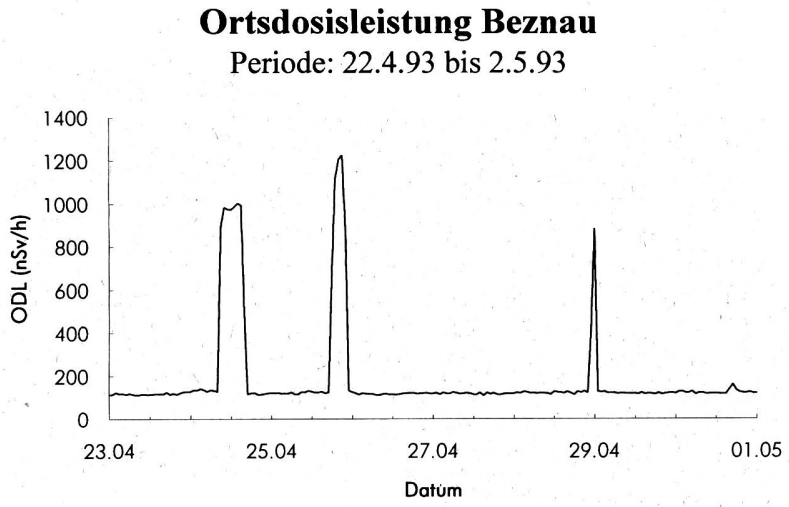
Die wichtigsten sind nachfolgend kurz beschrieben:

Am 24. und 25. April sowie am 28. und 29. April 1993 wurden beim Kernkraftwerk Beznau die Dampferzeuger ersetzt (siehe auch Kap. 4.). Die alten Dampferzeuger wurden ausgebaut und in eine spezielle Halle überführt. Der Transportweg führte an der NADAM-Sonde im Areal des Kernkraftwerkes vorbei, die entsprechend auf die Strahlung, die von den Dampferzeugern ausging, ansprach. Die höchsten gemessenen Stundenmittelwerte betrugen am 24./25. April rund 4 μSv/h resp. 0,5 μSv/h am 28./29. April (s. Fig. 1). Für die Bevölkerung bestand zu keiner Zeit die Gefahr einer zusätzlichen Strahlenbelastung, da die entsprechenden Sicherheitsvorkehrungen durch die Strahlenschutzverantwortlichen des Kernkraftwerks getroffen wurden.

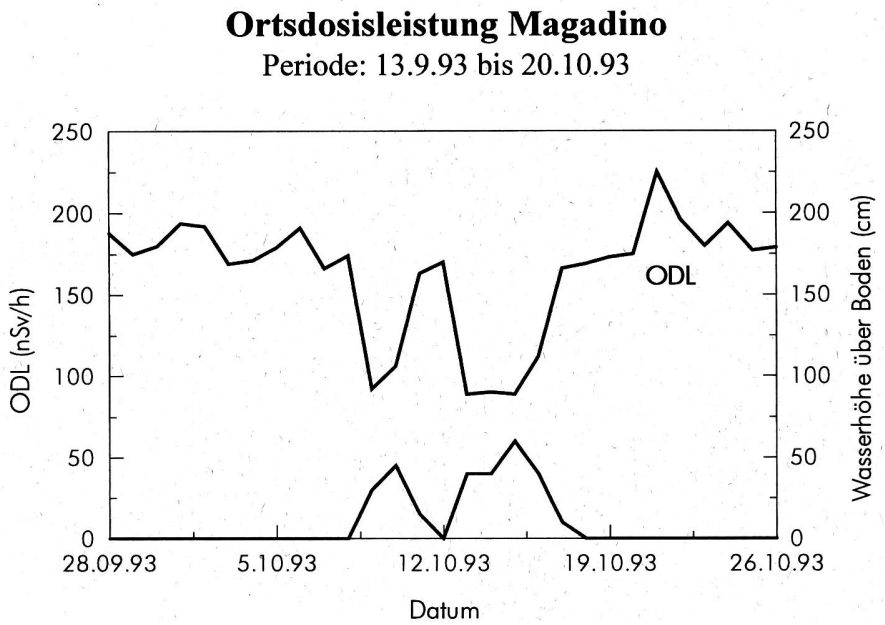
Eine kurzzeitige Erhöhung der Messwerte auf dem Gelände des Paul Scherrer Instituts wurde durch eine Bestrahlungsbüchse verursacht, die kurz an die Wasseroberfläche des Forschungsreaktors SAPHIR gelangen konnte. Diese wurde jedoch vom Bedienungspersonal sofort wieder in das abschirmende Wasser getaucht. Der in diesem Fall gemessene höchste Stundenmittelwert betrug 185 nSv/h. Dies entspricht einer Erhöhung von rund 60 nSv/h gegenüber dem Erfahrungswert. Auch in diesem Fall war die Bevölkerung zu keinem Zeitpunkt gefährdet.

Dass nicht nur Ereignisse mit erhöhten Strahlenwerten zu Abweichungen der Messwerte führen können, zeigte sich während der Überschwemmung in der Magadinoebene letzten Oktober. Der Standort der NADAM-Sonde Magadino war ebenfalls von der Überschwemmung betroffen. Deutlich sichtbar wurde die abschirmende Wirkung des Wassers auf die Bodenstrahlung, indem die angezeigten Messwerte sich bei rund 50% des erwarteten Werts bewegten (s. Fig. 2).

Figur 1: Verlauf der Ortsdosisleistung der NADAM-Sonde von Beznau in der Periode vom 22. April bis 2. Mai 1993 während dem Auswechseln der Dampferzeuger. Dargestellt sind die Stundenmittelwerte in nSv/h.



Figur 2: Verlauf der Ortsdosisleistung der NADAM-Sonde Magadino, die während den Unwettern im Herbst 1993 von der Überschwemmung betroffen war. Dargestellt sind die Tagesmittelwerte in nSv/h. Deutlich sichtbar ist die abschirmende Wirkung des Wasser auf die Bodenstrahlung sichtbar.



3.8.3. Erfahrungswerte und Mittelwerte

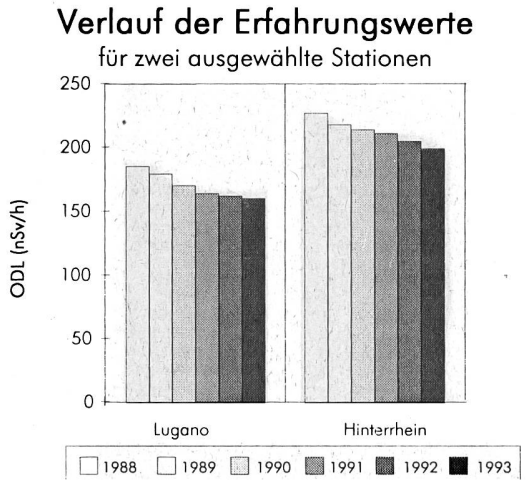
Die Erfahrungswerte wurden aufgrund der Messwerte des Jahres 1993 wiederum überprüft. Es sind nur leichte Änderungen gegenüber dem Vorjahr aufgetreten. In der nachfolgenden Tabelle sind jene Stationen aufgeführt, deren Erfahrungswerte um mehr als 5 nSv/h von den letztjährigen abweichen. Die neu ermittelten Erfahrungsbereiche werden in der wöchentlich erscheinenden Tabelle mit der vorliegenden Ausgabe angepasst.

Station	**Erfahrungswerte 1992** nSv/h	**Erfahrungswerte 1993** nSv/h	**Neue Erfahrungs-bereiche**	**Ursache der Änderung des Erfahrungswerts**
Chasseral	137	128	110 -150	Sondenwechsel
Hinterrhein	206	200	170 - 230	Tschernobyl
Jungfraujoch	225	219	unverändert	unbekannt
Magadino	187	181	150 - 210	Tschernobyl
Piotta	179	174	150 - 200	Tschernobyl
Stabio	214	200	170 - 230	Sondenwechsel und Tschernobyl
Ulrichen	194	188	160 - 220	Tschernobyl
Vaduz	135	121	100 - 140	Sondenwechsel

Die Erfahrungswerte in den durch den radioaktiven Niederschlag von Tschernobyl am stärksten betroffenen Gebieten sind weiter gesunken. Zur Illustration wurde die in den letzten Jahresberichten publizierte Graphik der Stationen Lugano und Hinterrhein mit den Erfahrungswerten für 1993 ergänzt (s. Fig. 3). Während für das Jahr 1993 bei der Station Hinterrhein noch eine deutliche Abnahme des Erfahrungswerts festgestellt werden kann, ist jener von Lugano praktisch unverändert geblieben. Die durch den physikalischen Zerfall und das langsame Eindringen der langlebigen Radionuklide (fast ausschliesslich Cs-137) in den Boden bedingte Abnahme der externen Strahlung wird von Jahr zu Jahr kleiner und ist von den natürlichen Schwankungen kaum mehr unterscheidbar.

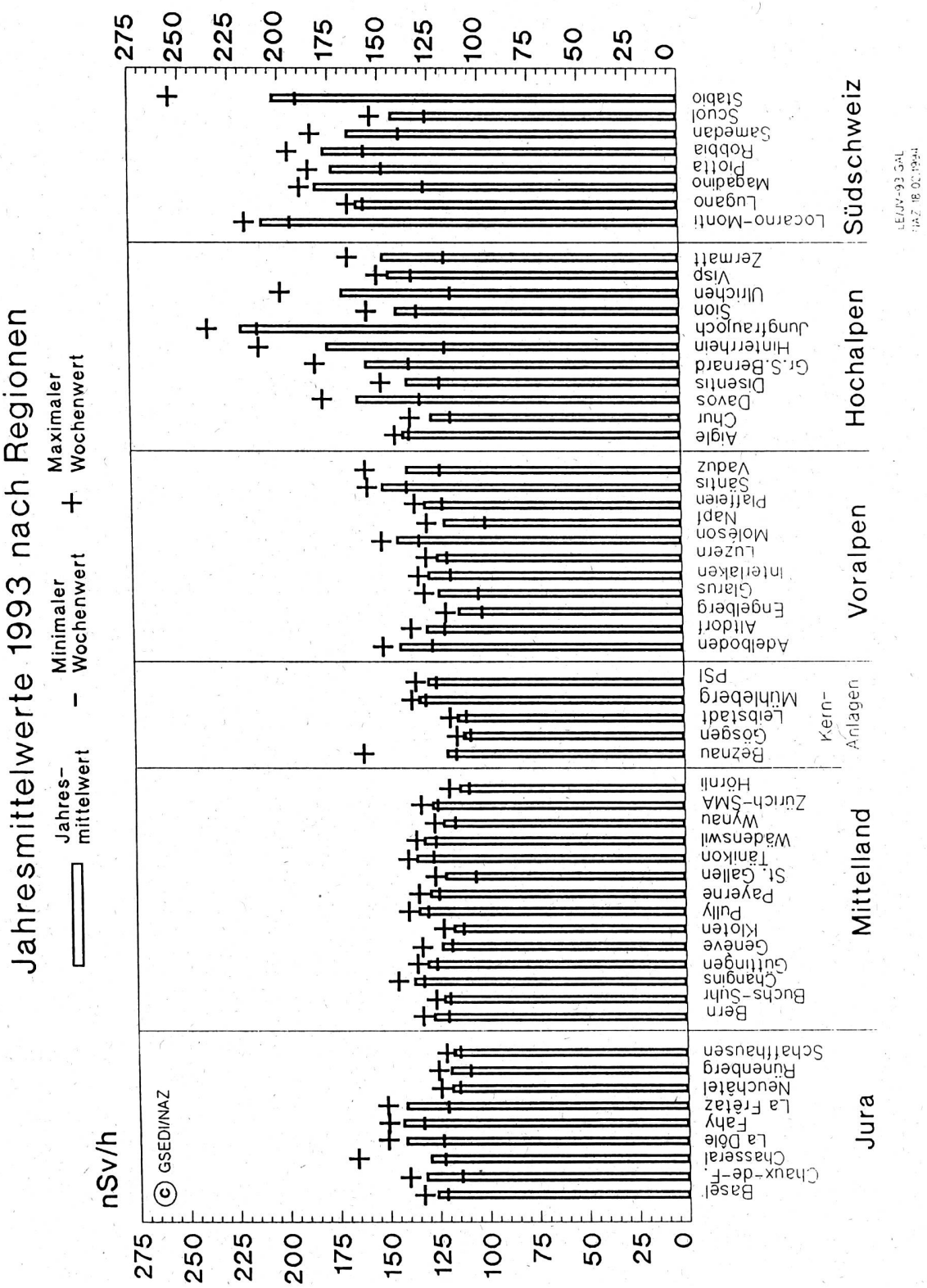
Die Jahresmittelwerte aller Stationen sind wiederum in der Figur 4, jeweils mit dem höchsten und dem tiefsten im Jahre 1993 gemessenen Wochenmittelwert, dargestellt.

Figur 3:
Stationen in Gebieten, die von radioaktiven Niederschlägen nach dem Unfall in Tschernobyl stark betroffen waren, zeigen eine kontinuierliche, deutliche Abnahme der Ortsdosisleistung. Diese Abnahme entspricht der Reduktion des künstlichen Anteils der Strahlung (hauptsächlich durch das Eindringen der langlebigen Radionuklide in tiefere Bodenschichten bedingt). In der Graphik ist der Verlauf der Erfahrungswerte der Jahre 1988 bis 1993 für die Orte Lugano und Hinterrhein dargestellt.



Figur 4:

In der Schweiz variiert die durchschnittliche Ortsdosisleistung an den Standorten der NADAM-Sonden zwischen ca. 110 und 225 nSv/h. Diese Unterschiede haben folgende Ursachen: Der Anteil der natürlichen Strahlung ist nach Art und Zusammensetzung des Bodens örtlich verschieden, und die Intensität der kosmischen Strahlung nimmt mit der Höhe zu. Der künstliche Beitrag durch den Tschernobylausfall und den Atombombentests ist heute praktisch vernachlässigbar.



3.8.4. In- und ausländische Messnetze

Inländische Messnetze:

Ende 1993 wurde das Messnetz für die Überwachung der Dosisleistung in der Umgebung der Kernkraftwerke MADUK durch die Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen in Betrieb genommen. Dieses Netz mit etwa 20 Messonden pro KKW-Standort ergänzt das NADAM-Netz, das pro KKW-Standort jeweils nur eine Sonde aufweist. Bei einem Störfall erlaubt MADUK eine rasche Beurteilung der radiologischen Lage in der näheren Umgebung des betroffenen Kernkraftwerks und schliesst damit eine Lücke.

Der Einsatz von mobilen, mit dem EG 90 (Automess 6145 AD2) ausgerüsteten Equipen, ist aber weiterhin vorgesehen, um zu einem späteren Zeitpunkt oder in weiter entfernten Gebieten vom Standort des KKW gezielte Messungen durchzuführen. Für grossräumige, ergänzende Messungen können die Atomwarnposten, die über das gleiche Messgerät verfügen, kurzfristig aufgeboten werden. Mit den Atomwarnposten finden periodisch verschiedene Tests statt mit dem Ziel, bis Ende 1996 für alle Standorte und für jeden Monat über eine Messung der jeweils aktuellen externen Strahlung zu verfügen. Diese Messungen dienen als Grundlage für die Beurteilung der Messresultate in einem Ereignisfall.

Ausländische Messnetze:

In verschiedenen europäischen Ländern wurden in den letzten Jahren ebenfalls automatische Messnetze in Betrieb genommen. Ein rascher Datenaustausch zwischen diesen Netzen ermöglicht bei einer grossräumigen Verstrahlung eine frühzeitige Abschätzung der Auswirkungen auf das eigene Land. Erste Schritte für einen Datenaustausch mit den beiden Nachbarländern Frankreich und Deutschland sind bereits erfolgt. So werden in Frankreich bereits seit Oktober 1992 die Messwerte einzelner NADAM-Stationen auf MINITEL (entspricht unserem Videotext) täglich publiziert. Der Messwertvergleich der beiden Netze TELERAY und NADAM erfolgt in Payerne, wo je eine Sonde am gleichen Standort betrieben wird. Mit Deutschland wurden erste konkrete Schritte unternommen, um einen raschen umfassenden Datenaustausch zu realisieren. Geplant ist, dass bis Ende 1994 Daten der Ortsdosisleistung ausgetauscht werden. Der entsprechende Vergleich des schweizerischen und deutschen Netzes erfolgt auf dem Schauinsland bei Freiburg i. Br., wo Ende 1993 eine NADAM-Sonde in Betrieb genommen wurde.

3.8.5. Neue Messgrössen für die Ortsdosisleistung

Mit der neuen Strahlenschutzverordnung werden in der Schweiz die inzwischen international anerkannten neuen Messgrössen für die Ortsdosisleistung eingeführt. Diese Grössen basieren auf Empfehlungen der *International Commission on Radiation Units and Measurements* (ICRU). Damit auch in der deutschen Übersetzung einheitliche Begriffe verwendet werden, wird die neue Strahlenschutzverordnung die Begriffsdefinitionen vom Deutschen Institut für Normung (DIN) übernehmen. Danach lautet die neue Messgrösse: Umgebungs-Äquivalentsdosis oder kurz H*(10). Gemessen wird diese Grösse in der Einheit Sievert (Sv), bzw. Sv/h. Sie ersetzt die alte Grösse Ionendosis, die in Röntgen (R) gemessen wurde.

3.8.6. Vergleichbarkeit der Messresultate

Die automatischen Messnetze (NADAM und MADUK) wurden für die Alarmierung bei erhöhter Strahlung konzipiert. Für diese Aufgabe sind in erster Linie die relativen Schwankungen von Bedeutung, die eine Abweichung der Werte vom Erfahrungsbereich aufzeigen. Die absoluten Werte der Strahlung spielen für die Ermittlung von Abweichungen / Erhöhungen eine untergeordnete Rolle. Hingegen sind sie von Bedeutung beim direkten Vergleich von unabhängigen Messnetzen mit unterschiedlichen Messgeräten.

Seit längerer Zeit ist bekannt, dass die NADAM-Sonden systematisch etwas zu hohe Werte messen. Deshalb wurden durch das Paul Scherrer Institut 1993 Messungen mit mehreren NADAM-Sonden und weiteren in der Schweiz häufig verwendeten Messgeräten durchgeführt, um die Ursachen quantitativ zu erfassen. Dabei stellte sich heraus, dass die NADAM-Sonden einen relativ hohen apparativen Nulleffekt in der Grössenordnung von 20 nSv/h aufweisen. Es ist auch bekannt, dass Geiger-Müller-Zählrohre gegenüber kosmischer Strahlung eine höhere Empfindlichkeit aufweisen. Dieser Effekt führt zu einer zusätzlichen Erhöhung der Messwerte von etwa 20 nSv/h. Ein Vergleich mit der internationalen Praxis zeigt, dass der apparative Nulleffekt bei den Messresultaten berücksichtigt wird, nicht aber die Korrektur der Überbewertung der kosmischen Strahlung.

Für das Ende 1993 in Betrieb genommene Netz MADUK wurden die Sonden gleich von Beginn weg für die Messgrösse H*(10) kalibriert. Die MADUK-Daten werden zur Zeit nicht korrigiert, wobei der apparative Nulleffekt der MADUK-Sonden mit rund 5 nSv/h wesentlich kleiner ausfällt als bei den NADAM-Sonden.

Die neue Kalibrierung für H*(10) soll auch für die NADAM-Sonden in Zukunft gelten. Diese neue Kalibrierung hat aber praktisch keinen Einfluss auf die publizierten Werte. Der Entscheid, welche Korrekturen bei der Publikation der NADAM-Daten berücksichtigt werden sollen, wird erst Ende 1994 gefällt, wenn zusätzliche NADAM-Sonden auf ihren apparativen Nulleffekt geprüft wurden und beim Betrieb von MADUK genügend Erfahrungen gewonnen werden konnten.

3.9. AERORADIOMETRISCHE AUFNAHMEN IN DER UMGEBUNG DER SCHWEIZERISCHEN KERNANLAGEN

G. Schwarz, E. Klingelé, L. Rybach

Forschungsgruppe Geothermik und Radiometrie, Institut für Geophysik der ETH
Hönggerberg, 8093 ZÜRICH

3.9.1. Zusammenfassung

Seit 1989 werden von der Forschungsgruppe Geothermik und Radiometrie des Institutes für Geophysik der ETH-Z aeroradiometrische Messungen in der Umgebung der schweizerischen Kernanlagen im Auftrag der Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen (HSK) durchgeführt. Mit den jährlich stattfindenden Helikopterflügen wird die Umgebung der schweizerischen Kernkraftwerke und des Paul Scherrer-Institutes aerogammaspektrometrisch vermessen. Die Messungen dienen der Erweiterung der nuklearen Beweissicherung sowie als Vergleichsbasis bei allfälligen Verstrahlungsfällen.

Im Jahre 1993 standen neben Verbesserungen am Messsystem (Navigation, Stromversorgung) vor allem der ausgiebige Praxistest des 1992 grundlegend erneuerten Messsystems auf dem Programm. Zusätzlich zur jährlichen Vermessung der Umgebung der schweizerischen Kernanlagen wurde die natürliche Hintergrundstrahlung des Schweizer Mittellandes während der Hin- und Rückflüge von der Basis in Belp/BE aus zu den Kernanlagen quasi als Nebenprodukt der Messflüge erfasst. Diese Anwendung wurde 1993 wegen der vollen Verfügbarkeit des Satellitenpositionierungssystems GPS erstmals möglich.

Zusätzlich wurden wiederum Mitarbeitern der beteiligten Stellen (HSK, SUeR, ETH-Z, NAZ) geschult und ein Suchflug nach einer radioaktiven Quelle durchgeführt.

3.9.2. Messverfahren

Helikoptermessungen erlauben die schnelle und flächendeckende Erfassung der künstlichen und natürlichen Radioaktivität des Bodens. Die Messungen erfolgen mit einem hochempfindlichen 4x4x16 Zoll Natriumjodid-Detektor mit einem Gesamtvolumen von 16.8 Litern. Solche Geräte wurden ursprünglich für die Erfassung natürlicher Radionuklide, insbesondere Kalium-40 und die Nuklide der Uran/Radium- und Thoriumzerfallsreihen entwickelt. Im vorliegenden Fall steht jedoch die Erfassung der künstlichen, d.h. durch menschliche Aktivitäten verursachte Radioaktivität im Vordergrund. Künstliche Beiträge wurden beispielsweise bei den Kernwaffenversuchen (Caesium-137) oder beim Tschernobylunfall freigesetzt.

Das aeroradiometrische Messsystem wurde 1992 grundlegend erneuert. Damit steht nun ein modernes, wartungsfreundliches System mit einem für einen NaI-Detektor sehr gutem Energieauflösungsvermögen und integrierter Satellitenpositionierung (GPS) zur Verfügung. Neben einigen Detailverbesserungen am Messsystem wurden im Hinblick auf Notfalleinsätze

eine Anzeige der Abweichung von der Sollfluglinie realisiert, um die Navigation zu vereinfachen und damit die Flugsicherheit und die Messgenauigkeit zu erhöhen.

Während des Fluges wird jede Sekunde ein 256 Kanäle umfassendes Gammaspektrum registriert und auf Speicherkarten festgehalten. Dies entspricht bei der durchschnittlichen Fluggeschwindigkeit von 25 m/s einem Messpunktabstand von 25 m auf der Messlinie. Die Flughöhe beträgt 100 m, der Fluglinienabstand 250 m. Die Flüge werden mit einem Ecureuil-Helikopter der HELISWISS AG Belp/BE durchgeführt.

Für die Datenverarbeitung nach dem Flug sowie für die kartographische Darstellung, wurde das integrierte Softwarepaket GAMERO entwickelt. Die Qualitätskontrolle der Messresultate, sowie eine erste Schnellauswertung kann bereits im Feld, unmittelbar nach der Landung des Helikopters erfolgen.

3.9.3. Ergebnisse

Mit Ausnahme des KKG können sämtliche schweizerischen Kernanlagen mit aeroradiometrischen Messungen anhand ihrer Direktstrahlung nachgewiesen werden. Das Strahlungsfeld beschränkt sich auf die Areale der Kernanlagen. In der Umgebung ist keine erhöhte künstliche Radioaktivität nachweisbar.

Beim Paul Scherrer Institut wird die Direktstrahlung der Lagerstätten für radioaktive Komponenten (PSI-West) resp. Abfälle (PSI-Ost) erfasst. Bei den Siedewassereaktoren KKM und KKL, die während der diesjährigen Messkampagne beide nicht in Betrieb waren, wurde keine hochenergetische Gammastrahlung des N-16 festgestellt. Das KKM kann anhand der Direktstrahlung des Komponentenlagers detektiert werden. Das KKL (in abgestelltem Zustand) weist wie das KKB eine sehr geringe Gesamtstrahlung auf.

Die Empfindlichkeit für künstliche Radioaktivität kann mit dem Verhältnis des hochenergetischen zum niederenergetischen Anteil des Spektrums, dem sogenannten "MMGC-Ratio" gesteigert werden. Da zum hochenergetischen Teil des Spektrums praktisch nur die natürlichen Nuklide beitragen, während die künstlichen bevorzugt in den niederenergetischen Teil fallen, ist der "MMGC-Ratio" ein guter Indikator für das Vorhandensein künstlicher Radionuklide. Im "MMGC-Ratio" sind KKL und KKB schwach erkennbar. Das KKG kann aeroradiometrisch überhaupt nicht nachgewiesen werden.

Im Messgebiet KKG konnte erstmals die Bestrahlungsquelle der Kabelwerke Studer nachgewiesen werden. Die Kunststoffe für die Kabelhüllen werden zur Verfestigung mit einer Co-60-Quelle bestrahlt. Durch die starke Abschirmung wird die Direktstrahlung vollständig absorbiert. Trotzdem ist die Quelle anhand der niedrigenergetischen Streustrahlung im MMGC-Ratio schwach erkennbar.

Ausserhalb der umzäunten Areale der Kernanlagen konnte keine erhöhte künstliche Radioaktivität, die nicht durch Tschernobyl oder die Kernwaffenversuche der sechziger Jahre erklärt werden kann, nachgewiesen werden. Der Aktivitätspegel in der Umgebung ist über die letzten fünf Jahre in etwa konstant geblieben.

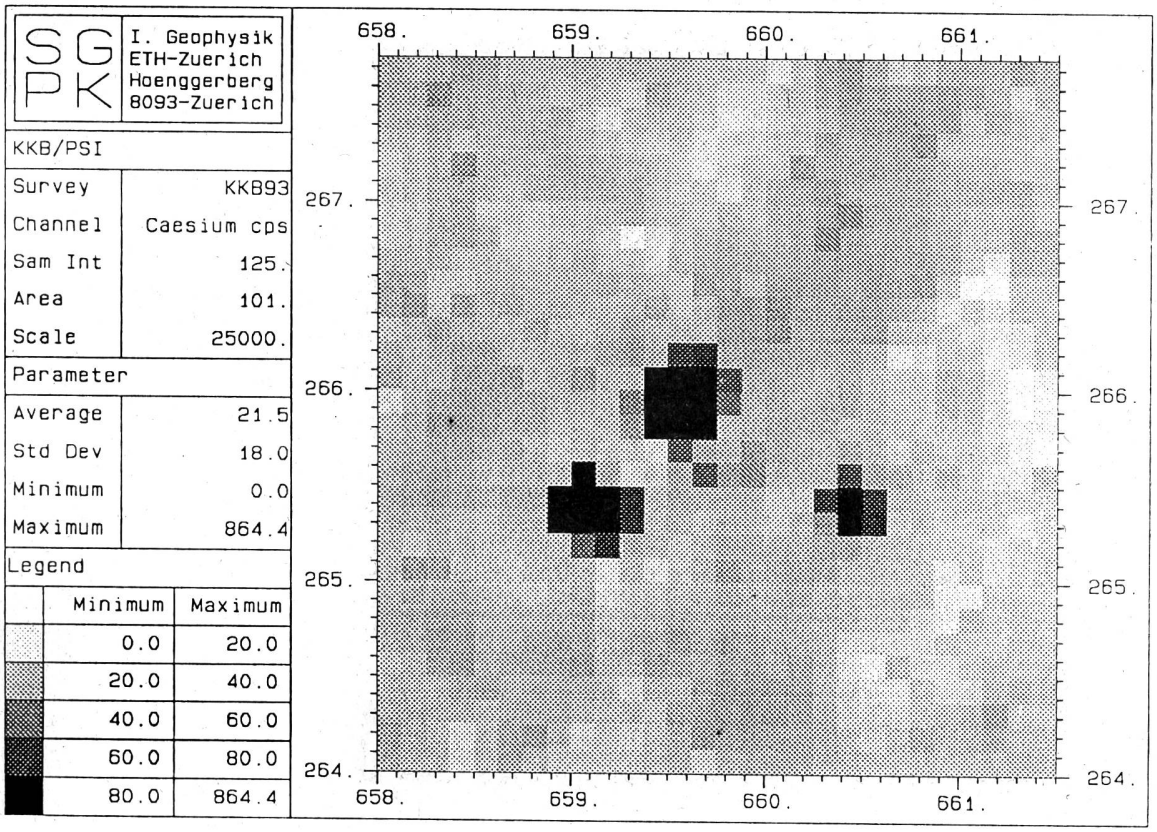
3.9.4. Notfalleinsätze

Ereignen sich radiologische Notfälle wie Transport- und Industrieunfälle mit radioaktivem Material, KKW-Störfälle und Satellitenabstürze, so ist der Einsatz des Messsystems unter der Regie der Nationale Alarmzentrale (NAZ) vorgesehen.

Im Einsatzfall werden die Messflüge mit Militärhelikoptern durchgeführt. Um das Gerät optimal und in nützlicher Frist einsetzen zu können, werden jährliche Übungsflüge durchgeführt. Die Schulung erfolgt für Mitarbeiter der HSK, SUER und NAZ. Dies soll Gewähr bieten, dass im Ernstfall immer eine einsatzfähige Flugequipe zur Verfügung steht.

Um die Leistungsfähigkeit des neuen Messsystems zu verifizieren wurde die Suche nach einer radioaktiven Quelle geübt. Im Messgebiet KKB/PSI wurde eine Cs-137-Quelle mit einer Aktivität von 2.8 GBq (75 mCi) ausgelegt. Das Messgebiet wurde auf den normalen Flugwegen abgeflogen. Dabei konnte die Quelle in der Ortsdosisleistungskarte, der Cs-137-Aktivitätskarte und auch anhand des MMGC-Ratios eindeutig identifiziert werden (siehe Figur; Koordinaten 660450/265450). Die Genauigkeit der Lokalisation betrug etwa ± 50 m. Die beiden anderen Anomalien auf der Karte werden durch die Direktstrahlung der Lagerstätten für radioaktive Komponenten (PSI-West) resp. Abfälle (PSI-Ost) verursacht.

Figur 1: Karte der Zählrate im Cäsiumfenster in der Umgebung des Paul Scherrer Instituts (PSI). Der schwarze Fleck rechts wurde durch die ausgelegte Cs-137-Quelle (Aktivität 2.8 GBq) verursacht. Die anderen beiden Erhöhungen werden durch die Direktstrahlung der Lagerstätten für radioaktive Komponenten (PSI-West) resp. Abfälle (PSI-Ost) verursacht.



3.10. VERHALTEN VON RADIONUKLIDEN AUS DEM KERNKRAFTWERKE MÜHLEBERG IN AARE UND BIELERSEE

A. Albrecht, J. Beer, P. Reichert, A.Lück

EAWAG, Abteilung Umweltphysik, Dübendorf

Zusammenfassung

In Schweizer Kernkraftwerken entstehen Abwässer, die vor allem die Radionuklide ^{60}Co, ^{58}Co, ^{65}Zn und ^{137}Cs enthalten und entsprechend den gesetzlichen Vorschriften an die Aare/bzw. den Rhein abgegeben werden. Ziel der hier vorliegenden Studie ist die Ermittlung des Transportverhaltens dieser Nuklide. Das KKW Mühleberg stellt die erste bedeutende Radionuklidquelle im Aareverlauf dar (Abb. 1). Im Zeitabschnitt vom 1.1.93 bis zum 30.6.93 z.B. gab Mühleberg $2.2x10^9$ Bq ^{60}Co (5.3), $1.5x10^9$ Bq ^{65}Zn (0.67) und $3.4x10^8$ Bq ^{137}Cs (30; Halbwertszeit $T_{½}$; in Jahren ist in Klammern angegeben) ab. Da ^{65}Zn nur unregelmässig abgegeben wird und eine kurze Halbwertszeit aufweist und da ^{137}Cs aufgrund des Tschernobyl Reaktorunfalles nicht eindeutig dem Kernkraftwerk zugeschrieben werden kann, ist ^{60}Co hier von leitendem Interesse.

Mittels eines Flussmodelles können Radionuklidkonzentrationen und Ankunftszeiten für die ein- bis zweiwöchentlich stattfindenden Abwasserabgaben für Lokalitäten unterhalb der Eingabestelle berechnet werden. γ-Spektrometrie an Wasser- und Partikelproben erlaubt die Bestimmung der Anteile von Radionukliden, die an suspendierten Partikeln gebunden oder in gefiltertem bzw. ungefiltertem Wasser auftreten. Die bekannte Affinität der Radionuklide für in Suspension befindliche Partikel und die Abhängigkeit der Adsorption von der Partikelgrösse werden durch Feldversuche bestätigt. Zusätzlich zeigen die Ergebnisse, dass ein beachtlicher Anteil von ^{60}Co (etwa 40 ± 20%) in Lösung bleibt bzw. an Partikel < 0.2 μm gebunden ist. Dies kann erklärt werden durch negative Komplexierung von Co, vermutlich durch organische Liganden. Die Ermittlung des durch Partikel gebundene ^{60}Co erlaubt eine Abschätzung des Anteils, der in Ruhigwasserzonen (Staustufen oder Seen) durch Sedimentation dem fliessenden System entzogen wird. Neben den anorganisch-klastischen Partikeln spielen auch biologische Faktoren eine Rolle, was sich durch beachtliche Adsorption in durch biologische Partikel dominierten Flussabschnitten äussert. Die Staustufen zwischen dem KKW Mühleberg und Hagneck besitzen im Vergleich zum Bielersee ein bewegtes hydraulisches Milieu, in welchem hauptsächlich gröbere Partikel zur Ablagerung gelangen. Die Aktivitäten in diesen Sedimenten wurde in Sedimentkernen bestimmt und erweisen sich als recht gering (zumeist < 10 Bq/kg). Der Gesamtanteil des in diesen Sedimenten abgelagerten ^{60}Co schätzen wir auf < 10%. Demzufolge erreichen > 90% der Co-Radionuklide den Bieler See. Im Bieler See variiert der Anteil des im Sediment abgelagerten ^{60}Co saisonal. Im Sommer wird maximal 50%, im Winter deutlich mehr in Sedimenten zurückgehalten.

Methoden

Radionuklide wurden mittels γ-Spektroskopie (a) in unfiltrierten und (b) filtrierten Wasserproben und (c) in suspendierten und (d) sedimentierten Partikeln gemessen. Die Radionuklide in Wasserproben (a) und (b) müssen ausgefällt bzw. aufkonzentriert werden. Dazu wird im Gelände der Wasserprobe eine saure Trägerlösung hinzugefügt, welche mit Eisenchlorid und bekannten Konzentrationen von Salzen der zu bestimmenden Metalle versetzt ist. Im Labor werden durch Neutralisation Metallhydroxide gefällt, was zur Konzentration der Radionuklide führt. Die Ausbeute wird durch emmisionsspektroskopische Analyse (ICP-AES) der stabilen Metalle bestimmt.

Die Abtrennung der suspendierten Partikel (c) aus der Wasserprobe kann mittels In-Situ Filtration oder Durchflusszentrifugierung erreicht werden. Die In-Situ Vorrichtung ist ausgestattet mit vier Filtern, von denen die kleinste benutzte Maschenweite 1 μm ist. Mittels Durchflusszentrifuge können z.T. noch Partikel < 0.2 μm abgetrennt werden. Partikel aus Fluss- und Seesedimenten (d) werden gezogenen Kernen entnommen.

Ergebnisse

a) Fliessverhalten und Durchmischung

Zur Durchführung von Feldkampagnen an Tagen der Abwasserabgabe (koordinierte Abgaben) ist es unabdingbar, die Ankunftszeiten und die Radionuklidkonzentrationen der markierten Welle zu modellieren. Dazu bedienen wir uns des Programms AQUASIM entwickelt von P. Reichert (EAWAG Informatik). Als Inputdaten müssen Flussquerprofile, Koten,

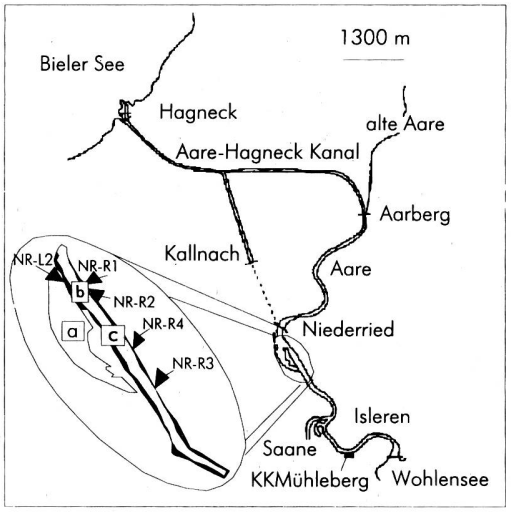


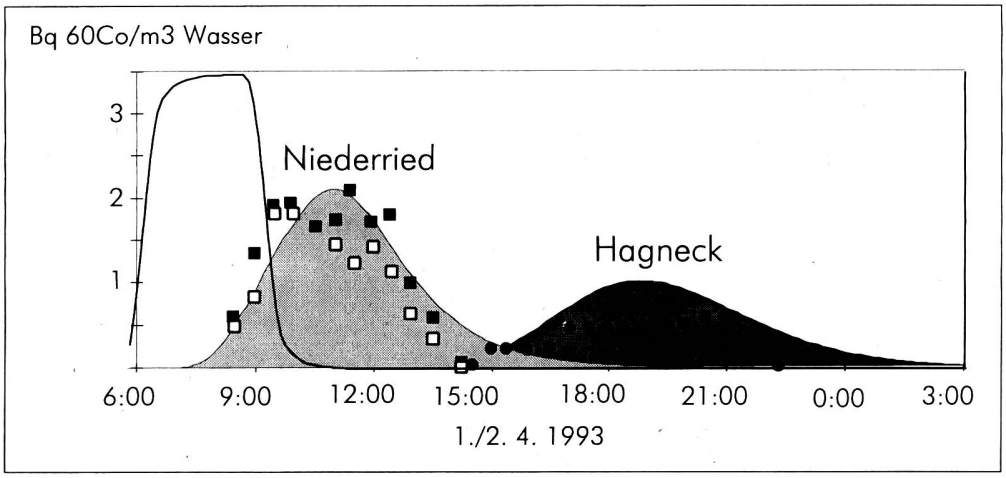
Abb. 1:

Übersichtskarte des Aaregebietes zwischen Wohlensee und Bieler See zusammen mit den wichtigsten Probennahmenstellen. Sedimentkerne, die in Niederried gezogen wurden sind im vergrösserten Ausschnitt mit NR bezeichnet.

Stauhöhen, Dispersions- und Reibungskoeffizienten und Abflussmengen der zu modellierenden Fliesstrecken eingegeben werden. Ebenfalls müssen Konzentration, Volumen und Zeitpunkt der Abwasserabgabe bekannt sein. Abbildung 2 zeigt als Beispiel den Vergleich von modellierten und gemessenen Konzentrationen des Feldversuchs vom 1./2.4.1993.

Auf der Ordinate sind die Gesamtkonzentrationen von ^{60}Co in Bq/m^3 aufgetragen, wobei es sich sowohl um gelöstes als auch adsorptiv gebundenes ^{60}Co handelt. Die Zeit ist an der Abszisse aufgetragen. Der Abb. 2 kann man den zeitlichen Konzentrationsverlauf an verschiedenen Lokalitäten entnehmen. Die durchgezogene schwarze Kurve gibt die Aktivität von ^{60}Co in der Aare unmittelbar nach dem Eintrag an. Mit zunehmender Entfernung verringert sich die Konzentration durch Längs- und Querdispersion, Vermischung mit unmarkierten Nebenflüssen (hier: Saane) und durch Sedimentation nuklidbeladener Partikel, verschiedene Faktoren, die das Modell berücksichtigen kann.

Abb. 2: Vergleich zwischen modellierten und gemessenen Ankunftszeiten und Konzentrationen für die koordinierte Abwasserabgabe vom 1./2.4.93, Niederried links (offene Quadrate), Niederried rechts (schwarze Quadrate), Hagneck (schwarze Kreise).



Aus den dargestellten Daten für den Stausee Niederried und Hagneck ist ersichtlich, dass modellierte und gemessene Durchlaufzeiten und Konzentrationen der markierten Welle gut übereinstimmen, obwohl im Modell der über Kallnach (Abb. 1) verzweigte Radionuklidanteil und dessen Durchmischung mit der Aare Probleme bereitet. Im Modell wurde die Sedimentation künstlich auf 0 gesetzt. Die gute Übereinstimmung zwischen modellierten und gemessenen Maximalaktivitäten zeigen, dass nur geringe Mengen des ^{60}Co in den Staustufen vor dem Bielersee sedimentiert werden.

b) Radionuklidtransport

Der Radionuklidtransport tritt im Gewässer in zwei Formen auf, (1) gelöst und (2) an suspendierten Partikeln gebunden. Als gelöst definieren wir denjenigen Anteil, der mittels Durchflusszentrifuge oder In-Situ Filtration nicht abgetrennt werden kann. Dass diese Fraktion neben ionisch gelösten Radionukliden ebenfalls an Kolloiden gebundene Radionuklide beinhaltet spielt für praktische Anwendungen keine Rolle, da der kolloidal gebundene Anteil, wie auch der ionisch gelöste Anteil vom Wasser transportiert wird und nicht sedimentiert.

Zur Abschätzung des an Partikeln gebundenen Radionuklidanteils ist es nötig, das Korngrössenspektrum der von der Aare transportierten Partikel zu analysieren. Solche Spektren sind abhängig vom Einzugsgebiet, von der Abflussmenge und von der Fliessgeschwindigkeit, die

saisonalen und lokalen Schwankungen unterliegen. Direkte Proportionalitäten, wie z.B. zwischen Abflussmenge und Partikelfracht werden jedoch durch Saane/Aare Inhomogenitäten z.T. verwischt. Am 1./2. 4.93 als der Gesamtabfluss von Aare und Saane 120m^3/s betrug, wurden die geringsten Partikelkonzentration von < 2 g/m^3 gemessen, maximale Konzentrationen von > 30 g/m^3 wurden am 9.9.93 beobachtet, als der Abfluss auf 200m3/s anstieg. Neben dieser zeitlichen Dynamik existieren lokale Variationen der Partikelkonzentration. Ein Vergleich der Partikelkonzentrationen von Niederried und Hagneck vom 1./2. 4. und 9.9.93 macht dies deutlich. In Niederried ist der Anteil an groben Partikeln (> 40 bzw. > 50 µm) deutlich grösser. Bei der Korngrössenklasse zwischen 1 und 10 µm findet man in Hagneck die höheren Anteile. Demzufolge wird in den Staustufen von Aarberg und Hagneck ein Teil der groben Partikel sedimentiert.

In einem nächsten Schritt sollen Radionuklidkonzentrationen an Partikeln unterschiedlicher Korngrösse zusammengefasst und diskutiert werden. Der hier ausschlaggebende Faktor ist das Verhältnis Oberfläche zu Volumen, welches bei gleicher Mineralform mit abnehmender Grösse zunimmt. Die Ergebnisse der In-Situ Filtration vom 9.9.1993 in Hagneck bestätigen dies, da mit abnehmender Korngrösse die Aktivitäten von ^{60}Co und ^{65}Zn ansteigen (z.B. ^{60}Co 162 Bq/kg für 1-10 µm Fraktion und 46 Bq/kg für Partikel > 45 µm). Bei den Messungen in Niederried vom 17.12.92 und 9.9.93 wird hingegen von der mittleren zur grössten Korngrössenklasse ein Anstieg der Partikelaktivitäten beobachtet. Dies kann nicht durch Adsorption an mineralisch/klastischen Partikeln erklärt werden. Unsere Annahme ist daher eine verstärkte Adsorption an biologischen Partikeln. Anreicherungsfaktoren von 600 für die Alge Chlorella und 4000 für die Wasserpflanze Elodea zeigen dies deutlich; (Amiard-Triquet, 1978; Water, Air, and Soil Pollution **9** 475-489). Das Phänomen der Radionuklidanreicherung höherer Korngrössenklassen ist in Hagneck nicht ausgeprägt, da bis hier eine völlige Durchmischung zwischen der stark klastisch getrübten Saane und der mehr biologisch bestimmten Aare stattgefunden hat und da der biologische Faktor, besonders bei Saanepartikeldominanz, verloren geht. Der organische Phosphatanteil des Gesamtphosphors erreicht im Aareabschnitt vor der Saanemündung Werte bis 30%, während er bei Saanepartikeldominanz in Hagneck vernachlässigbar ist. Rechtsseitig in Niederried, wo selbst bei starker Wasser- und Partikelführung die Saane nur eine untergeordnete Rolle spielt, ist die biologisch dominierte Aare ausschlaggebend. Lediglich am 1./2. 4. 1993, als recht vollständige Durchmischung von Saane und Aare im Wehrbereich von Niederried beobachtet wurde (Abb. 2) wirkte sich auch rechtsseitig der anorganisch-klastische Einfluss der Saane deutlicher aus.

Der in Lösung befindliche Anteil von Radionukliden sei wie folgt definiert:

$$\%\ \text{Lösung} = \frac{[\text{Bq}/\text{m}^3]\ \text{Lösung}}{[\text{Bq}/\text{m}^3]\ \text{gesamt}} \times 100, \quad (1)$$

In Tabelle 1 sind die durch Gleichung (1) ermittelten Lösungsanteile zusammengefasst. Die starken Schwankungen sind damit in Zusammenhang zu setzen, dass die bestimmenden Faktoren, insbesondere Partikelkonzentration, Korngrösse und Art von Fluss zu Fluss, von Lokalität zu Lokalität im gleichen Flusssystem als auch zeitlich am gleichen Ort variieren.

Tabelle 1: Zusammenfassung von % Lösungsanteilen (siehe Abb. 1 für Lokalitäten)

Datum	Ort	% Lösung ^{60}Co	+/- [%]
1.4.93	Niederried	44	40
9.9.93	Niederried	56	39
1.4.93	Hagneck	81	10
9.9.93	Hagneck	34	11
10.9.93	Bieler See Aaredelta	10	
15.9.93	Aare bei Biel	39	
24.8.93	Aare bei Gösgen	51	
16.8.93	Aare bei Klingnau	77	

Unsere Ergebnisse zeigen, dass der Adsorptionsvorgang weniger eine Funktion der Zeit (bzw. des Ortes) als eine Funktion stark schwankender Faktoren, wie Partikelkonzentration und Partikelart ist. Diese erklären sich durch wechselnde Dominanz von Saane und Aare.

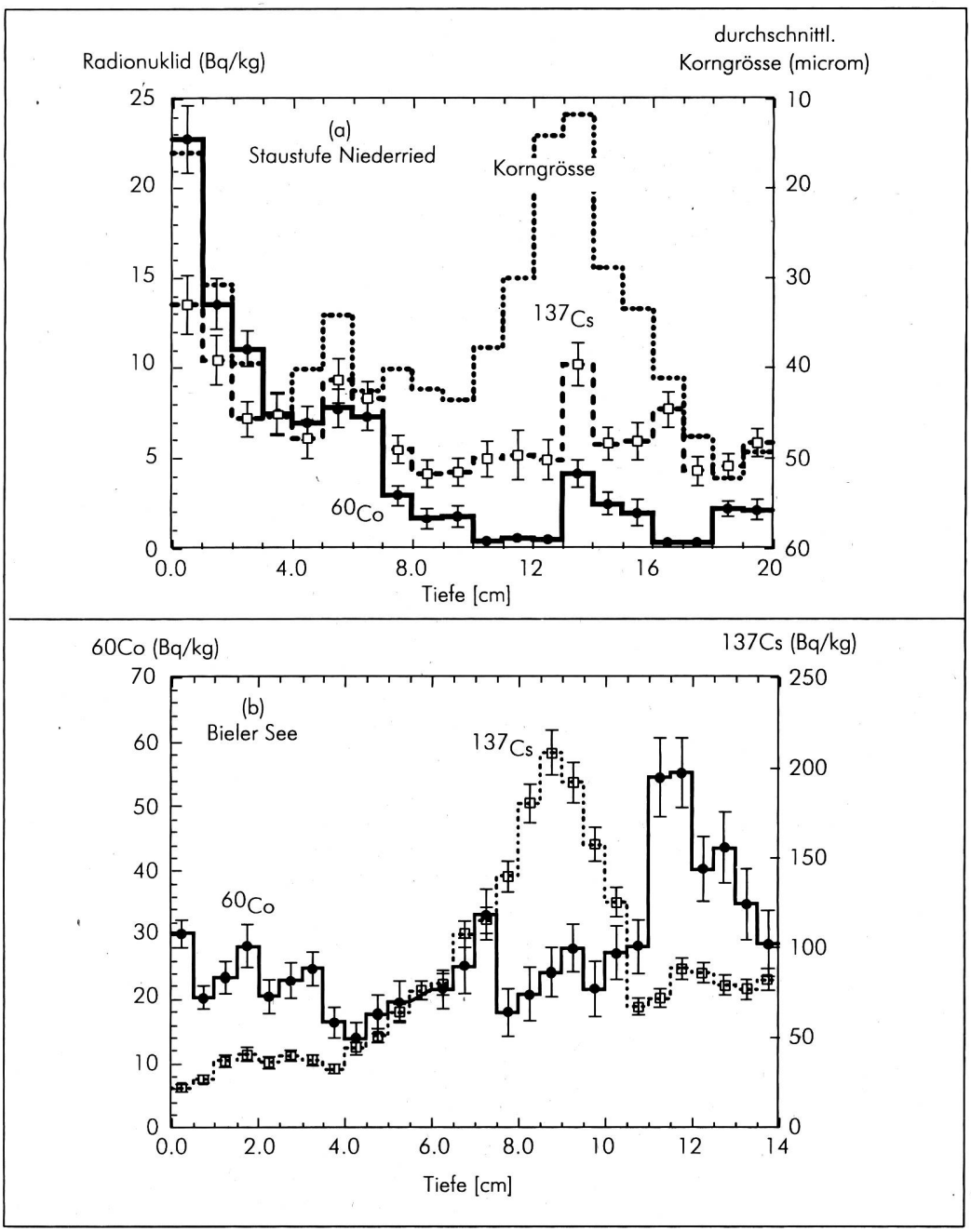
Die in Tabelle 1 aufgelisteten Angaben über % Lösung hängen sehr stark von der Präsenz biologischer Liganden ab, welche Co negativ komplexieren und damit in Lösung halten.

c) Radionuklidsedimentation

Die Radionuklide können dem fliessenden System durch Sedimentation der Adsorber entzogen werden. Im Niederrieder Stausee wurden insgesamt 5 Kerne und aus dem Bieler See vorerst ein Vergleichskern gezogen. Bereits die sedimentologische Auswertung der Stauseekerne zeigt die lokale als auch zeitliche Dynamik dieses Sedimentationsbeckens. Folgende Faktoren spielen eine Rolle und müssen in Betracht gezogen werden: Die Abflussmenge variiert zwischen 40m^3/s in den Wintermonaten und mehreren hundert m^3/s während des Frühjahrs und der Sommerhochwasserperioden. Tägliche Abflussänderungen (z.B. Saane 6 bis 130 m^3/s) basieren auf Einflussnahme durch Wasserkraftwerke, die z.T. den Strombedarf in Spitzenzeiten abdecken. Diese extremen Variationen verändern das hydraulische Regime und damit das Sedimentations- bzw. Erosionsgeschehen. Innerhalb der Staustufe können 3 Zonen unterschieden werden. (a) die Ruhigwasserzone des Todarmbereichs, (b) die Bereiche geringerer Fliessgeschwindigkeiten in den Randzonen und (c) die Zone mit maximalen Fliessgeschwindigkeiten (Abb. 1).

Abb. 3:

^{60}Co (gefüllte Kreise) und ^{137}Cs (offene Quadrate) als Funktion der Tiefe und der Korngrösse in Sedimentkernen. In den Sedimenten des Staussees Niederried (a) variieren beide Radionuklide in Abhängigkeit von der Korngrösse und damit der Fliessgeschwindigkeit der Aare. Alterskorrekturen sind nicht berechnet, da Altersbestimmungen aufgrund von Erosionsereignissen schwierig sind. Die Variationen von ^{60}Co (alterskorrigiert) mit der Tiefe im Bieler See (b) deuten saisonale Schwankungen an, die z.Z. untersucht werden. Das Maximum von ^{137}Cs ist auf den Reaktorunfall von Tschernobyl (1986) zurückzuführen und kann zur Altersdatierung herangezogen werden.



Die durchschnittliche Korngrösse steigt von Zone a bis Zone c deutlich an. Abb. 3 (oben) zeigt Messungen eines Kerns aus Zone b. Dargestellt sind neben Informationen zur Korngrösse Aktivitäten von ^{137}Cs und ^{60}Co. Korngrössenvariationen gelten als Indikator für das hydraulische Regime. Grobe Partikel lagerten sich während Hochwasserperioden ab (z.B. Frühjahr/Sommer), während feine Partikel während Niedrigwasser (z.B. Wintermonate) zur Ablagerung gelangten. Leider ist es wegen Erosionsereignissen nicht möglich, diese jährlichen Zyklen auszuzählen um damit die Sedimente eindeutig zu datieren. Ein Vergleich der Radionuklidaktivitäten mit denen eines Kerns aus dem Bieler See (Abb. 3 unten), wo solche Erosionsereignisse nicht auftreten, zeigt deutlich die Unterschiede. Im Bielersee nimmt die Aktivität von ^{137}Cs mit der Tiefe kontinuierlich zu, um dann im Bereich von 1986 ein Maximum zu zeigen, welches durch den Reaktorunfall von Tschernobyl verursacht wurde. ^{137}Cs und ^{60}Co Aktivitäten variieren in Kernen vom Stausee Niederried hauptsächlich als Funktion der Korngrösse. Im Bielersee sind die Variationen saisonal, wobei im Sommer ein deutlich geringerer Anteil des eingespiesenen ^{60}Co als im Winter sedimentiert wird.

Zur groben Abschätzung der Sedimentationsrate im Stausee Niederried, für den Sommer/Herbst 1992 (Datum der Kernstechung = 14.10.1992) kann die Aktivität des kurzlebigen natürlichen Radionuklides ^{7}Be (T1/2=53.4 Tage) herangezogen werden. Unter Benutzung der ^{60}Co Konzentrationen und der Einteilung in Zonen kann der Gesamtanteil des in den ersten 2 cm Sediment gebundenen ^{60}Co abgeschätzt werden. Da dies einem Zeitraum von etwa 3 Monaten entspricht und die Gesamtabgabe von ^{60}Co dieses Zeitabschnitts bekannt ist, kann der Anteil des im Niederrieder Stausees sedimentierten ^{60}Co mit < 5 % abgeschätzt werden.

3.11. CHERNOBYL ^{137}Cs IN LAKE GENEVA AND ITS WATERSHED

J. Dominik Centre d'études en sciences naturelles de l'environnement (CESNE)
et Institut F.-A. Forel, Université de Genève, 10 rte de Suisse, 1290 Versoix

3.11.1 Introduction

The fate of radioactive fallout originating from the Chernobyl catastrophe has extensively been studied in Europe in the last eight years. Also in Switzerland, a considerable effort has been done to measure the extent of contamination of the environment and to determine the radionuclide transfer path to man. Despite of a large amount of data from different parts of the environment (atmosphere, soil, surface water, vegetation, animals, food, man), relatively few work has been done on regional environmental systems. This paper presents results of investigations carried on between 1986 and 1991 in the region of Lake Geneva. The aim of this paper is to describe the behaviour of Chernobyl ^{137}Cs ($T_{1/2}$ = 30.1 years) in different sub-systems (soil, river, lake, sediments) and characterise its transfer rates from one compartment to another.

3.11.2 Sampling and methods

Sampling sites of different subsystems in the region of Lake Geneva are shown in fig. 1. Combined dry and wet atmospheric fallout is collected in a polyethylene container (diameter 57 cm, height 90 cm) mounted on a fixed platform situated at Buchillon, about 150 m offshore. Collection and measurement procedures were previously described (Dominik et al. 1987).

Two soil samples (G11, G12) are collected at Gilly (2 km from the lake shore and 9 km from the atmospheric fallout collector at Buchillon), and the other two (SF1, SF2) at Versoix, close to the lake shore, about 28 km east from Buchillon. To minimise a loss or gain by horizontal transport, all samples are collected from flat, non cultivated soils covered by forest (Gilly) or meadow (Versoix). Soil profiles of about 25 cm depth are cut in 2 cm slices in the uppermost 6 cm and usually in 5 cm slices below.

Suspended solids are recovered from rivers by continuous centrifugation according to the method described by Burrus et al. (1989) . Samples were taken in roughly monthly intervals in 1986 and 1987 from two tributaries: the Venoge River and the Aubonne River. Additional samples were taken during floods. Only few samples of suspension from the Rhône River were available for gamma measurements. Details of sampling procedure and treatment have been described by Zhang (1988) and Zhang et al. (1989).

The transport of ^{137}Cs on settling particles has been followed using sediment trap technique. Sediment traps were deployed at the central point of the lake (station SHL2) at 2 to 5 depths in 1986, 1987, and from October 1989 to January 1992. Details of sediment trap technique used in this study are described by Gandais (1989) and Dominik et al. (1993).

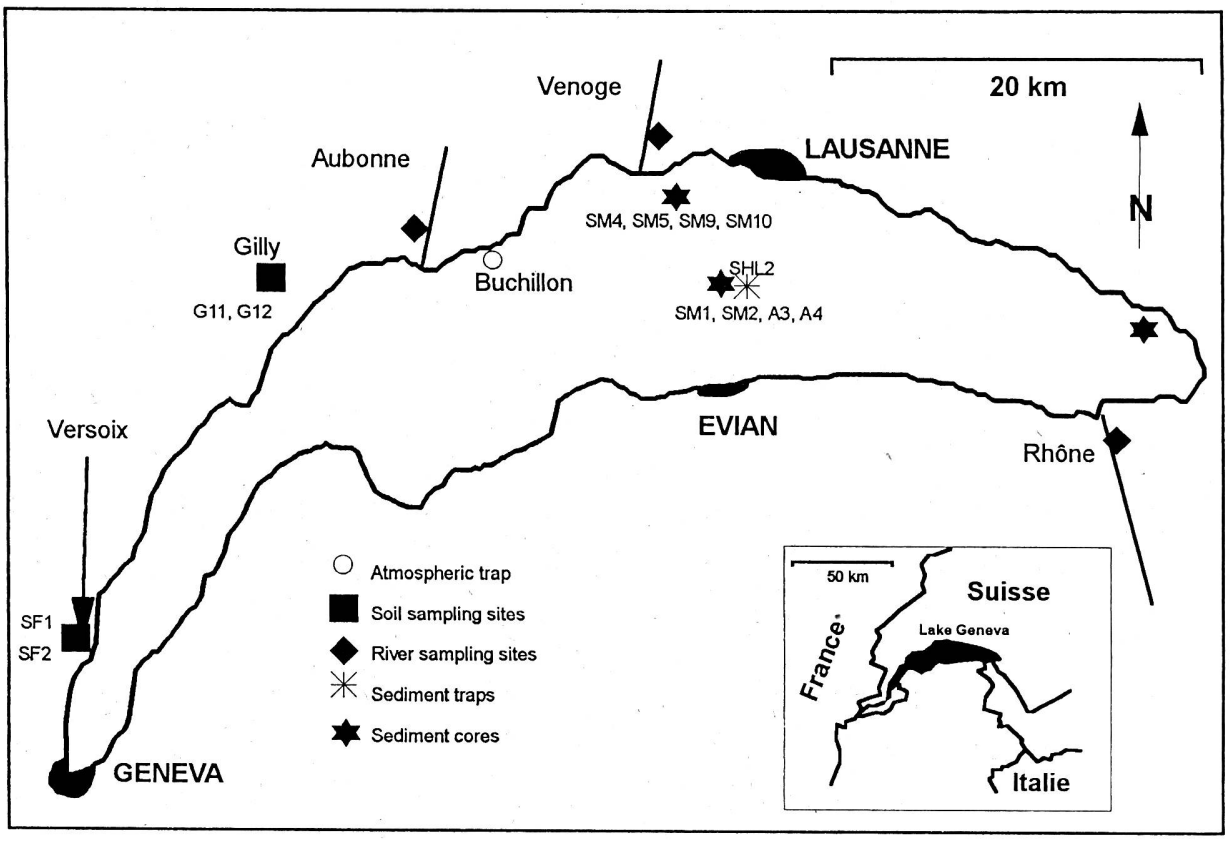


Fig. 1. Sampling sites in Lake Geneva and its watershed.

Vertical profiles of ^{134}Cs and ^{137}Cs were obtained from 9 sediment cores recovered between September 1987 and October 1988. These cores are located in three areas: Central Plain at depth of 309 m (cores SM1, SM2, SHL2A3, SHL2A4), on the northern slope at depth of 132 m (SM4C, SM5B, SM9B, SM10C), and at the NE part of the Rhône delta at depth of 130 m (J17). Cores of the SM series were recovered by the submersible *F.-A. Forel* from the "pillow - hollow" structures of bottom sediments (Dominik et al., 1989,1992).

Radiocesium gamma activities are measured with low background pure Ge or Ge-Li detectors. All samples were measured with well detectors calibrated for counting efficiency with standards kindly provided by P. Santschi (at that time at EAWAG, Dübendorf). This has been done to ensure quantitative comparison with other measurements in Switzerland.

3.11.3 Results

The first sample containing the Chernobyl fallout integrates a time interval between April 26 and May 7, 1986. Further samples were collected in 11 to 40 day intervals till July 9, 1987. The results of ^{137}Cs fallout measurements are shown in fig. 2.

Between April 26 and May 7, 1986, the total (dry + wet) ^{137}Cs fallout amounts to 2257±4.5 Bq/m^2, with additional 233.7±0.7 Bq/m^2 deposited in the following three weeks (May 8 -

May 30, 1986). For the whole period of measurements (April 26, 1986 - July 9, 1987), the ^{137}Cs flux was 2581 Bq/m^2, with 97 % of this activity deposited in May 1986. The measured fallout value agrees fairly well with the estimation in the range of 3000-4000 Bq/m^2 derived from external dose measurements for the northern shore of Lake Geneva (Czarnecki et al. 1986).

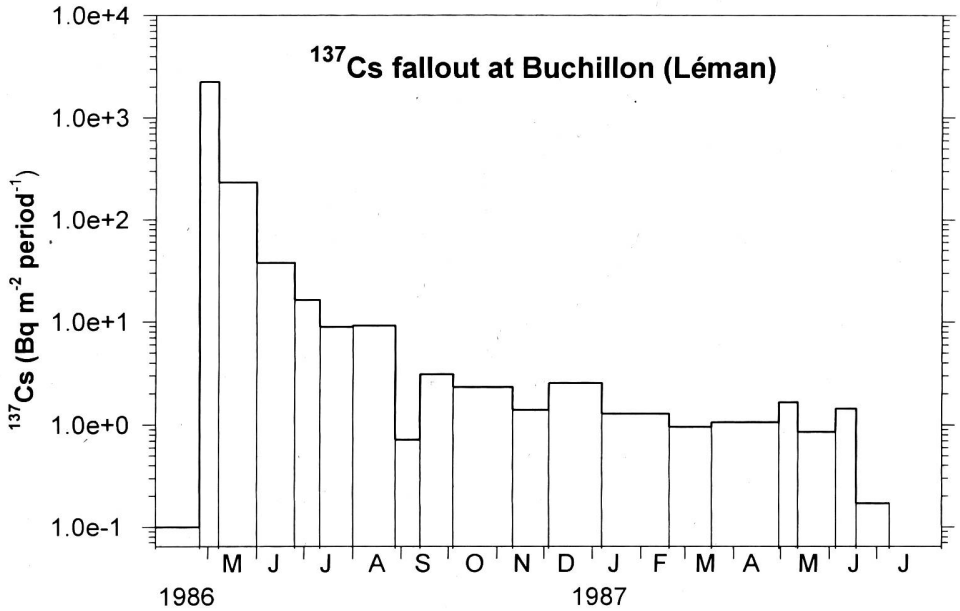


Fig. 2 : Atmospheric fallout as measured at Buchillon, expressed as total activity per square meter and deployment period.

The Chernobyl fallout can be considered as a very short event, in contrast to ^{137}Cs fallout from nuclear tests in the atmosphere, which, due to numerous tests and the transit path through the stratosphere, has been more dispersed in time. The Chernobyl fallout in the region of Lake Geneva amounts to nearly 50% of cumulated fallout originating from nuclear tests during the period 1954-1982, and exceeds the maximum yearly fallout in 1963 by factor 2.5 (Dominik et al. 1987, and Völkle, 1984, pers. comm.)

Soil

Chernobyl ^{137}Cs inventories in soil profiles were evaluated by measurements of ^{134}Cs ($T_{1/2}$ =753 days), assuming $^{134}Cs/^{137}Cs$ activity ratio at the time of fallout equal to 0.5. The results are shown in table 1.

Table 1. Chernobyl ^{137}Cs inventories (kBq/m^2) in soil

Location	Soil profile	Sampling date	^{137}Cs inventory
Gilly	G11	March 31, 1987	1.91±0.05
	G12	May 13, 1987	2.52± 0.13
		mean Gilly	2.21
Versoix	SF1	21 May 1986	4.76±0.16
	SF 2	21 May 1986	3.34± 0.07
		mean Versoix	4.05
		Mean and std of 4 profiles	3.13±1.24

The differences in measured inventories may reflect regional heterogeneity of Chernobyl fallout, strongly dependent on the rain pattern in the first days of May 1986. Smaller, but significant differences exist also between cores sampled at the same location within a distance of few meters. These can possibly be attributed to local micromorphology of surface soil and related preferential accumulation of rain water in micro-depressions. Both types of variability indicate that a large number of soil profiles should be measured to obtain a representative value of fallout for a given region. Despite the observed variability the mean value of fallout from four measured soils (3.13±1.24 kBq/m^2) is close to the direct measurement of fallout at Buchillon (2.4905±0.0005 till May 30,1986).

The mean concentration of Chernobyl ^{137}Cs in top soil layers (1 or 2 cm thick) is 0.44±0.15 Bq/g, which make 92% of total ^{137}Cs concentration. This indicates that ^{137}Cs originating from nuclear test penetrated deeper in soil profile. Consequently the erosional fluxes measured in rivers can safely be considered as derived from Chernobyl fallout.

Rivers

Activity of ^{137}Cs is measured in <63 μm fraction of suspended matter. The activities corrected for decay to Chernobyl fallout day (1 May 1986) are plotted against time in fig. 3.

During the pre-Chernobyl period the ^{137}Cs activity in fluvial suspension was only a few mBq/g. It increased by 2 orders of magnitude in the post-Chernobyl period. The concentrations and their evolution are similar for the Aubonne and the Venoge Rivers with a rapid rise in May 1986 and a clear decrease in 1987. The concentration decrease can roughly be approximated by an exponential function $C(t) = C_o*\exp(-bt)$ having the following parameters: C_o= 653 mBq/g, b = 0.003 day^{-1}, and correlation coefficient r= 0.83.

Concentrations of ^{137}Cs in suspended matter of the Rhône River show a different evolution. They increase moderately after the Chernobyl fallout and continue to rise throughout the summer 1986. Unfortunately, data from 1987 are not available. Relatively low concentrations in May, July and August may result from dilution by non-soil material transported by this river during seasonal glacial melt.

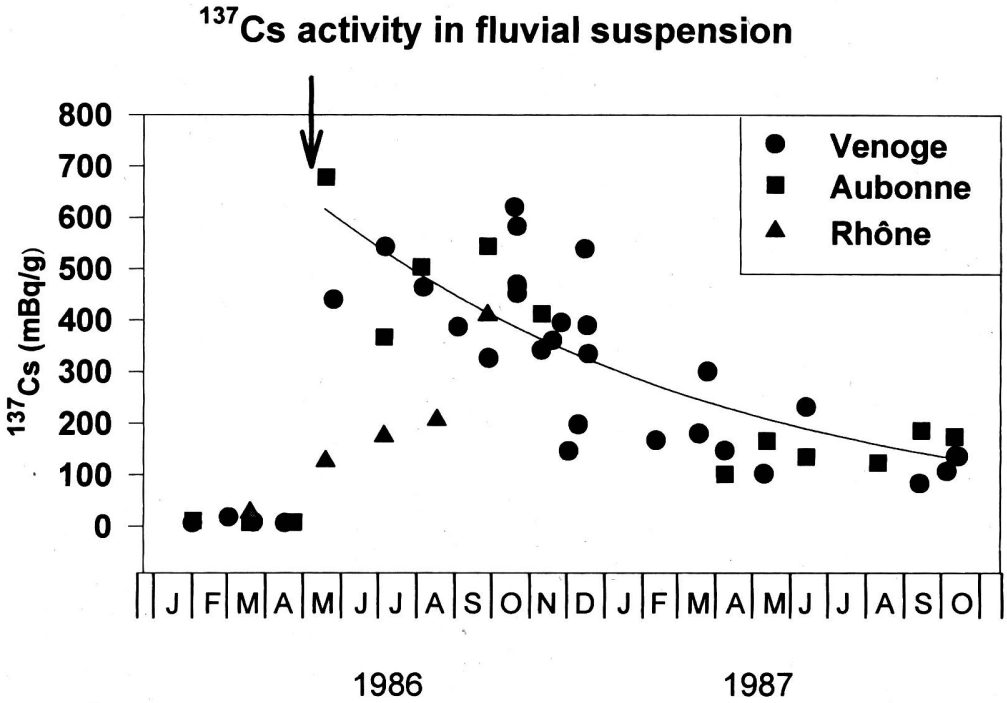


Fig. 3. **^{137}Cs concentration in suspended matter (<63 μm fraction) in 1986 and 1987. Arrow indicates the time of Chernobyl fallout.**

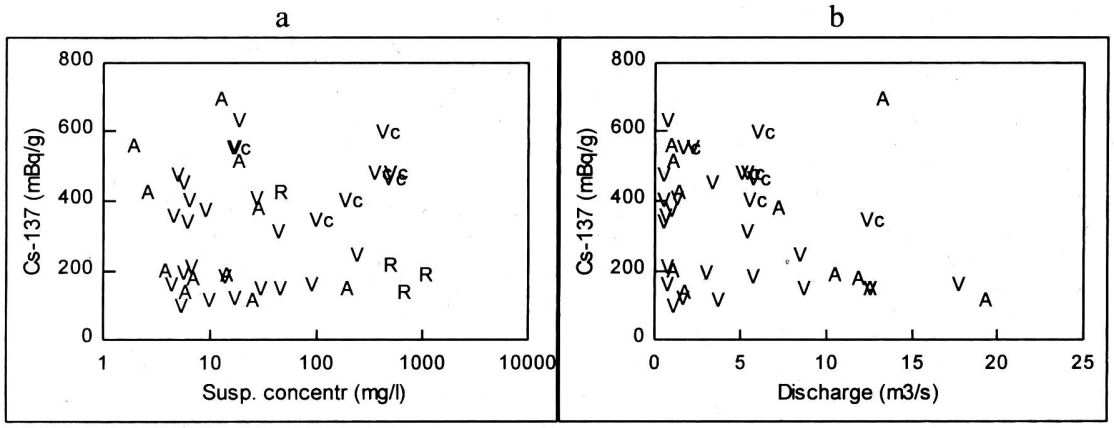


Fig. 4. **a)** Plot of ^{137}Cs concentration (<63μm fraction) versus a) suspended matter concentration, **b)** water discharge. Only data from post-Chernobyl period are plotted. V- the Venoge River, Vc - the Venoge River during flood events, A - the Aubonne River, R - the Rhône River.

No relations between ^{137}Cs and suspended matter concentration (Fig. 4a) or water discharge (Fig. 4b) are observed for the Aubonne and the Venoge Rivers. This is partly due to the

generâl decrease of Cs concentration with time, but a large dispersion occurs also for samples taken within the same month.

As there is no clear relation between ^{137}Cs concentration in suspended particles and the mean concentration for each of the two years examined is clearly different, the total load of ^{137}Cs can be approximated by multiplying the yearly particle load with the yearly mean concentration of ^{137}Cs in suspended matter. The yearly particle load can be inferred from an extensive study of the Venoge River in this period (Zhang, 1988).

Table 2. Estimated yearly suspended particle discharge in Venoge (after Zhang, 1988)

YEAR	discharge per year (tons)		
	low flow	high flow	total
1986	316	16 274	16 590
1987	279	15 823	16 102

As the Venoge is a storm driven river, only the high flow periods are important for particulate matter discharge. To calculate the Chernobyl Cs load in 1986 it is necessary to estimate the particulate load for the post-Chernobyl period. This can be done assuming that repartition of particulate load is proportional to the high-flow water discharge. Although the time after Chernobyl represents 70 % of the year, the high flow events occurred more frequently in spring (95 high flow days) than in the post-Chernobyl period (124 high flow days). Water discharge during pre-Chernobyl period represents 57 % of total discharge at high flow. It is thus assumed that only 43% of particulate load transported at high flow carries the ^{137}Cs. As the mean concentration of ^{137}Cs in suspended particles after May 1986 is 0.414 Bq/g, we obtain the total load Fr = $0.43 * 16'274 * 10^6$ g * 0.414 Bq/g = $2.9 * 10^9$ Bq or $1.2 * 10^7$ Bq/d.

For 1987, with a mean concentration of 0.160 Bq/g, the total load is $2.5 * 10^9$ Bq or, on average, $0.69 * 10^7$ Bq/d. The average daily load of ^{137}Cs in 1987 makes about 58 % of that in 1986 after the Chernobyl accident. In both years, the ^{137}Cs load during low flow conditions is more than one order of magnitude smaller than during the high flow and can thus be neglected.

As discussed earlier, the total ^{137}Cs fallout in May 1986 measured et Buchillon amounts to 2.5 kBq/m^2 or $5.9 * 10^{11}$ Bq for the whole watershed of the Venoge River. Thus the removal rates by the river suspended solids amounts to 0.75 and 0.44 % per year of the watershed inventory in 1986 and 1987, respectively. The corresponding residence times are 133 and 229 years. The decreasing removal rate can be attributed to the penetration of ^{137}Cs in the soil profile largely enhanced by ploughing of cultivated soils, which make over 50% of the Venoge watershed surface (Caloz and Blaser, 1987, cited after Zhang, 1988).

The input of ^{137}Cs from the whole watershed to the Lake Geneva (tab. 3) is difficult to evaluate because of the heterogeneous nature of fallout. The fallout in the alpine Rhône watershed was relatively low, probably about 1 kBq/m^2, as inferred from measurements in

soil (cf. CFSR, 1989, p 14). A rough approximation can be done assuming this value for the Rhône watershed, the fallout measured at Buchillon as representative for the rest of Lake Geneva watershed and a removal rate as calculated for the Venoge watershed. Under these assumptions the input of particulate ^{137}Cs to Lake Geneva from its watershed is equal to 5.3 $*10^{10}$ and 4.7 * 10^{10} Bq in 1986 and 1987, respectively. If we add to this value a quantity of ^{137}Cs which could have been washed out from the watershed during the first several days after the fallout ($1.1*10^{11}$ Bq corresponding to 1 % of fallout, Santschi, 1987), the total input to the lake till the end of 1987 would be $2.1*10^{11}$ Bq. As the estimated direct fallout to the lake surface is 1.5 * 10^{12} Bq, the contribution from the watershed make about 12% of the total input.

Table 3. Input budget of Chernobyl ^{137}Cs into Lake Geneva (1986-1987).

		Atmospheric fallout at Buchillon till 30 May 1986	2.49 kBq/m^2
Venoge watershed area*	231 km^2	Fallout in Venoge watershed	$5.78*10^{11}$ Bq
		Particulate flux, Venoge 1986	$2.9*10^9$
		Particulate flux, Venoge 1987	$2.5*10^9$
Removal rate 1986	0.0075 y^{-1}	Residence time 1986	133 y
Removal rate 1987	0.0044 y^{-1}	Residence time 1987	229 y
Rhone watershed surface	5220 km^2	watershed inventory** (1 kBq/m^2)	
Watershed of other affluents	2173 km^2	watershed inventory*** (2.5 kBq/m^2)	
Lake Geneva watershed surface	7393 km^2	watershed inventory	$1.06*10^{13}$ Bq
		Fluvial input (particulate) 1986	$5.3*10^{10}$ Bq
		Fluvial input (particulate) 1987	$4.7*10^{10}$ Bq
		1% of initial washout****	$1.1*10^{11}$
		Total fluvial input to Lake Geneva (1986-87)	$2.1*10^{11}$
Lake surface	582.4 km^2	Atmospheric fallout directly to the Lake	$1.5*10^{12}$ Bq
		Total atmospheric & fluvial input 1986-1987	$1.7*10^{12}$ Bq

* upstream from gauging station at Ecublens les Bois
** estimated from CFSR (1989) data
*** extrapolated from measurements at Buchillon
**** washout of ^{137}Cs from watershed immediately after fallout (Santschi, 1987)

The long term removal of Cs from the watershed can also be modelled if we assume that the removal in the whole Lake Geneva watershed follows the same function as the decrease of concentration in suspended particles observed during 1986-87 in the Venoge River. The change of concentration with time has been described (fig. 3) as:

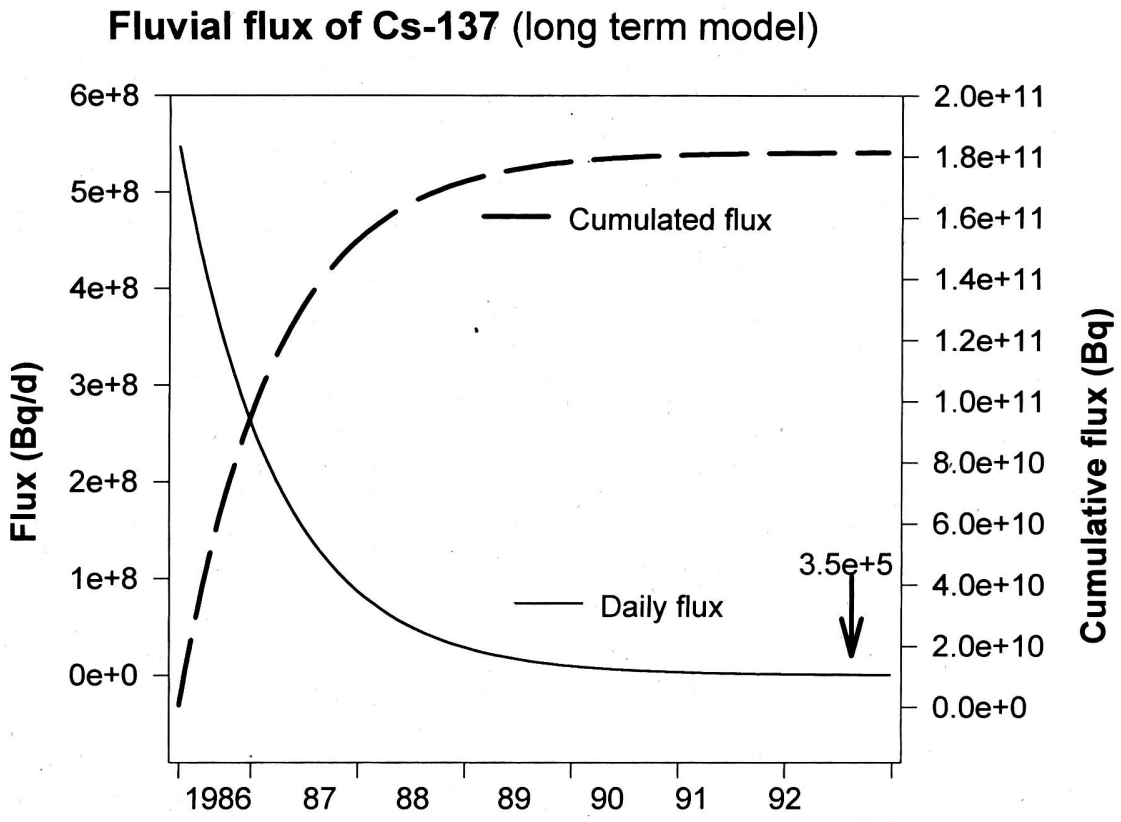


Fig. 5. Model of daily and cumulative ^{137}Cs fluvial loads to Lake Geneva based on equation 3. The value of daily load at the of 1992 is indicated by the arrow.

$$C(t) = C_o * \exp(-b\,t) \qquad (1)$$

with C_o - initial concentration after Chernobyl fallout, b - slope of concentration decrease, and t - time (days) after Chernobyl fallout.

The flux function in the Venoge River, $F_V(t)$, can be thus expressed as

$$F_V(t) = C_o * F_{sed} * \exp(-b\,t) \qquad (2)$$

with mean daily sediment load of the Venoge river (F_{sed}) equal to 44 tons/d (Zhang, 1988). Assuming that the change of flux with time from the entire watershed of Lake Geneva is proportional to that from the Venoge watershed ($F_{total}(t) = I_{total} * F_V(t)/I_V$) we obtain

$$F_{total}(t) = I_{total} * C_o * F_{sed} * \exp(-b\,t)/I_V \qquad (3)$$

where I_{total} and I_V are Chernobyl ^{137}Cs inventories in the Lake Geneva and the Venoge watersheds, respectively.

Results of this model are plotted in fig. 5. Cumulated flux till the end of 1987 is about 1.5 $*10^{11}$ Bq, as compared to $1*10^{11}$ Bq obtained from calculation in tab 3. The difference is due to the assumption of constant sediment flux in the model, while the calculation in tab. 3 takes into account a lower than average sediment load in 1986 after the Chernobyl fallout. The model also shows that the contribution of ^{137}Cs delivered to the lake after 1988 to the total fluvial input is very small.

Lake

The evolution of ^{137}Cs flux determined by sediment trap technique at two depth is shown in fig. 6b.

The ^{137}Cs flux carried by settling particles collected between 26 April and 20 May 1986 increased by two orders of magnitude relative to the pre-Chernobyl fluxes. The maximal fluxes are reached in June (June 12 - July 2) at 60 m and in July (2 - 24) at 300 m. A sharp decrease of ^{137}Cs flux, accompanied by a similar decrease of particle flux, is noticed in October. From this point on, a long term decrease of ^{137}Cs flux is observed. Seasonal fluctuations are related to a similar pattern of settling particle fluxes. These fluctuations are particularly pronounced at the depth of 60 m. While in summer the fluxes are quite similar at different depths, in winter they increase generally with depth (tab. 4). This is also observed for settling particle fluxes (fig. 6a) and may be attributed to focusing of sediments in the deepest part of the lake.

Table 4. ^{137}Cs fluxes into sediment traps at station SHL2. Evolution with depth and season.

Season	Exposure period		^{137}Cs mean flux in Bq m^{-2} day^{-1}					
	from	to	60 m		200 m		300 m	
summer 86	29-Apr-86	22-Sep-86	5.881	±0.015	4.612	±0.012	4.640	±0.013
winter 86/87	22-Sep-86	28-Apr-87	0.802	±0.003	0.961	±0.003	1.252	±0.005
summer 87	28-Apr-87	22-Sep-87	1.083	±0.007	1.390	±0.008	1.371	±0.010
winter 89/90	19-Oct-89	13-Mar-90	n.m.		0.191	±0.004	0.393	±0.007
summer 90	30-May-90	25-Sep-90	n.m.		0.306	±0.008	0.433	±0.008
winter 90/91	25-Sep-90	08-Apr-91	0.134	±0.003	0.202	±0.004	0.270	±0.004
summer 91	08-Apr-91	02-Oct-91	0.153	±0.003	0.194	±0.004	0.243	±0.004

n.m. - not measured.

The decrease of ^{137}Cs flux with time is relatively rapid (fig 7). In 1991 the fluxes make only 5, 9 and 12 % of these in 1986 at 60, 200 and 300 m water depth, respectively. The yearly flux in 1986 is the highest at 60 m water depth, but in consecutive years it increases slightly with depth, similarly to the total sediment flux.

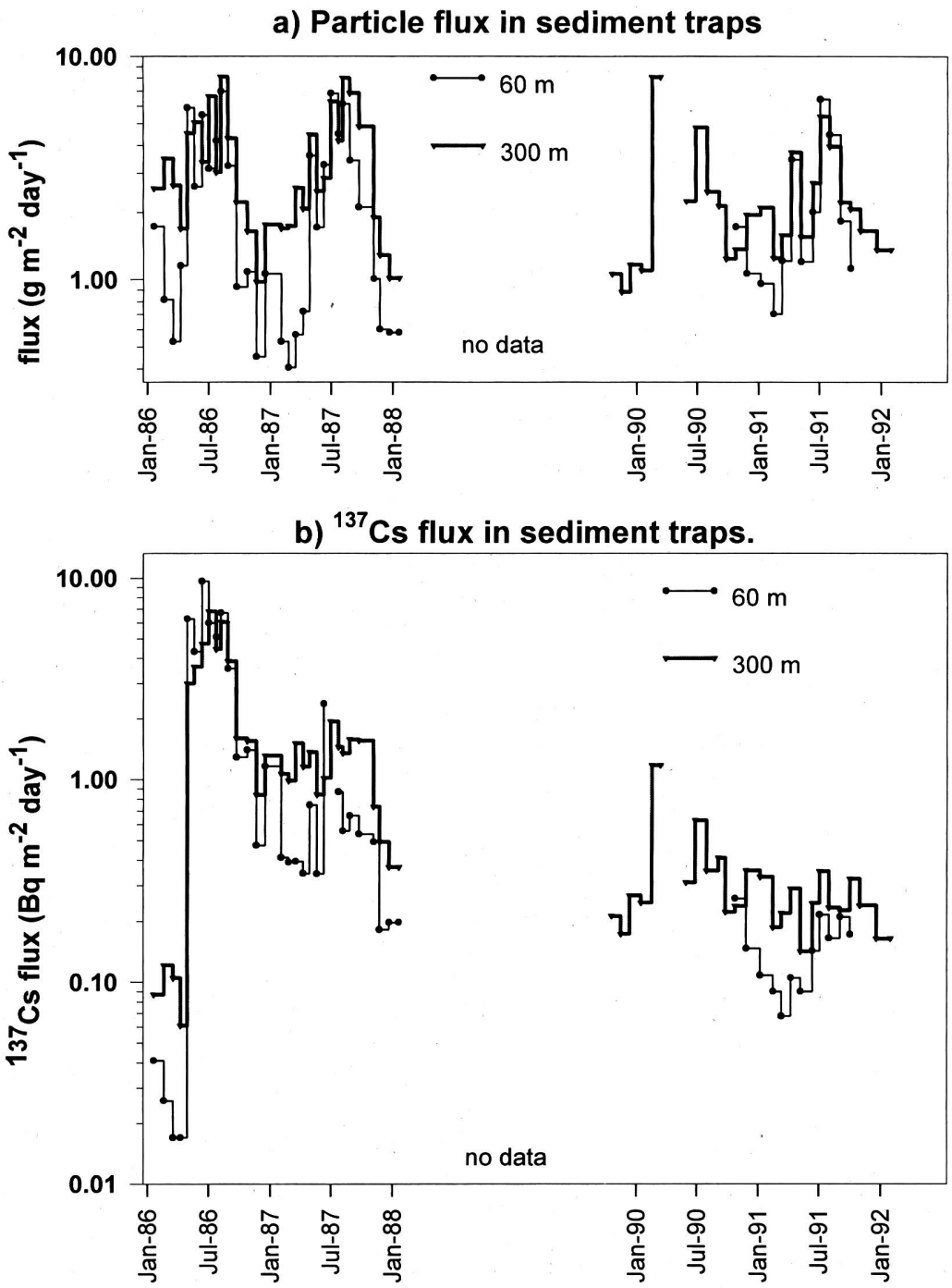


Fig. 6. Evolution of particle (a) and ^{137}Cs fluxes (b) in sediment traps at station SHL2, Lake Geneva.

About 30 % of atmospheric fallout of ^{137}Cs settled to the sediment traps in summer 1986 and nearly 50% till the end of 1987. In May 1986 the lake developed spring stratification (Blanc et al. 1988) and thus ^{137}Cs could not be introduced to deep water by mixing. It has been

scavenged by particles in the epilimnion and transported into deep water by settling particles. To our knowledge, there have been no systematic measurements of ^{137}Cs in epilimnetic water, but clearly a part of Cs has been lost from the lake by outlet during summer 1986. Incomplete mixing occurred to a depth 150 - 200 m at the end of winter 1986/1987, and consequently the remaining ^{137}Cs could be scavenged by particles only in the depth interval 0-200 m. The fluxes of Cs carried down by settling particles show that the cumulated flux is always higher at 60 m than at 200 m water depth (fig. 8).

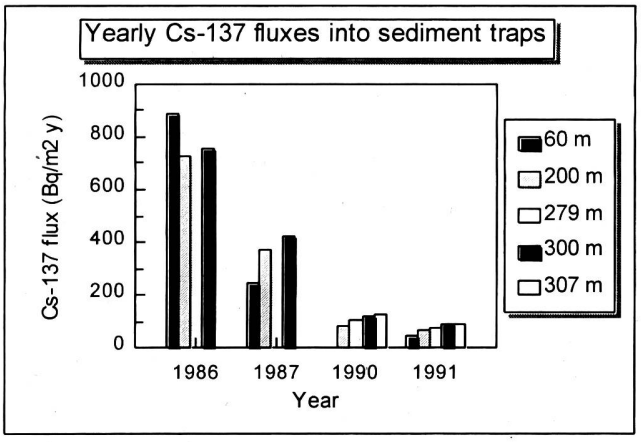


Fig. 7. Yearly ^{137}Cs flux as measured in sediment traps at station SHL2, Lake Geneva, after Chernobyl accident.The flux in 1986 includes only post-Chernobyl period (May, 1-December 31

The cumulated flux at 60 m water depth remains higher than those at 300 m till the late fall of 1987, when both fluxes become similar. This indicates that there are two different paths of Cs transport: to the deep lake sediments: a rapid vertical settling and a slower focusing process which brings particles to deep water probably along sediment/water interface. The latter process would increase the flux to the sediment traps at 300 m but not at 200 m water depth. Alternatively, the Cs-bearing particles carried by rivers from the watershed could have directly been injected into deep water.

The rapid transfer of ^{137}Cs to deep water and sediments can be examined by comparison of fluxes at different depths measured immediately after the Chernobyl fallout. The mean fluxes measured in traps deployed on April 29 and recovered on May 20, 1986 were $F_1 = 6.27$, $F_2 = 2.8$ and $F_3 = 3.0$ Bq $m^{-2}d^{-1}$ at 60, 200 and 300 m water depth, respectively. This indicates that just about half of the ^{137}Cs flux at 60 m depth arrived to the bottom of the lake in less then 19 days. From the flux data we can estimate vertical settling rate of rapidly sinking Cs-bearing particles by solving the set of three equations (4, 5, 6):

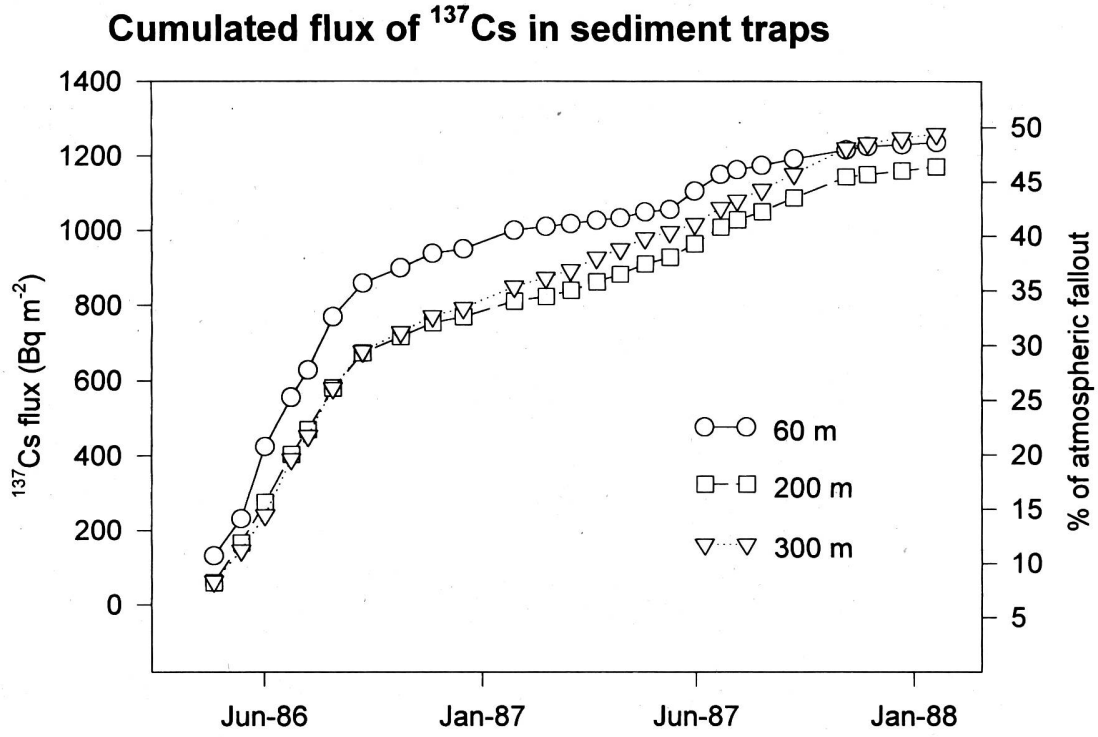


Fig 8. Cumulated ^{137}Cs flux measured in sediment traps at station SHL2. The right hand scale corresponds to the % of atmospheric fallout found in sediment traps.

$$t_1 = D_t - T_{s1} = D_t - (z_1/v) \quad (4)$$

$$t_2 = t_1 - T_{s2} = t_1 - [(z_2-z_1)/v] \quad (5)$$

with D_t - time interval between Chernobyl fallout (1.06.86) and first trap recovery (20.06.86); T_{s1}, T_{s2} - settling time between surface and z_1, and between z_1 and z_2; t_1, t_2 - time interval of effective "rain" of ^{137}Cs into trap at depth z_1 and z_2; v - settling rate of particles carrying ^{137}Cs.

Assuming that fluxes and settling velocities are constant in time during the 19 days of trap deployment,

$$F_2/F_1 = t_2/t_1 \quad (6)$$

where F_1, F_2 are measured fluxes of ^{137}Cs into trap at depth z_1 and z_2.
Solving these equations for v we obtain

$$v = \frac{\{(z_2-z_1)/[1-(F_2/F_1)]\} + z_1}{D_t} \quad (7)$$

The settling velocity calculated from fluxes at 60 and 200 m water depth is about 16.5 m/day corresponding to the transit time of 8.5 days for 140 m water column. The settling rate is in the range of 16 - 18 m/day obtained by Wieland et al. (1991) from their measurements in Lake Zurich. However, the calculation in Lake Geneva using flux ratio from traps at 300 and 60 m water depth yields a faster settling rate (27.3 m/day), as the absolute flux at 300 m is higher than at 200 m. This strongly suggests that some additional mechanism enhancing flux in near bottom trap is involved (rapid focusing ? resuspension ?).

The measurements of ^{137}Cs fluxes carried on at one station, although very useful for evaluation of removal process, can not be considered as representative for the whole lake. Enhanced removal by settling particles is expected in areas of high sedimentation rate and in shallow water due to direct uptake by bottom sediments. The removal of 50% of Chernobyl fallout by settling particles as measured in the centre of the lake should only be considered as a part of overall removal process.

Sediments

In general, slightly enhanced inventories are expected in cores from "pillow" (SM2B, SM4B, SM9B) and largely deficient inventories in cores from "hollow" (SM1C, SM5C) sites (Dominik et al. 1989, 1992). However, in some "hollow" sites (SM10C), the top sediment is not disturbed and the Chernobyl Cs inventory is comparable to the "pillow" sites. Chernobyl Cs inventories in sediment cores (tab. 5) obtained from "pillow" sites and in cores recovered by surface boat from the Central Plain (SH2A3, SHL2A4) are in the range 1000 - 2000 Bq/m^2 (mean 1335 ±426). The mean inventory in sediment cores from the Central Plain (1172±114 Bq/m^2) agrees very well with the integrated flux obtained from sediment traps at 300 m water depth at the same location (1017±2 and 1153±3 Bq/m^2 in May and September 1987, respectively, cf. fig 8). This strongly suggest that the measurements of Cs in sediment cores can be used for budget estimation in Lake Geneva. However, a very high Cs inventory in core J17 indicates that the local variations in sedimentation rate strongly influence the Cs inventory in sediment cores.

Table 5. Chernobyl ^{137}Cs inventories in sediment cores calculated from ^{134}Cs measurements.

Core	Sampling date	Chernobyl ^{137}Cs inventory (Bq/m^2)	Sedimentation rate (g/cm^{2}y)	Remarks
SM1C	03-Sep-87	332±14	<0.060	
SM2B	03-Sep-87	1293±27	0.078	
SM4B	26-Nov-87	2079±57	0.116	
SM5C	26-Nov-87	45±8	erosion	no ^{7}Be
SM9B	26-Nov-87	1078±68	0.120	from ^{210}Pb
SM10C	26-Nov-87	1115±49	0.120	
SHL2A3	20-May-87	1067±15	0.078	
SHL2A4	20-May-87	1157±22	<0.134	
J17	04-Oct-88	8367±488	1.486	

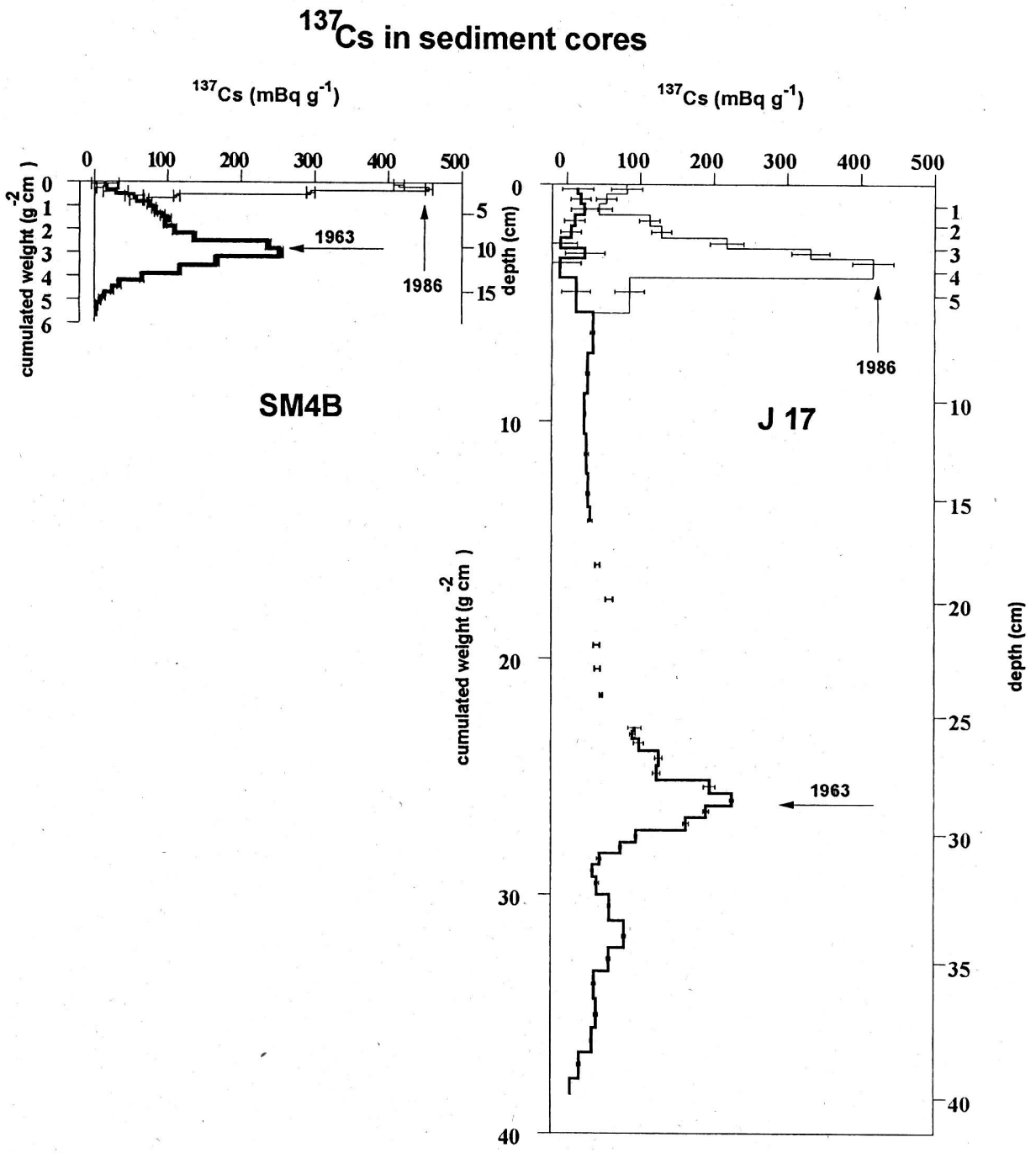


Fig. 9. **^{137}Cs activity profiles in two selected sediment cores with contrasting sedimentation rates. Chernobyl Cs is shown with thin lines and Cs originating from nuclear tests in the atmosphere with thick lines. Error bars represent counting errors. Activities are plotted against cumulated sediment weight (linear scale on right). Due to decrease of porosity with depth, the depth scale (left) is not linear.**

The strong variations in sedimentation rate and the associated ^{137}Cs distribution in the sediment are illustrated in fig. 9. Although, the sedimentation rate at site J17 is by a factor 13 higher than at site SM4, the peak activities of Chernobyl Cs expressed in mBq/g are similar in both cores. The inventory differs by about a factor 4. Both, a higher scavenging rate from lake water and larger contribution from watershed, result in enhanced Chernobyl Cs inventory in core J17.

3.11.4 Discussion and conclusions

Although Lake Geneva and its watershed have been less contaminated with Chernobyl fallout than the north-east and south Switzerland, the amount of ^{137}Cs activity from this source amounts to about 50% of radiocesium deposited in this region between 1954 and 1982 from nuclear tests in the atmosphere. Similarly to other sites, atmospheric fallout decreases by 3 orders of magnitude during 4 months following the initial fallout in the first days of May 1986. Nevertheless a residual activity has been observed in atmospheric depositon during over one year, probably due to resuspension of fine Cs-bearing particles from top soil layer.

Inventories of ^{137}Cs in soil profiles indicate spatial heterogeneity of fallout even on relatively short distances. Soil inventories measured at two sites less then 20 km apart differ by a factor of two. Even larger variability has been found in soil profiles from the region of Lake Constance (Christian, 1987). These differences are generally attributed to the variable fluxes depending on local rainfall, as the wet deposition of Cs from the atmosphere is much more important than dry fallout (Santschi et al. 1988). Because of the patchiness of rainfall and consequently ^{137}Cs inventories in soil, a precise determination of mean ^{137}Cs inventory in watershed soil in very difficult.

Studies of ^{137}Cs transfer from soil to rivers carried on immediately after the fallout (e.g. Santschi et al. 1988) have shown that about 1% of total watershed inventory has been washed out within a few weeks following the fallout, initially in dissolved and later mostly in particulate forms. Our data suggest that ^{137}Cs removal from watershed in fluvial suspension may be relatively important over a longer period. On average, 0.7 and 0.4 % of the watershed inventory have been removed in Venoge river in 1986 and 1987, respectively. Model calculations based on our data indicate that the removal should decrease to less 0.1 % per year at the end of 1991. Thus about 5 years are necessary to bring the mean erosional residence time of ^{137}Cs in watershed soil to about 1000 years, a value similar to those determined for radiocesium from nuclear bomb tests (Dominik et al., 1987, Linsley et al. 1982). Obviously, at such a long erosional residence time, ^{137}Cs will be lost from watershed soil predominantly by radioactive decay.

Budget calculations show that the contribution of ^{137}Cs from watershed makes only 12% of total input of this nuclide to Lake Geneva. This is due to a relatively high lake to watershed area ratio (0.079) and a higher fallout to the lake surface than to a large part of the watershed (Valais).

A large fraction of ^{137}Cs deposited on the lake surface has been rapidly removed by sinking particles. The vertical transfer rate (settling rate of Cs-bearing particles) is estimated to be about 16 m/day. At the end of summer 1986 over 30% of atmospheric deposition has been

found in sediment traps located at the central part of the lake at 60 m water depth. Nearly 50% of the initial atmospheric input was collected in sediment traps near the lake bottom (300 m depth) by the end of 1987. The total retention of ^{137}Cs in sediments is probably higher, as can be inferred from the enhanced inventory in core J17, located at high sedimentation rate area. Wieland (1993) found a good correlation between sedimentation rate and ^{137}Cs inventory in sediments of Lake Sempach. Sediments at lake margins seem to have, in general, higher ^{137}Cs inventories, as shown by Mangini et al. (1990) in Lake Constance.

A rapid removal rate of ^{137}Cs from lakes has been demonstrated in several subalpine lakes (Santschi et al. 1990) and our observations in Lake Geneva confirm the rule. This also stresses the unique situation of the northern basin of Lake Lugano (Dominik and Span, 1992), where ^{137}Cs accumulates in deep anoxic hypolimnion.

3.11.5 Acknowledgements

This study was possible due to a generous help of a number of my colleagues and students at Institut F.-A. Forel: Zhang Li, W. Stryjenski, C. Hilfiker, V. Gandais, B. Gallerini, J. Peaudecerf and J.-L. Loizeau. Financial support was provided by the Swiss National Science Foundation (FNRS).

3.11.6 References

Blanc, P., Corvi, C., Rapin, F., 1988. Evolution physico-chimique des eaux du Léman, campagne 1987. Rapp. Comm. int. prot. eaux Léman contre pollut., 27-46.

Burrus D., Thomas, R.L., Dominik, J., Vernet, J.-P., 1989. Recovery and concentration of suspended solids in the upper Rhône River by continuous flow centrifugation. Hydrological Processes, 3, 65-74.

CFSR, 1989. 30ème rapport de la Commission Fédérale de la Surveillance de la Radioactivité pour les années 1987 and 1988, partie 1, 66pp.

Christian, U., 1987. Cäsium und Rhutenium im Bodensee. Diplomarbeit, Institut für Umweltphysik, Universität Heidelberg, 124pp.

Czarnecki, J., Cartier, F., Honegger, P., Zurkinden, A., 1986. Bodenverstrahlung in der Schweiz aufgrund des Reaktorunfalles in Chernobyl. In: Radioaktivitätsmessungen in der Schweiz nach Tschernobyl und ihre wissenschaftliche Interpretation. Tagungsbericht, Bern, 20.-22. Oktober 1986, 93-109.

Dominik J., Burrus, D., Vernet, J.-P., 1987. Transport of environmental radionuclides in an alpine watershed. Earth Planet. Sci. Lett., 84, 165-180.

Dominik, J., Schuler, Ch., Santschi, P.H., 1989. Residence time of ^{234}Th and ^{7}Be in Lake Geneva. Earth Planet. Sci. Lett., 93, 345-358.

Dominik, J., Loizeau, J.-L., Span, D., 1992. Radioisotopic evidence of perturbations of recent sedimentary record in lakes: a word of caution for climate studies.

Dominik J., Dulinski, M., Span, D., Hofmann, A., Favarger, P.-Y., Vernet, J.-P.,1993. Transfert de matière et de radio-isotopes entre l'eau et les sédiments dans le Léman. In: Campagne 1992, Rapp. Comm. int. prot. eaux Léman contre pollut., 163-188.

Gandais V.,1989. Un exemple d'évolution spatio-temporelle des flux de matière particulaires au centre du Léman. Cahier de la Fac. Sci. Université de Genève, 19, 75-82.

Linsley, G.S., Haywood, S.M., Dionian, J., 1982. Use of fall-out data in the development of models for the transfer of nuclides in terrestrial and freshwater systems. In: Environmental Migration of Long-lived Radionuclides, Proceedings of a Symposium, Knoxville, 27-31 July 1981, 615-643, IAEA, Vienna.

Santschi, P.H., 1987. Chernobyl radionuclides in the environment, EAWAG News, 22/23, 1-6.

Santschi, P.H., Bollhalder, S., Farrenkothen, K., Lück, A. Zingg, S., Sturm, M., 1988. Chernobyl radionuclides in the environment: tracers for the tight coupling of atmospheric terrestrial, and aquatic geochemical processes. Environ. Sci. Technol., 22, 515-160.

Santschi, P.H., Bollhalder, Zingg, S., Lueck, A., Farrenkothen, K., 1990. The self-cleaning capacity of surface waters after radioactive fallout. Evidence from European waters after Chernobyl, 1986-1988. Environ. Sci. Technol., 24, 519-527.

Wieland, E., Santschi, P.H., Beer, J., 1991. A multitracer study of radionuclides in Lake Zurich, Switzerland. 2. Residence times, removal processes, and sediment focusing. Journal of Geophys. Res., 98, C9, 17067-17080.

Wieland , E., Santschi, P.H., Höhener, P., Sturm, M., 1993. Scavenging of Chernobyl ^{137}Cs and natural ^{210}Pb in Lake Sempach, Switzerland. Geochim. Cosmochim. Acta, 57, 2959-2979.

Zhang, Li, 1988. Evaluation of phosphorus loadings to Lake Geneva and other rivers, Switzerland. Thèse, Université de Genève, no 2333, 97pp.

Zhang, L., Gregor, D.J., Vernet, J.-P., 1989. Estimation des formes du phosphore dans la rivière Venoge en crue. Revue des Sciences de l'Eau, 2, 709-720.

3.12. CÄSIUM-RADIONUKLIDE AUS DEM TSCHERNOBYL-FALLOUT IM BODENSEE

S. Kaminski Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, IAF Radiometrie, Postfach 1261, D-88241 WEINGARTEN

G. Lindner Fachhochschule Coburg, Postfach 1652, D-96450 COBURG

1. Zusammenfassung

Von den Radionukliden, die durch den Tschernobyl-Fallout in den Bodensee eingetragen wurden, spielt nur noch Cäsium-137 aufgrund seiner langen physikalischen Halbwertszeit von 30,2 Jahren eine Rolle. Wegen des Vorhandenseins von Tonmineralen wie z. B. Illiten im Bodensee, die Cäsium-Radionuklide nahezu irreversibel binden können, und der jährlich stattfindenden Calcitfällung sind die Cäsium-Radionuklide nach ihrem Eintrag rasch aus der Wassersäule entfernt worden und nun fest im Sediment gebunden. Eine Rücklösung in nennenswertem Umfang ist nicht zu erwarten.

Weiterhin werden Cäsium-Radionuklide aus dem Einzugsgebiet in den See eingetragen. Dies hat aber für die Wasserqualität keine Bedeutung, da sie bereits an Feststoffe adsorbiert sind, die dann im See sedimentieren.

Aufgrund ihrer festen Bindung an Tonminerale bieten die Cäsium-Radionuklide im Bodensee eine Möglichkeit, den Zeitverlauf der Sedimentbildung zu untersuchen.

2. Radionuklide im Freiwasser des Sees

Da der Bodensee zur Zeit des Tschernobyl-Eintrags am 30. April 1986 bereits geschichtet war, lagen die Cäsium-Radionuklide zunächst gelöst im Epilimnion vor, lagerten sich dort an Tonmineralpartikel an, die im Zuge der Calcitfällung Mitte Mai eine erhöhte Sinkgeschwindigkeit erhielten /1/. Auf diese Weise wurden die Cäsium-Radionuklide rasch ins Sediment transportiert, und ihre Konzentration im Wasser nahm sehr schnell ab (Abb. 1). Im Oktober 1991 waren nur noch 0,27% des ursprünglich eingetragenen Cäsium-Inventars (17000 ± 3000 Bq/m² /2/) im Wasser des Bodensees gelöst; die spezifische ^{137}Cs Konzentration lag unter 1 mBq/l.

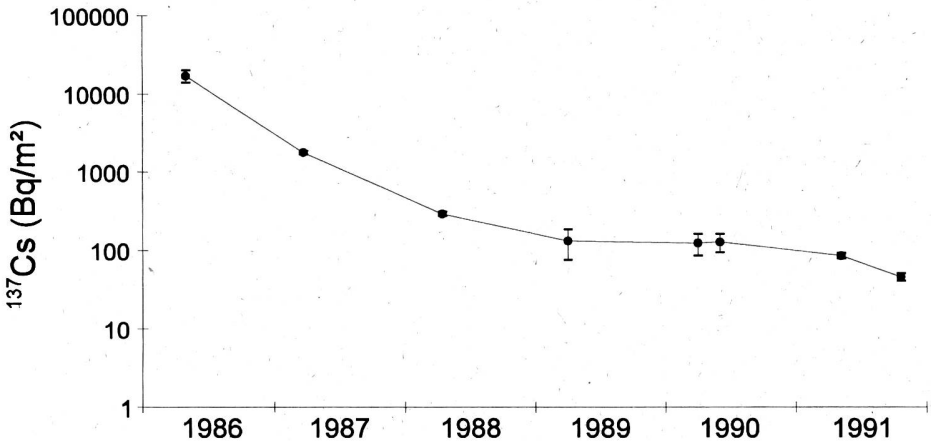


Abb. 1:

Abnahme des Inventars von gelöstem ^{137}Cs (bezogen auf die Seeoberfläche) im Wasser des Bodensees vom 1. 5 1986 bis Ende 1991 /3,4/.

3. Radionuklide in Fischen

Die rasche Entfernung der Cäsium-Radionuklide aus der Wassersäule hatte Auswirkungen auf die Höhe und den zeitlichen Verlauf der Kontamination der Fische im See (Abb. 2). Bei Felchen und Barschen ergab sich eine kontinuierliche Abnahme der spezifischen ^{137}Cs-Aktivität seit Sommer 1986, mit einer kurzen effektiven ökologischen Halbwertszeit bei Felchen von 3,8 ± 0,2 Monaten /5,6/. Fische wie Hechte und Aale, die ihre Nahrung auf höherem trophischen Niveau aufnehmen, erreichten das Maximum ihrer Kontamination ca. 1 Jahr später; ihre maximalen spezifischen ^{137}Cs-Aktivitäten lagen aber deutlich unter denen der Felchen und Barsche.

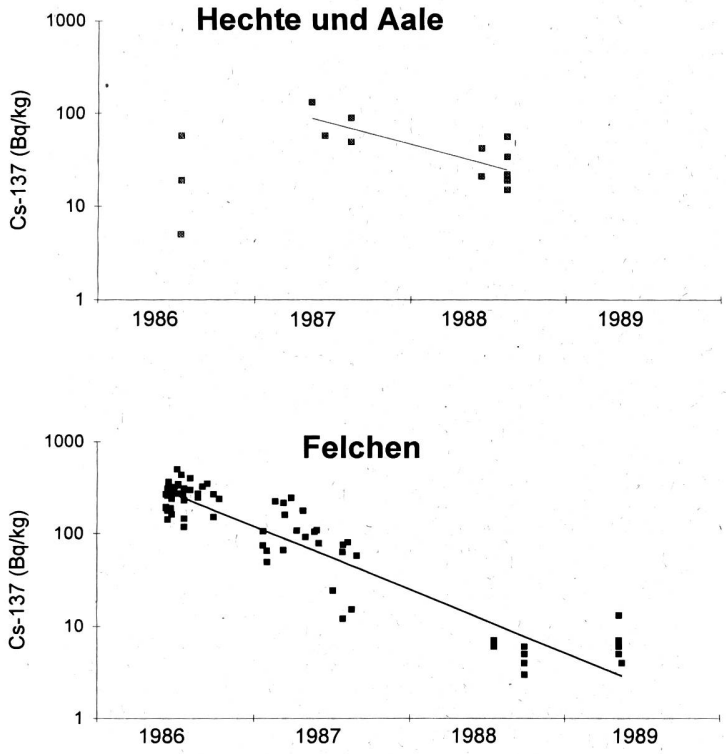


Abb. 2:

Zeitlicher Verlauf der spezifischen ^{137}Cs-Aktivität (bezogen auf Frischgewicht) in carnivoren (Hechte und Aale) und herbivoren Fischen (Felchen) aus dem Bodensee in den Jahren 1986 - 1989 /6/.

4. Radionuklide im Sediment

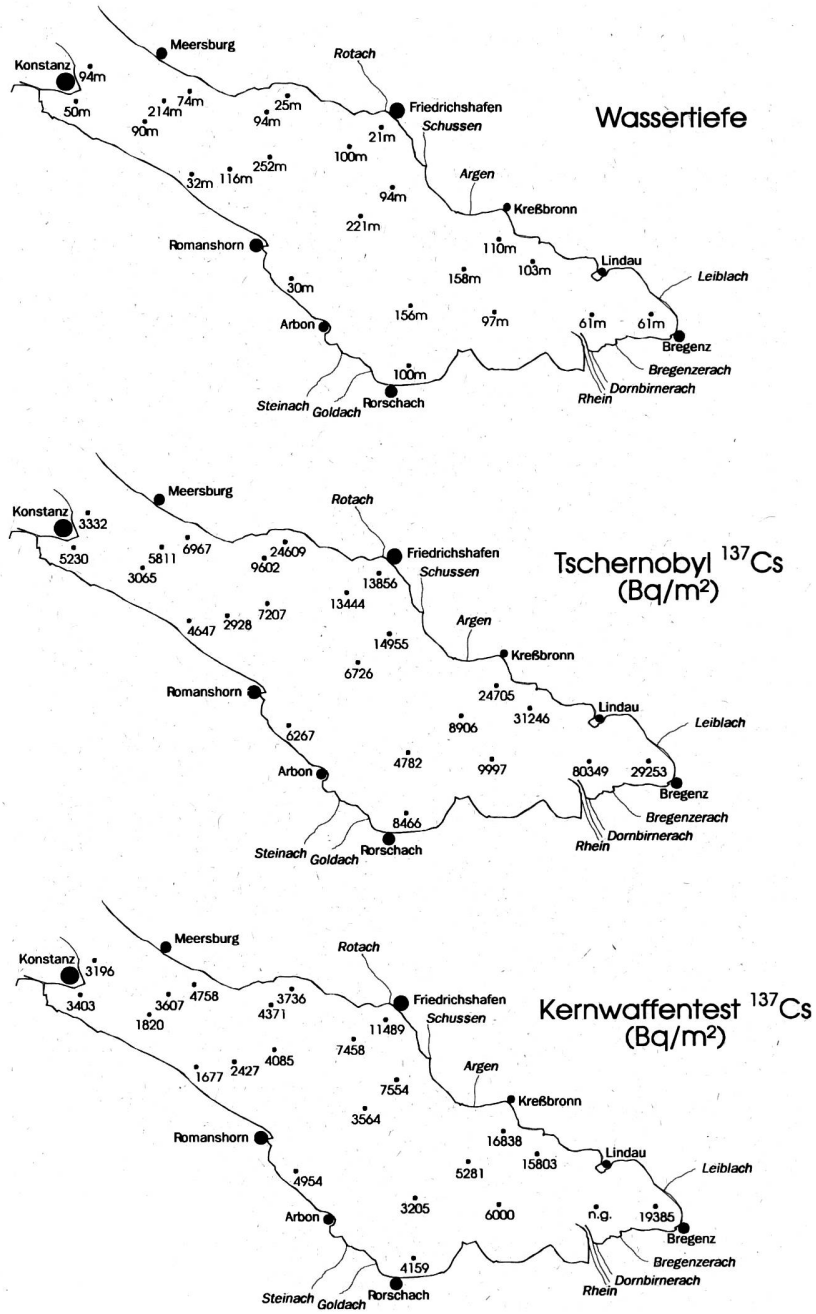
4.1. Horizontale Verteilung der Inventare

Abb. 3 zeigt die Kartierung der ^{137}Cs-Inventare aus dem Tschernobyl- und dem Kernwaffentest-Fallout im Sediment des Bodensee-Obersees 1992/93 und die Wassertiefen der Probenahmepositionen. Die höchsten ^{137}Cs-Inventare sowohl aus Tschernobyl- als auch aus Kernwaffentest-Fallout wurden im Ostteil des Sees im Strömungsfluß des Alpenrheins gemessen. Die Inventare vor den Mündungsbereichen kleinerer Zuflüsse, wie Schussen, Argen oder Leiblach, sind ebenfalls im Vergleich zu den übrigen Positionen im See erhöht. Aus den Einzugsgebieten der Zuflüsse wird also laufend kontaminiertes Material in den See eingetragen, wobei der Alpenrhein aufgrund seiner großen jährlich eingetragenen Feststoffracht (jährlicher Eintrag: zwischen ca. 0,7 und 10 Millionen t) die größte Rolle spielt. Beim Vergleich der über die Wasseroberfläche eingetragenen ^{137}Cs-Inventare mit den im Sediment gemessenen Inven-

taren fällt auf, daß die Tschernobyl-Inventare im Sediment an Positionen, an denen die Sedimentation relativ ungestört und ohne wesentlichen Beitrag durch Zuflüsse erfolgt, deutlich kleiner sind als das eingetragene Inventar; sie liegen zwischen 18% und 59% des über die Wasseroberfläche eingetragenen ^{137}Cs-Inventars (17000 ± 3000 Bq/m² /2/). Dies deutet auf das Wirken weiterer Entfernungsprozesse wie Abfluß, Adsorption an Schwebstoffe und Aufnahme durch Fische. Beim Kernwaffentest-Inventar lagern zwischen 47% und 167% des über die Wasseroberfläche eingetragenen ^{137}Cs-Inventars (3600 ± 300 Bq/m² /2/) im Sediment. Diese im Vergleich zum Tschernobyl-Cäsium höheren Anteile des Kernwaffentest-Cäsiums im Sediment können durch einen anhaltenden Eintrag von kontaminierten Tonmineralpartikeln aus dem Einzugsgebiet während der letzten 30 Jahre erklärt werden.

Abb. 3:

Wassertiefen und ^{137}Cs-Inventare im Sediment des Bodensee-Obersees 1992/93 an verschiedenen Positionen im Obersee. Die ^{137}Cs-Aktivitäten aus dem Tschernobyl-Fallout sind auf den 1.5.1986 zerfallskorrigiert und die ^{137}Cs-Aktivitäten aus dem Kernwaffentest-Fallout auf das Jahr 1963. (Das Kernwaffentest-Inventar vor der Rheinmündung fehlt, da der Kern zu kurz war.)



4.2. Tiefenverteilungen im Sediment in verschiedenen Seeteilen

Die in Abb. 4 gezeigte ^{137}Cs-Tiefenverteilung ist typisch für Positionen im See, die nicht in der Nähe von Zuflußmündungen liegen und an denen eine ungestörte Sedimentation stattfindet /7/. Tschernobyl- und Kernwaffentest-Peaks sind scharf voneinander getrennt, mit Maxima in 2 - 3 cm, bzw. 10 - 11 cm Sedimenttiefe. Unterhalb von ca. 14 cm Sedimenttiefe läßt sich kein ^{137}Cs mehr nachweisen. Cäsium-Radionuklide im Sediment des Bodensees bieten eine ideale Datierungsmöglichkeit; aus der Tiefenlage der Maxima der Tschernobyl- und Kernwaffentest-Aktivität können Sedimentationsraten berechnet werden.

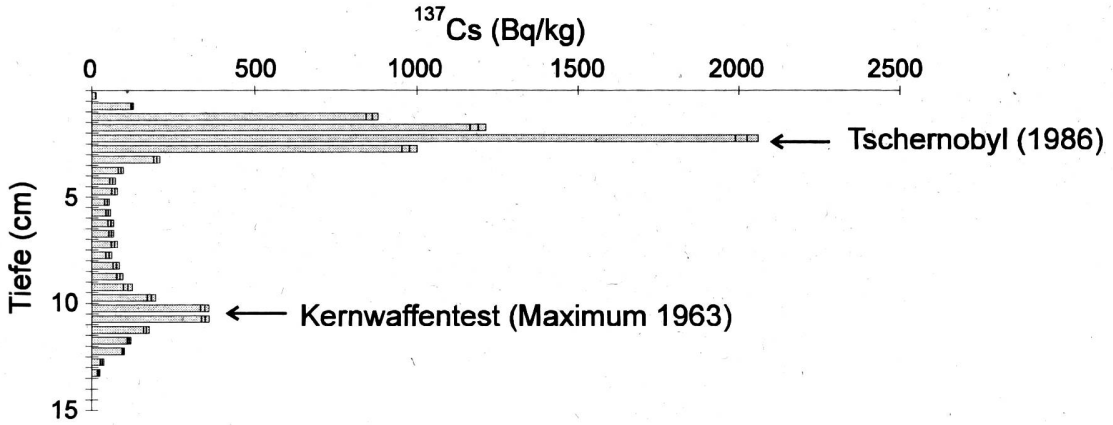


Abb. 4: *Tiefenverteilung von ^{137}Cs in einem Sedimentkern aus dem westlichen Teil des Bodensee-Obersees (214 m Wassertiefe) /7/. Die Aktivitäten wurden auf den 1.5.86 zerfallskorrigiert.*

Abb. 5 zeigt die Cäsium-Tiefenverteilung eines Sedimentkerns, der in ca. 9 km Entfernung von der Rheinmündung am Nordufer vor Nonnenhorn entnommen wurde /8/. Die bis in große Tiefen reichenden Radionuklid-Verteilungen der Kerne im Strömungsfluß des Alpenrheins deuten auf hohe Sedimentationsraten hin. Das relative Minimum oberhalb des Tschernobyl-Maximums wird dem Jahrhunderthochwassser 1987 und dem damit zusammenhängenden verstärkten Eintrag detritischen Materials mit geringer spezifischer ^{137}Cs-Aktivität zugeschrieben (Verdünnungseffekt). Dieses relative Minimum ist bei allen ^{137}Cs-Tiefenverteilungen der Kerne, die im Strömungsfluß des Alpenrheins liegen, zu beobachten.

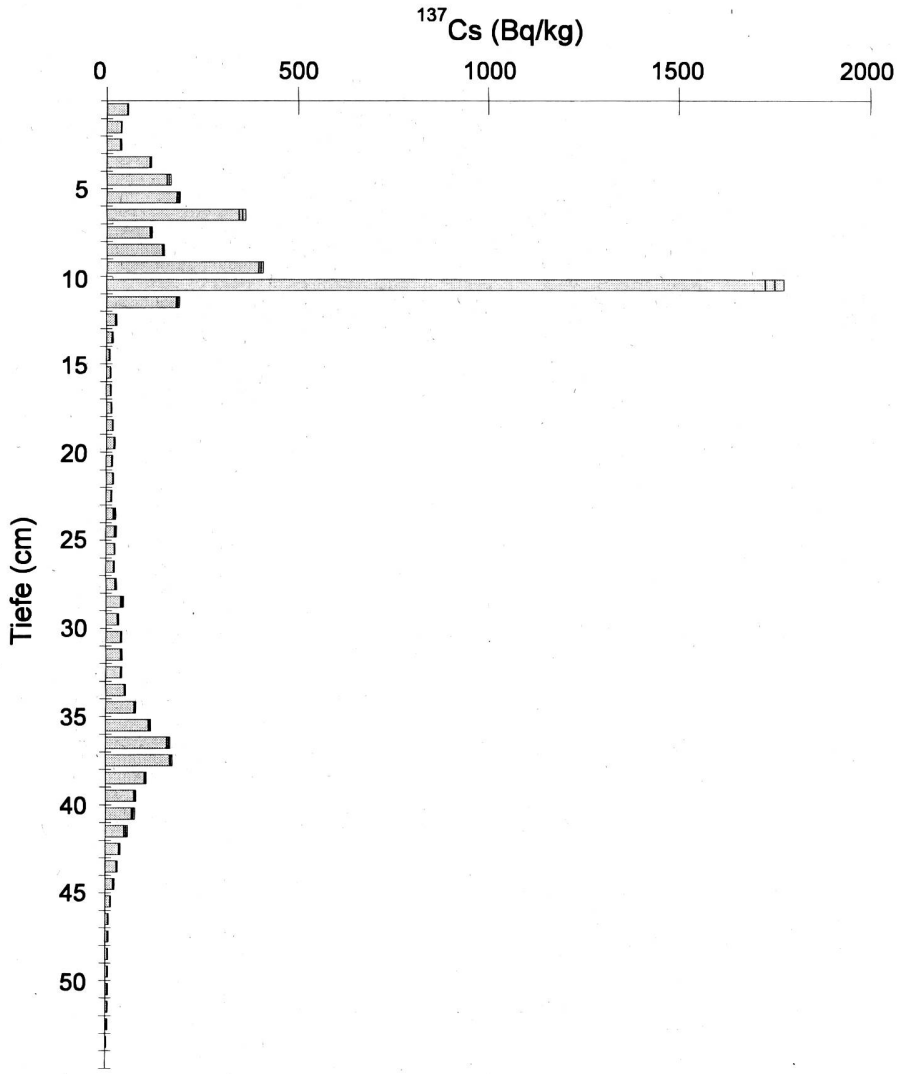


Abb. 5: *Tiefenverteilung von ^{137}Cs in einem Sedimentkern aus dem nordöstlichen Teil des Bodensee-Obersees im Strömungsfluß des Alpenrheins, 9 km vor der Mündung (110 m Wassertiefe) /8/. Die Aktivitäten wurden auf den 1.5.86 zerfallskorrigiert.*

4.3. Bindung im Sediment

Voraussetzung für die Benutzung von ^{137}Cs-Radionukliden zum Datieren von Sedimentschichten ist ihre feste Bindung im Sediment. Abb. 6 zeigt den nicht extrahierbaren Anteil von ^{137}Cs im Sediment nach der Auflösung verschiedener Sedimentbestandteile durch ein fünfstufiges Extraktionsverfahren /1/. Deutlich erkennbar ist die sehr feste Bindung von ^{137}Cs im Bodensee-Sediment im Vergleich zum Sediment eines kleineren oberschwäbischen Sees, dem Schreckensee, und im Vergleich zur Bindungsfestigkeit anderer Radionuklide aus dem Tschernobyl-Fallout wie ^{106}Ru und ^{125}Sb /9/. Grund für diese feste Bindung im Bodensee-Sediment ist das Vorhandensein bestimmter Tonminerale wie Illite im Bodensee, die Cäsium-Radionuklide selektiv und nahezu irreversibel binden können /10/. In Hinblick auf das Ein-

dringen von Radionukliden in Nahrungsketten ist die Kenntnis der Bindungsfestigkeit ebenfalls wichtig.

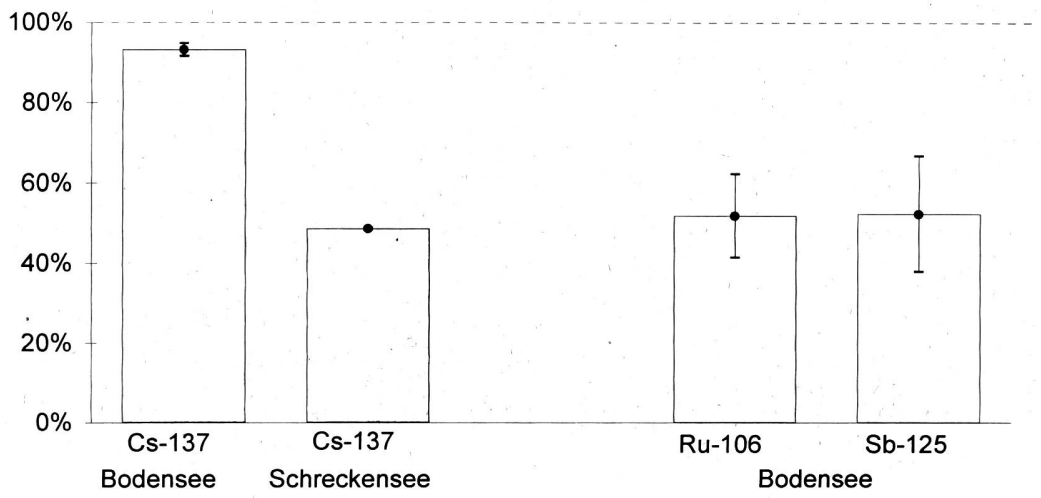


Abb. 6: *Prozentualer Anteil von ^{137}Cs, ^{106}Ru und ^{125}Sb im Rückstand nach Anwendung eines fünfstufigen Extraktionsverfahrens auf Sedimente aus dem Bodensee und dem Schreckensee /9/.*

5. Literatur

[1] Robbins, J.A., Lindner, G., Pfeiffer, W., Kleiner, J., Stabel, H.H., Frenzel, P.: Epilimnic scavenging and fate of Chernobyl radionuclides in Lake Constance. Geochim. Cosmochim. Acta 56, 2339-2361 (1992).

[2] Mangini, A., Christian, U., Barth, M., Schmitz, W., Stabel, H.H.: Pathways and residence times of radiotracers in Lake Constance. In: Large lakes, ecological structure and function (M.M. Tilzer and C. Serruya, eds.), Springer Verlag, Berlin 1990, 245-264.

[3] Santschi, P.H., Bollhalder, S., Zingg, S., Lueck, A., Farrenkothen, K.: The self-cleaning capacity of surface waters after radioactive fallout. Evidence from European waters after Chernobyl, 1986-1988. Environ. Sci. Technol. 24, 519-527 (1990).

[4] Kaminski, S.: Radiocäsium aus dem Tschernobyl-Fallout im Bodensee. gwf Wasser Abwasser 132, Nr. 12, 671-674 (1991).

[5] Lindner, G., Becker, M., Eckmann, R., Frenzel, P., Kleiner, J., Petermann-Seyboldt, D., Pfeiffer, W., Wahl, U., Recknagel, E.: Biological transfer and sedimentation of Chernobyl radionuclides in Lake Constance. In: Large lakes, ecological structure and function (M.M. Tilzer and C. Serruya, eds.), Springer Verlag, Berlin 1990, 265-287.

[6] Lindner, G., Greiner, I., Grom, R., Kaminski, S., Kleiner, J., Kulikov, A., Pfeiffer, W., Robbins, J.A., Seewald, O., Smirnova, O., Wilhelm, Ch.: Transport of Chernobyl radionuclides in freshwater lakes. Proc. Eighth World Congress of the International Radiation Protection Association, Montreal 1993, 1693-1696.

[7] Kaminski, S., Klenk, T., Lindner, G., Richter, T., Schröder, G., Schulz, M.: Die Bedeutung verschiedener Eintragsprozesse für die Verteilung von Cäsium-Radionukliden im Sediment des Bodensees. In: Umweltradioaktivität, Radioökologie, Strahlenschutz (M. Winter, A. Wicke, eds.), Verlag TÜV Rheinland, Köln 1993, 622-627.

[8] Richter, T., Schröder, G., Kaminski, S., Lindner, G.: Transport of particles contaminated with Chernobyl radionuclides into the sediment of Lake Constance. Wat. Sci. Tech. 28, 117-121 (1993).

[9] Lindner, G., Kaminski, S., Greiner, I., Wunderer, M., Behrschmidt, J., Schröder, G., Kress, S.: Interaction of dissolved radionuclides with organic matter in prealpine freshwater lakes. Verh. Internat. Verein. Limnol. 25, 238-241 (1993).

[10] Comans, R. N. J., Haller, M., De Preter, P.: Sorption of cesium on illite: Non-equilibrium behaviour and reversibility. Geochim. Cosmochim. Acta 55, 433-440 (1991).

3.13. INTERCOMPARAISONS ET CALIBRATIONS: CAMPAGNE DE CALIBRATION POUR SPECTROMÈTRES γ

M. Décombaz et J.-J. Gostely

Institut de radiophysique appliquée
Centre Universitaire, 1015 LAUSANNE

3.13.1. Introduction

L'Institut de radiophysique appliquée (IRA) est mandaté par l'Office fédéral de métrologie (OFMET) pour la détermination et la diffusion de l'unité légale d'activité. C'est la raison pour laquelle, début 1993, un service de calibration a été proposé aux laboratoires concernés par la surveillance de la radioactivité dans l'environnement. L'opération avait pour but de favoriser la cohérence des mesures d'activité par spectrométrie gamma en fournissant aux laboratoires intéressés une source de calibration dans une géométrie d'usage courant, et possédant un rattachement international (traceability).

Le certificat d'étalonnage, mentionnant l'activité de référence, a été remis en même temps que la source de calibration; l'opération ne peut donc pas être considérée comme un test interlaboratoire (Ringversuch). Le destinataire était prié d'indiquer la valeur d'activité mesurée avec la calibration en usage et de répondre à un questionnaire sur l'équipement utilisé.

Seize laboratoires (dont sept laboratoires cantonaux) ont participé à la campagne, et comme certains laboratoires ont utilisé la même source sur plusieurs équipements de mesure, ce sont finalement vingt-et-un questionnaires qui ont été évalués.

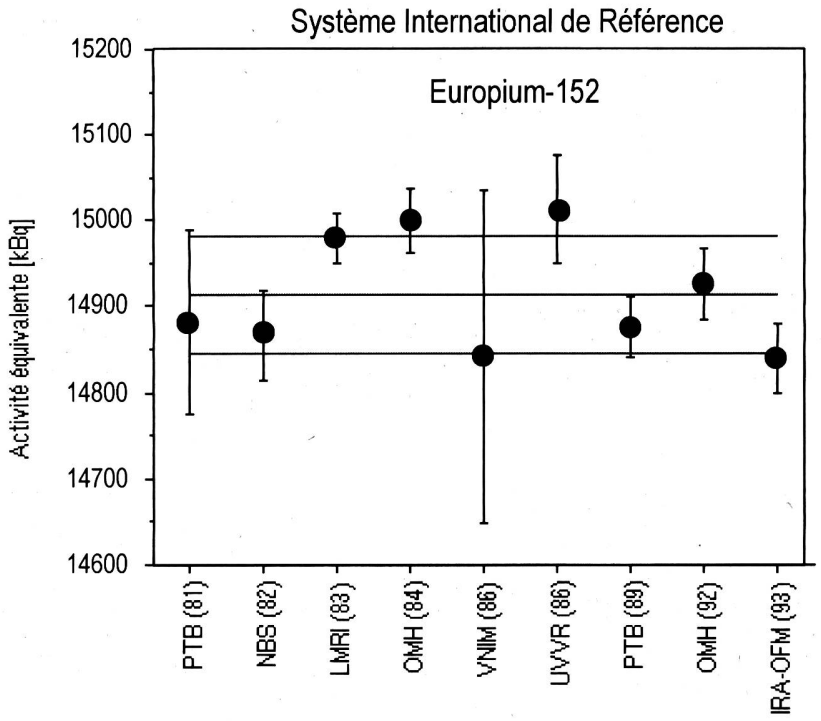
3.13.2. Description des sources de calibration

Le choix s'est porté sur l'europium-152 (période 13.5 ans), nucléide fréquemment utilisé comme étalon multigamma, permettant de calibrer en une seule mesure la plage s'étendant de 100 keV à 1.4 MeV. Ce type de nucléide nécessite que l'on tienne compte des pertes de comptage provoquées par la détection simultanée de deux ou plusieurs photons *(coincidence-summing corrections)*. A cet effet, une table de correction était proposée.

Quant à la géométrie de mesure, il a été décidé d'utiliser la boîte cylindrique en polyéthylène, de contenance 500 ml, du type *Semadeni 0895*, très voisine de la boîte Semadeni 1742 (dite parfois *KUeR 0.5 l Gefäss* et utilisée de façon standard en Suisse), mais de forme mieux définie et reproductible.

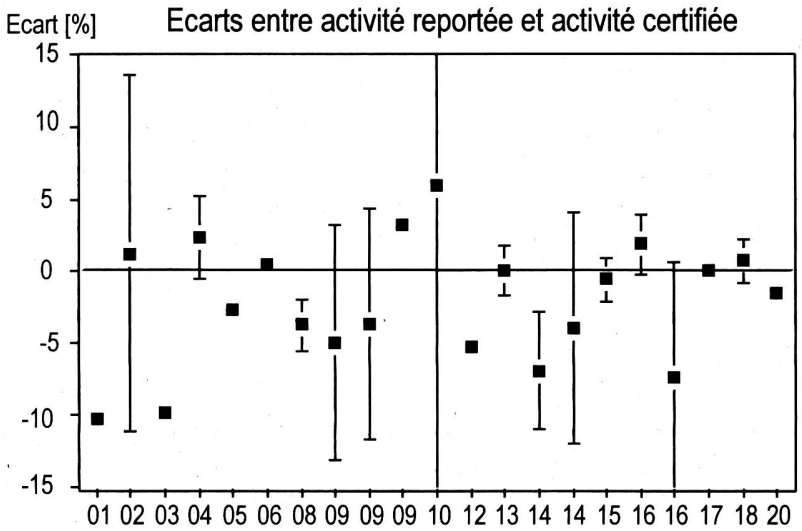
Les sources de calibration contenaient une activité voisine de 5 kBq d'europium-152 dans 500 ml de solution. Les précautions nécessaires (entraîneur en concentration adéquate, étanchéification à la fermeture avec un enduit siliconé) ont été prises pour leur assurer une bonne conservation. Elles ont été fabriquées en mai 1993 et livrées à leur destinataire début juin.

L'activité de référence était certifiée avec une incertitude de 0.3% (un écart-type). Une ampoule contenant une fraction de la solution qui a servi à fabriquer les sources a été envoyée au Bureau International des Poids et Mesures pour enregistrement dans le Système International de Référence (SIR), assurant ainsi le rattachement. Les valeurs des laboratoires nationaux de métrologie qui ont contribué au SIR pour l'europium-152 figurent dans le graphique suivant :



3.13.3. Résultats

Les écarts entre l'activité mesurée par le participant avec sa propre calibration et l'activité certifiée sont représentés ci-après :



Cinq valeurs sont inférieures à 1%, dix valeurs sont comprises entre 1% et 5%, cinq entre 5% et 10%. L'écart maximum est de 10.3%. Ces résultats sont jugés satisfaisants. Les deux points suivants doivent être relevés :

- Souvent (comme le montre le graphique), l'incertitude annoncée n'est pas réaliste : soit trop optimiste, soit surévaluée. Il est suggéré que les laboratoires consacrent plus d'attention au traitement des incertitudes. En particulier, on devrait s'efforcer de fournir une incertitude totale, et pas seulement la composante statistique.

- Dix résultats ont été obtenus en corrigeant (avec les facteurs proposés) les pertes dues aux sommations. L'écart moyen pour ces dix résultats est (0.2 ± 0.7)%, alors qu'il est de (-4.3 ± 1.4)% pour les onze autres. Le fait d'apporter une correction, même approchée (parce que déterminée pour une configuration source-détecteur non parfaitement identique), améliore manifestement l'exactitude, et doit être recommandée.

Par ailleurs, les questionnaires ont fourni plusieurs informations utiles sur les équipements utilisés (détecteurs, logiciels, géométries en usage, origine des étalons). Un rapport [1] est disponible auprès de l'Institut de radophysique appliquée.

3.13.4. Conclusion

Les résultats de cette campagne sont positifs. Ils ont notamment permis d'attirer l'attention des laboratoires sur l'expression de l'incertitude de mesure.

En résumé, les participants, qui représentent une bonne partie des laboratoires impliqués dans la surveillance de la radioactivité en Suisse, ont eu l'occasion de contrôler ou de réajuster leur calibration, pour une géométrie standard, à l'aide d'un étalon suisse rattaché au Système International de Référence.

---

[1] M. Décombaz et J.-J. Gostely
CAMPAGNE DE CALIBRATION ^{152}Eu/1993
Rapport interne, Décembre 1993, Institut de radiophysique appliquée, Centre universitaire
CH-1015 Lausanne

3.14. DIE NATÜRLICHE TERRESTRISCHE UND KOSMISCHE STRAHLUNG IM HAUSINNERN

H. U. Johner, H. Völkle Sektion Überwachung der Radioaktivität
Bundesamt für Gesundheitswesen
ch. du Musée 3, 1700 FRIBOURG

Zusammenfassung

Die Erdkruste enthält seit ihrer Entstehung eine Vielzahl von Radionukliden in örtlich variabler Konzentration. Sie sind allgegenwärtig und somit auch in Baustoffen und zum Teil sogar in unserem Körper vorhanden. Ihr Vorkommen im Boden und in Baumaterialien führt zu einer dauernden Bestrahlung. Eine weitere Komponente zur natürlichen Strahlendosis liefert die kosmische Strahlung. Sie ist ein dauernder Teilchenfluss aus dem Weltraum und von der Sonne. Diese beiden natürlichen Strahlenquellen machen ca. ein Fünftel der durchschnittlichen jährlichen Strahlenexposition in der Schweiz aus.

3.14.1. Einleitung und Zielsetzung

Im Rahmen des BAG-Projektes "Natürliche Strahlung in der Schweiz" sollen die Beiträge der natürlichen Radionuklide und der kosmischen Strahlung zur externen Dosis im Freien und im Hausinnern bestimmt werden. Ein weiteres Ziel ist die Ermittlung der zivilisationsbedingten Einflüsse wie z.B. der Anteil durch die Radionuklide in den Baustoffen sowie die Verminderung der Dosen im Hausinnern infolge Absorption der kosmischen und terrestrischen Strahlung durch die Gebäudehüllen.

Frühere Erhebungen der externen Strahlendosen im Freien fanden in den 60er Jahren statt [1]. Das Schwergewicht lag bei den geologischen Einflüssen und es wurden nur wenige Messungen im Hausinnern gemacht. Im Weiteren bestehen beträchtliche Differenzen zu später ausgeführten Vergleichsmessungen, die zum Teil durch den Fallout der damaligen Bombentests erklärt werden können. Seither wurden in der Schweiz keine systematischen Messungen, insbesondere auch keine entsprechenden Untersuchungen über den Strahlenpegel im Hausinnern, durchgeführt. Mehrere europäische Länder haben in den letzten Jahren solche Untersuchungen vorgenommen, wieweit sich deren Ergebnisse jedoch auf unser Land, mit den z.T. sehr grossen geologischen Variationen übertragen lassen ist unsicher.

Es besteht daher ein Bedarf, die externe Komponente der natürlichen Strahlenexposition besser zu erfassen, insbesondere auch deren Variationsbereich und die Einflussfaktoren. Sie macht rund $^1/_5$ der durchschnittlichen Strahlenexposition der Bevölkerung aus und hat eine nicht zu vernachlässigende zivilisationsbedingte Komponente. Von Interesse ist weiter auch die Frage, wieweit diese Komponente mit erhöhten Radon-Konzentrationen korreliert. Die

---

1) E. Halm, W. Herbst & A. Mastrocola: *"Messung des natürlichen Strahlenpegels in der Schweiz"*. Beilage B Nr. 6/1962 zum Bulletin des Eidg. Gesundheitsamtes (22.12.1962)

seit 1962 beträchtlich verbesserten Messmethoden, der heute geringe Anteil an künstlichen Radionukliden in der Umwelt und ein Vergleich mit ausländischen Messkampagnen rechtfertigen den Zeitpunkt und den Aufwand für eine neue schweizerische Erhebung, wobei mehr Gewicht auf die Dosen im Hausinnern gelegt wird. Eine systematische Messkampagne in nationalem Umfang würde den Rahmen des hier vorgestellten Projektes sprengen. Es sollen jedoch im Sinne einer Vorstudie folgende Fragen geklärt werden:

- Erprobung der Messmethoden und -Kalibrierung der Instrumente,
- Prüfung der Erhebungsmethode anhand einer regional beschränkten systematischen Erfassung (im Kanton Freiburg),
- Grundlagen und Planung einer nationalen Kampagne,
- Übersichtsmessungen in der ganzen Schweiz.

Die bisher ausgeführten Arbeiten umfassen:

- systematische Messungen in einzelnen Häusern,
- Messungen im Freien und in Wohnräumen,
- γ-spektroskospische Messungen des Radionuklidgehaltes in Baustoffen,
- Simulationsrechnungen zur Bestimmung der Dosiskomponenten im Hausinnern.

Im folgenden werden die Zusammensetzung der natürlichen Strahlung im Freien und in Häusern sowie die Resultate der bisher angefallenen Daten und Simulationsrechnungen vorgestellt.

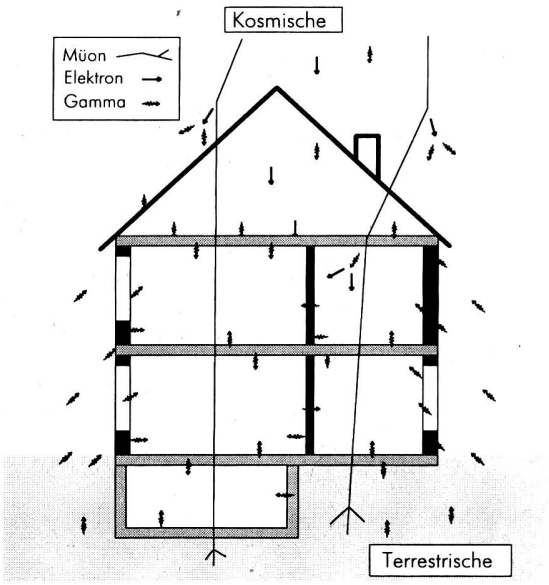
3.14.2. Zusammensetzung der natürlichen Strahlung

Die natürliche Strahlung im Freien setzt sich aus einem kosmischen und einem terrestrischen Anteil zusammen. Bei der kosmischen Strahlung wird zwischen der primären und der sekundären Komponente unterschieden. Die erstere besteht vorwiegend aus hochenergetischen Protonen und leichten Atomkernen, die letztere aus Sekundärteilchen (Neutronen, Photonen, Myonen, Elektronen, Pionen). In der unteren Atmosphäre unterscheidet man zwischen einer harten und einer weichen Komponente. Die erstere besteht hauptsächlich aus einem kontinuierlichen Spektrum von Myonen, von denen die höchstenergetischen hunderte von Metern in die Erdkruste eindringen. Auf ihrem Weg verlieren sie durch Ionisation der durchquerten Materie oder durch Kernkollisionen dauernd an Energie, bis sie schliesslich gestoppt werden. Gammastrahlung und Elektronen, die in solchen Kernkollisionen entstehen tragen ca. 25% zur kosmischen Strahlendosis bei. Diese Komponente wird durch einige zehn Zentimeter Beton vollständig absorbiert. Der Beitrag durch Neutronen und Kernspallationen ist gering. Die kosmische Strahlendosis ist örtlichen und zeitlichen Schwankungen unterworfen, kann aber an einem gegebenen Ort durch einen exponentiellen Anstieg mit der Höhe bis ca. 3000 m über Meer genügend genau beschrieben werden:

$$\dot{D}\,(\mathrm{nSv/h}) = 37 \cdot e^{(0.38 \cdot z)}\ ;\ z = \text{Höhe ü.M. im km.}$$

Die terrestrische Strahlung stammt hauptsächlich von den γ-Strahlern unter den natürlichen Radionukliden der ^{238}U-, ^{235}U-, ^{232}Th-Zerfallsreihen und von ^{40}K. Radiologisch von Bedeutung ist die Verteilung dieser Radionuklide in den obersten rund 50 cm des Erdbodens und in den Baustoffen. Andere primordiale Radionuklide sind entweder ausgestorben oder radiologisch unbedeutend. Durch die kosmische Strahlung werden in der Atmosphäre die sogenannten kosmogenen Radionuklide wie ^{14}C, ^{7}Be oder ^{22}Na kontinuierlich produziert. Von diesen lagern sich die an Aerosole gebundenen auf der Erdoberfläche ab, ihr Beitrag zur Dosisleistung ist aber sehr gering.

Die Natur der Strahlung im Hausinnern ist die gleiche wie im Freien, aber die Anteile können sich deutlich ändern. Die kosmische und terrestrische Strahlung von aussen wird durch die Hauswände teilweise absorbiert. Im Hausinnern ist man dagegen in allen Richtungen von Baumaterial umgeben, was gegenüber aussen den Dosisanteil durch die natürlichen Radionuklide erhöht. Je nach Radionuklidkonzentration und Bauweise kann im Innern eine Erhöhung oder Senkung der Strahlenexposition auftreten.



Figur 1

Ionisierende Strahlung im Hausinnern:
Die primäre und sekundäre kosmische Strahlung sowie die terrestrische Strahlung aus dem Boden wird durch die Gebäudehülle abgeschwächt; andererseits kommt von den Radionukliden in den Baumaterialien ein zusätzlicher Dosisbeitrag. Gesamthaft ist die Dosis im Hausinnern durchschnittlich etwa 20% höher als im Freien.

3.14.3. Die Messgeräte

Als Referenzgeräte wurden in den bisherigen Messungen Reuter-Stokes Ionisationskammern (RSS 111-112) verwendet. Sie haben (für die Ionendosis) eine relativ flache Energieabhängigkeitskurve und lassen sich auf besser als 5% genau kalibrieren.

Ein weiteres Gerät, mit einem NaI-Szintillator ausgerüstet, erwies sich für Dosisleistungsmessungen mit der gewünschten Präzision als weniger brauchbar, ist aber durch die hohe Empfindlichkeit gut geeignet für Übersichtsmessungen und Kontrollen im Gelände und in Gebäuden.

Im weiteren wurden Versuche mit den bei der Umgebungsdosimetrie verwendeten Aluminiumoxyd-TLD (AI_2O_3) gemacht. Ihre Genauigkeit wäre genügend, aber sie sind aus weiter unten erläuterten Gründen in diesem Fall nicht anwendbar.

Durch die erhöhte Nachfrage und Fortschritte in der Messtechnik kommen neue Geräte auf der Basis von organischen Szintillatoren auf den Markt. Sie sollen den Anforderungen der Dosisleistungsmessung im Grundpegelbereich genügen, sind sehr empfindlich und handlich. Ein solches Gerät wird für den Einsatz in diesem Projekt getestet.

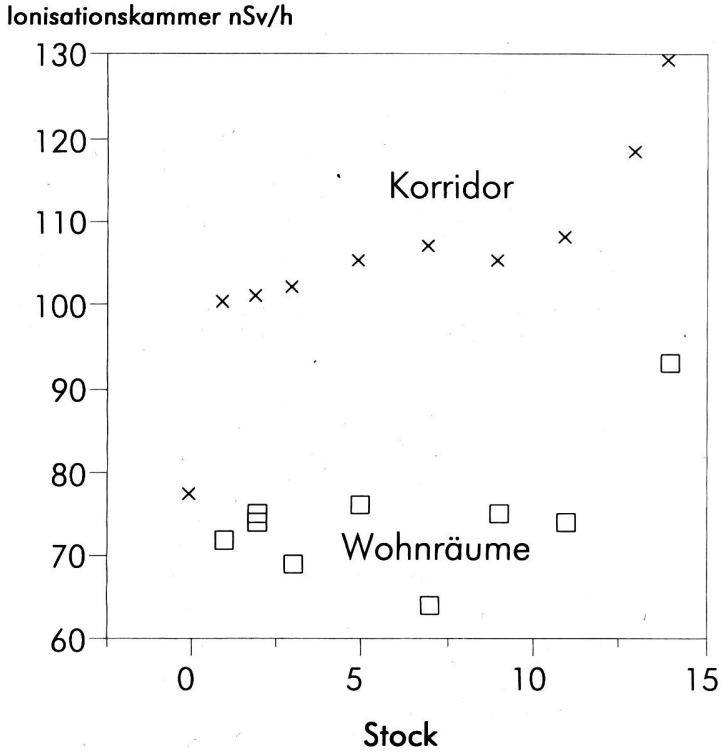
Die Messung der Ortsdosisleistung im Bereich des natürlichen Untergrundes ist mit Unsicherheiten behaftet, die erst bei hohen Dosisleistungen vernachlässigt werden können. Dazu gehören der Eigennulleffekt der Geräte, die von Gerät zu Gerät variierende Ansprechwahrscheinlichkeit für die kosmische Strahlung und die Unsicherheiten der Kalibration bei niedrigen Dosisleistungen. In allen Dosisleistungsbereichen spielen auch folgende Fehlerquellen eine Rolle: Die Energieabhängigkeit eines Gerätes führt bei Strahlenfeldern unterschiedlicher spektraler Zusammensetzung aber gleicher Dosisleistung zu verschiedenen Messwerten. Dies tritt bei variierendem Verhältnis der Konzentration der Thorium- und Uranreihen auf. Die höhere Ansprechwahrscheinlichkeit eines NaI-Szintillators bei niedrigen Energien macht ihn empfindlicher für Streustrahlung als für direkte Strahlung. Die Kalibration mit Direktstrahlung (Shadowshield-Methode) führt daher bei NaI-Szintillatoren oder anderen Detektoren mit starker Energieabhängigkeit zu falschen Resultaten. Im weiteren wird oft in der Vorzugsachse des Detektors kalibriert, was bei anisotroper Empfindlichkeit zu weiteren Fehlern führt. Unabhängig von der Messmethode führt die Plazierung des Detektors bei den Messungen zu diesem Projekt zu Unsicherheiten. Dieser Effekt wird weiter unten ausführlicher beschrieben. Um die erwähnten Fehlerquellen möglichst zu umgehen, werden alle Geräte durch Vergleichsmessungen im Feld auf die Reuter-Stokes Kammer bezogen und entsprechend korrigiert. Die Reuter-Stokes Kammer ist wegen der inherent guten Messqualität als Referenzgerät besonders geeignet und wird regelmässig kalibriert. Ihre Messwerte werden als Exposition in R/h abgelesen, und näherungsweise in diesem Bericht mit einem Faktor 100 (1 μSv/h = 100 μR/h) in die Umgebungsäquivalentdosis in Sievert umgerechnet.

3.14.4. Systematische Messungen in einzelnen Häusern

Die Messungen in einzelnen Häusern bestätigen die Eigenschaften der oben aufgeführten Komponenten der externen Strahlendosen. Die folgende Grafik zeigt ein Beispiel der Verteilung der Dosis in einem 14-stöckigen Gebäude.

Figur 2

Messung der Ortsdosisleistung mit einer Ionisationskammer in Korridor (x) und Wohnräumen (□) eines 14-stöckigen Gebäudes in Freiburg.



An den Messwerten im Korridor ist deutlich der Verlauf der kosmischen Strahlung in Abhängigkeit vom Stockwerk zu erkennen. Der starke Abfall in den drei obersten Stockwerken zeigt die totale Absorption des weichen Anteils durch die obersten Betondecken. Der anschliessende langsame Abfall verdeutlicht die schwache Absorption der durchdringenden harten Komponente. Der tiefe Wert im Erdgeschoss ist auf eine andere Raumgeometrie zurückzuführen. Ein weiterer Effekt tritt durch unterschiedliche Radionuklidkonzentrationen in den Wand- und Bodenmaterialien auf. Die Dosisleistung in einem Raum hängt von seiner Grösse ab. Ist z.B. die Radionuklidkonzentration im Boden (Beton) kleiner als in den Wänden (Backstein), so nimmt mit wachsender Raumgrösse die Dosisleistung ab, weil der Raumwinkel für die Wände stetig abnimmt. Dies erklärt die höheren Werte im Korridor verglichen mit den Wohnräumen, die im allgemeinen deutlich grösser sind. Aus dem gleichen Grund, der Änderung des Raumwinkels der Wände, ändert sich die Dosisleistung mit dem Abstand von den Wänden, was durch die stärker streuenden Werte in den Wohnräumen illustriert wird. Die Messpositionen in den Wohnräumen variieren wegen der Möbilierung stärker als im Korridor. Bemerkenswert ist auch die Variation von 100% zwischen dem niedrigsten und dem höchsten Wert in diesem Gebäude.

Die wichtigsten Faktoren, die einen Einfluss auf die Dosisleistung im Innern haben, sind:

- das Baumaterial,
- die Raumgeometrie,
- die Anzahl Stockwerke eines Hauses,
- das Stockwerk, in dem die Messung durchgeführt wird.

Daraus kann man für eine Messkampagne folgende Konsequenzen ziehen:

- In einer Wohnung ist in allen regelmässig bewohnten Räumen zu mesen.
- Die Messungen müssen an den wirklichen Aufenthaltsorten der Bewohner gemacht werden, also nicht nur in der Raummitte, sondern auf Stühlen, Polstergruppen und auf den Betten.
- In mehrstöckigen Gebäuden sollte möglichst auf allen Stockwerken gemessen werden.
- Zur Berechnung von verlässlichen Mittelwerten, sind die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der Bewohner in den verschiedenen Räumen zu bestimmen.
- Messungen mit TLDs sind nur für die Personendosimetrie sinnvoll, weil die richtige Plazierung aus den obgenannten Gründen schwierig ist. In den Schränken oder Kommoden sind sie zu nahe an den Wänden angebracht.

Für eine gute Statistik sind somit viele Messungen erforderlich, da zum einen keine vereinfachende Annahmen gemacht werden können und zum anderen γ-spektroskopische Untersuchungen zeigten, dass die Radionuklidkonzentration in Baustoffen allein im Kanton Freiburg bis zu einem Faktor 10 variieren kann.

3.14.5. Simulationsrechnungen

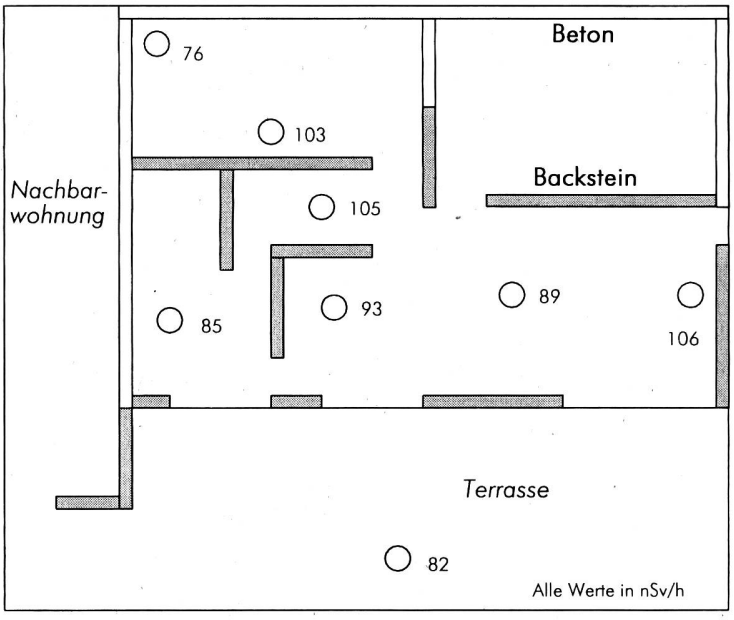
Im Freien können die einzelnen Komponenten der externen Dosis ohne Schwierigkeiten bestimmt werden, da die Intensität der kosmischen Strahlung bekannt ist und damit von Gesamtwert subtrahiert werden kann. Im Innern von Häusern ist dies messtechnisch nur mit grossem Aufwand möglich. Zum einen ist der Anteil der kosmischen Strahlung nicht mehr bekannt und mit der Geometrie des Raumes ändert sich der Anteil an gestreuten Photonen, zum anderen ist der Beitrag der terrestrischen Strahlung von aussen nicht von jenem der Baustoffe unterscheidbar. Um den Einfluss der Radionuklidkonzentration der Baumaterialien auf die Dosisleistung zu bestimmen, wurde deshalb ein einfaches Simulationsprogramm geschrieben. Zur Berechnung der Dosisleistung werden die Wände und Böden als eine endliche Anzahl von Punktquellen betrachtet und die Selbstabsorption im Baumaterial berücksichtigt. Dem gestreuten Anteil der Strahlung wird durch Aufbaufaktoren Rechnung getragen. Die Dosisleistung an einem Punkt wird schliesslich aus dem Photonenfluss berechnet. Die Präzision dieser Methode wird vor allem durch zwei Einflüsse beschränkt. Zum einen liefert die γ-Spektroskopie im Untergrundbereich unsichere Werte der Radionuklidkonzentration, zum anderen kann der Anteil an gestreuten Photonen nur für einfache Geometrien berechnet werden. Dies führt zu Abweichungen bis 25%, die aber durch Vergleichsmessungen auf einige Prozent reduziert werden können. Als sehr nützlich erwies sich das Programm bei :

- der Interpretation der systematischen Messungen in einzelnen Häusern
- den Baumaterialvergleichen
- der Bestimmung der Anteile durch verschiedene Baumaterialien
- den Dosisleistungsabschätzungen in verschiedenen Fällen, wie Dosisleistungen in Bergwerken oder Erhöhung der Dosisleistung durch uranhaltige Glasuren von Keramikplatten.

Es zeigte sich auch, dass der Beton, obwohl er geringere Radioaktivitätswerte aufweist als Backsteine, einen grösseren Einfluss auf die Dosisleistung hat als die letzteren. Dies erklärt sich durch die grössere Masse an Beton die in einem Haus verarbeitet wird und durch die teilweise "Transparenz" (ca. 25%) der Backsteine für Strahlung aus anliegenden Zimmern.

Figur 3

Simulationsrechnung für die Ortsdosisleistung (nSv/h) im Innern eines Neubau-Hauses: Dosisbeiträge durch Radionuklide in den Baustoffen (Beton, Backstein) bzw. Schwächung der kosmischen und terrestrischen Strahlung durch die Gebäudewände.



Figur 3 zeigt die Simulationsrechnung für eine Wohnung. Der Einfluss der Baumaterialien ist deutlich erkennbar: An den Betonwänden sind die Werte tiefer als an Backsteinwänden, in kleinen Räumen ist die Dosisleistung höher als in grossen und in der Raummitte sind die Werte tiefer als in der Nähe der Wände.

3.14.6. Erste Erhebungen im Kanton Freiburg

a) Dosismessungen

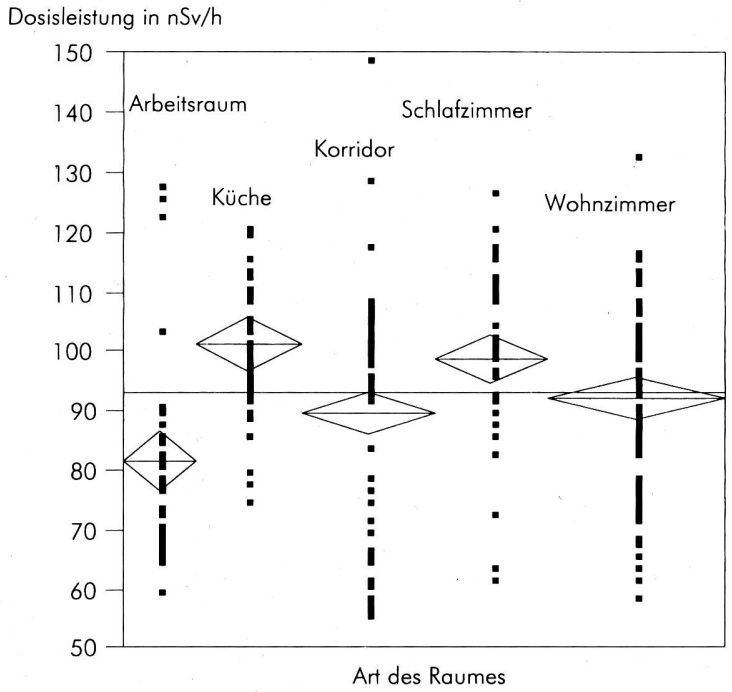
Es wurden bisher in 130 Wohnungen und an 160 Orten im Freien im Kanton Freiburg Messungen gemacht. Obwohl die Dosisleistungen im Innern um ca. 20% höher waren als im Freien, lagen alle Werte innerhalb des üblichen Variationsbereiches der natürlichen Strah-

lung. Diese Messwerte ergeben einen Medianwert von 92 nSv/h (≙ 0.81 mSv/a), wobei 95% der Werte zwischen 62 und 147 nSv/h liegen. Die Radonwerte in Wohnräumen aus dem Kanton Freiburg ergeben zum Vergleich einen Medianwert von 45 Bq/m^3 (= 1.1 mSv/a) mit 95% der Werte zwischen 15 und 240 Bq/m^3. Obwohl die externe Strahlung und das Radon primär aus dem Erdboden stammen, ist der Variationsbereich beim Radon deutlich grösser. Dies hängt damit zusammen, dass beim Radon zusätzlich der Transport und damit die Gas-Permeabilität des Bodens sowie die Eintrittspfade ins Hausinnere eine wichtige Rolle spielen.

Die Einflüsse von Baumaterial und Bauweise konnten bestätigt werden. Figur 4 zeigt die Dosisleistungsverteilung nach Raumtyp. Die niedrigeren Werte von Korridoren und Arbeitsräumen erklären sich durch die häufigere Verwendung von Beton. Die leicht erhöhten Werte von Küchen und Schlafzimmern lassen sich auf die kleineren Raumdimensionen und die Verwendung von Ton- und Natursteinplatten oder Keramikfliesen [2] in den Küchen zurückführen.

Figur 4

Häufigkeitsverteilung von Ortsdosismesswerten (nSv/h) in 130 Wohnräumen im Kanton Freiburg: Wertebereiche (Punkte) sowie Mittelwert mit Standardabweichung (Rhomben) in verschiedenen Räumen.



---

2) Die üblicherweise für Küchen und Badezimmer verwendeten Keramikfliesen enthalten geringe Mengen an natürlichem Uran (ca. 0.1 Bq/g), da das für die Glasur verwendete Zirkonsilikat eine leichte Uranverunreinigung aufweist. Die externe Dosis wird durch solche Plättli allerdings nur geringfügig erhöht: In einer an sämtlichen Wänden mit solchen Plättli belegten Küche ist mit einer Zunahme der Ortsdosisleistung um etwa 5 nSv/h d.h. um höchstens 5-10% zu rechnen. Die absichtliche Beimischung von Uran bei der Herstellung der Glasur, zur Erziehlung besonders schöner Farben, ist dagegen nicht zulässig. Solche Fliesen dürfen in der Schweiz nicht verkauft werden; sie würden zu deutlich höheren Strahlendosen führen. Das BAG führte vor einigen Jahren eine Kampagne zur Entfernung und Beseitigung noch vorhandener solcher "Uran-Plättli" durch.

Zusätzlich ergaben sich einige neue Erkenntnisse:

- In Fabrikgebäuden liegt die Dosisleistung tiefer als der Durchschnitt, in Ein- und Zweifamilienhäusern etwas höher. Die niedrigeren Werte in Fabrikgebäuden sind auf die häufige Verwendung von Beton und Leichtbaumaterialien sowie das grössere Gebäudevolumen zurückzuführen. Die erhöhten Werte in Ein- und Zweifamilienhäusern im Vergleich zu Gebäuden mit mehreren Stockwerken erklären sich durch die geringe Absorption der kosmischen Strahlung.
- Die Werte im Freien im Kanton Freiburg sind in der Agglomeration (geteeter, gepflästerter oder Kies/Schotter-Untergrund) gegenüber dem freien Feld, nur leicht erhöht, d.h. die zivilisatorischen Einflüsse sind im Freien gering.
- Das Verhältnis der Ortsdosen im Hausinnern zu derjenigen im Freien, der sogenannte Hausing-Factor von etwa 1.2, stimmt für alle Freiburger Gemeinden innerhalb des Fehlerbereiches überein. Die Messungen im Freien scheinen somit eine zuverlässige Abschätzung für die Dosisleistung im Inneren zu ermöglichen.

Der Housingfactor basiert auf dem Verhältnis zwischen den Radionuklidgehalten des Bodens im Freien neben dem Haus und demjenigen der Baustoffe und kann somit a priori nicht als konstant angenommen werden. Die gute Übereinstimmung der Werte in den verschiedenen Gemeinden kann aber durch die Herkunft der Baustoffe erklärt werden. Der Naturboden und die zur Herstellung des Beton verwendeten Kiesvorkommen stammen in grossen Teilen der Schweiz aus Gletscherablagerungen, die grossflächig ähnliche Radionuklidkonzentrationen aufweisen. Dies ist für die zur Herstellung der Backsteine verwendeten Lehme nicht der Fall. Da aber der Beton durch seinen massenmässig grossen Anteil am Bauvolumen den grösseren Beitrag zur Dosisleistung liefert und die Lehmvorkommen grösstenteils von Gletscherablagerungen überdeckt sind, kann man innen und aussen mit ähnlichen Radionuklidzusammensetzungen rechnen. Der Housingfactor wird somit zu einer Grösse, die hauptsächlich die geometrischen Verhältnisse beschreibt, welche für einen bestimmten Haustyp nicht stark variieren, was seine Brauchbarkeit für Abschätzungen der Dosisleistung im Hausinnern erklärt.

Aus den bisherigen Messungen kann für den Kanton Freiburg ein Mittelwert für die Dosisleistung im Hausinnern von 0.80 mS/Jahr hergeleitet wurden.

Dabei wurden folgende Annahmen bezüglich Aufenthaltszeit gemacht:

• 4.8 h pro Tag im Freien	=	20 %	=	34 h/Woche
• 8 h pro Tag im Schlafzimmer	=	33 %	=	55 h/Woche
• 8.5 h pro Arbeitstag in einem Arbeitsraum	=	25 %	=	42 h/Woche
• 5.2 h pro Tag (Rest) in Wohnzimmer oder Küche	=	22 %	=	37 h/Woche
	=	100 %	=	168 h/Woche

Im weiteren wurden die Messwerte nach Haustyp, Anzahl Messungen pro Wohnung, Anzahl Wohnungen im Haus und Anzahl Einwohner in der Gemeinde gewichtet.

b) Radionuklide in Baustoffen

Die γ-spektroskopischen Untersuchungen an Baumaterialien im Kanton Freiburg zeigen gegenüber dem Schweizer Mittel leicht erhöhte Werte beim Radionuklidgehalt der Backsteine und deutlich niedrigere beim Beton. Der Unterschied von einem Faktor 4 in der Radionuklidkonzentration der beiden wichtigsten Baustoffe erklärt die starke Variation der Dosisleistung in Abhängigkeit von der Bauweise. Die folgende Tabelle gibt einen Vergleich zwischen den Werten im Kanton Freiburg, in der Schweiz und im Ausland.

Radionuklidgehalt in Baustoffen *(Durchschnittswerte bzw. Wertebereiche (Italien))*

Land	Backstein			Beton			Quelle
	U	Th	K	U	Th	K	
Kanton Freiburg	57	52	825	14	8	137	SUER
Schweiz	46	46	708	27	19	405	[6]
eh. DDR	49	48	745	30	23	452	[1]
Deutschland	59	67	673	15	15	259	[2], [6]
Italien a)	28-81	40-148	365-1060	10-100	10-240	4-780	[3]
Niederlande	39	41	560	10	13	140	[6]
Schweden	96	127	962	48	73	818	[6]
USA	44	43	525	15	16	216	[6]
Griechenland	47	24	668	46	7	246	[4]
Österreich	39	52	514	24 b)	19 b)	355 b)	[5]
"	--	--	--	44 c)	39 c)	418 c)	[5]

Die Werte für den Kanton Freiburg für Backstein liegen im Bereich des Internationalen Mittels, jene für Beton etwas tiefer. Es ist zu bemerken, dass die Werte stark um das Mittel schwanken. In ausgesuchten Proben von Sandstein aus dem Kanton Freiburg, der aber nicht verarbeitet wird, werden bis zu 40-fach höhere Konzentrationen der Uranreihe gefunden. Zusätzlich ist hier das Gleichgewicht der Uranreihe, insbesondere bezüglich Radium gestört, was auf chemischen Transport in den letzten Jahrtausenden hindeutet, ein geologisch rezenter Prozess.

3.14.7. Weiteres Vorgehen

In erster Linie ist eine grössere Anzahl Messungen erforderlich, um eine statistische Signifikanz zu erreichen. Dabei sind die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten für die verschiedenen Gebäude und Räume zu berücksichtigen. Ferner sollten auch die weniger verbereiteten Haustypen untersucht werden. Als Vorarbeit für eine umfassende nationale Kampagne sind Übersichtsmessungen in der ganzen Schweiz geplant. Systematische γ-spektroskopische Untersuchungen an Baumaterialen sollen zusammen mit den Simulationsrechnungen zur Überprü-

---

a) Die für Italien angegebenen Variationsbereiche gelten entsprechend auch für die anderen Länder
b) Berechnet aus Gesteinsproben
c) Blähbeton

fung der Dosisleistungsmessungen dienen. Eine weitere Kontrolle soll mit TLD-Personendosimetern durchgeführt werden.

Literatur

[1] Konzentrationen natürlicher Radionuklide in den Baumaterialien der ehemaligen DDR, R. Schwanse; Jahresbericht 1991, BfS, S. 150 ff.

[2] Der Einfluss der natürlicher Radioaktivität der Baustoffe auf die Strahlenexposition der Bevölkerung. Keller et al., Bauphysik 5. Jahrgang Berlin, April 1983, Heft 2.

[3] Evaluation of gamma and alpha doses due to natural radioactivity of building material. Bruzzi et al. J. of Radiol. Prot., 12/2 (1992) pp. 67-76

[4] Health Physics 47/5 (1984) pp. 775-783.

[5] E. Tschirf, W. Baumann und R. Nissner: Ermittlung der Bevölkerungs-Strahlendosis in Österreich durch die natürliche äussere Strahlung in Innenräumen. Forschungsbericht 5/80; Bundesminister für Gesundheit und Umweltschutz.

[6] RADONPROGRAMM SCHWEIZ "RAPROS", BERICHT ÜBER DIE ERGEBNISSE DER JAHRE 1987 -1991, Bundesamt für Gesundheitswesen, Bern, März 1992

3.15. ANALYTISCHE METHODEN ZUR EMISSIONS-, IMMISSIONS- UND INKORPORATIONSÜBERWACHUNG AM PSI

J. Eikenberg, S. Bajo, J. Hitz, M. Rüthi, I. Zumsteg
Paul Scherrer Institut 5232 Villigen PSI

3.15.1. Einleitung

In der Abteilung Strahlenhygiene befasst sich die Gruppe Radioanalytik mit radioanalytischen Analyse- und Messmethoden zum Zwecke der Emissionsüberwachung der nuklearen Anlagen am PSI- sowie der Immissionsüberwachung der Umgebung des PSI und des KKW Beznau. Darüber hinaus werden regelmässig Inkorporationsmessungen durchgeführt und Spezialaufträge für das PSI sowie andere Stellen des Bundes erledigt (z.B. Analysen polizeilich beschlagnahmter radioaktiver Quellen [1], Radionuklidbestimmungen wegen Brennstoffschäden in Kernkraftwerken und Störereignissen in nuklearen Anlagen, Untersuchungen von Baustoffproben, Dentalkeramiken, Nuklidreinheitsbestimmungen, etc.).

In der noch verfügbaren Zeit liegen die Schwerpunkte der Tätigkeiten einerseits bei der Anwendung und Entwicklung chemischer Separationsverfahren (z.B. $^{90}Sr/^{90}Y$ in Umweltproben) und andererseits bei der Optimierung analytischer Messtechniken. Da bei vielen Applikationen insbesondere bei a-Analysen sehr geringe Aktivitäten nachzuweisen sind, und zudem verschiedenste Nuklide identifiziert werden sollen, wurden die Low-Level Messtechniken verfeinert und hochauflösende Detektoren in Betrieb genommen. Im Rahmen des Programmes zur Qualitätssicherung wird regelmässig an nationalen und internationalen Ringversuchen teilgenommen [2, 3, lab code 55]. Der Einsatz moderner Messtechniken einerseits und Implementierung radiochemischer Trennverfahren andererseits macht zudem eine Beteiligung an verschiedenen Forschungsprojekten möglich [4]. Erwähnenswert ist hier ein umweltrelevantes Forschungsprojekt in Zusammenarbeit mit dem CNRS-Strasbourg, bei dem Wasser-Gesteins-Wechselwirkungen und Austauschraten zwischen Flusswasser und Grundwasser in einer mit Schwermetallen belasteten Region im oberen Rheintal mit chemischen Methoden, stabilen Isotopensystemen (Rb-Sr, Pb-Pb) und den U- und Th-Zerfallsreihen untersucht wird.

3.15.2. Emissionsüberwachung

Im Areal PSI-Ost werden kontinuierlich die Abgaben radioaktiver Stoffe aus den Nuklearanlagen überwacht. Dies betrifft (a) die Kontrolle der flüssigen Abgaben in Form von Wasserproben und (b) die Ueberwachung der Abluftsysteme in Form von Luftfiltern. Neben der Emissionsüberwachung wird auch die Raumluft in verschiedenen Anlagen überwacht wie z.B. in den Hotzellen der PSI-Isotopenproduktion. Aus den Ergebnissen der Analysen werden alle Abgaben bilanziert und an die zuständige Kontrollbehörde (HSK) weitergeleitet. Das Vorgehen bei der Kontrolle der Abgaben ist einer schematischen Zusammenstellung im HSK-Reglement 2/165 [5] zu entnehmen.

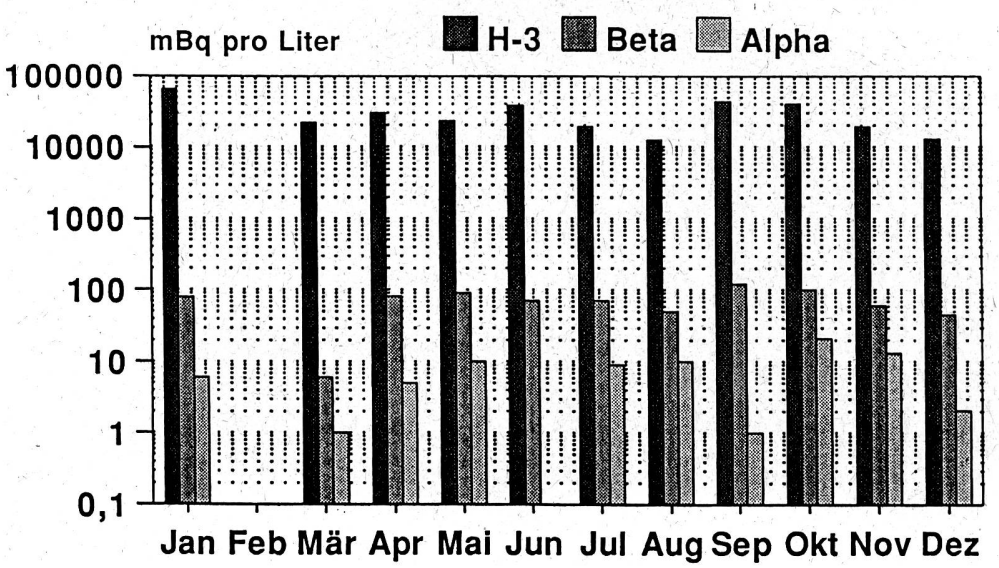
3.15.3. Immissionsüberwachung

In der Umgebung des PSI und des KKW Beznau werden an verschiedenen Standorten regelmässig Proben zur Ueberwachung der Radioaktivität in der Umgebung erhoben. Die Standorte, Zeitpunkte der Probenerhebung und die Art der Analysen sind im HSK-Reglement 2/165 [5] beschrieben. Folgende Untersuchungen sind in dem Programm enthalten:

β-Totalaktivität in Aerosolen: An verschiedenen Standorten befinden sich in etwa drei Meter über dem Boden Vaselin-Staubfangplatten. Die innerhalb eines Zeitraums von 14 Tagen deponierten Aerosole werden im Ofen verascht und anschliessend ein Präparat für die β-Totalmessung im Low-Level Proportionalzähler hergestellt. Uebersteigt die β-Aktivität einen Schwellenwert von 15 Bq/m^2, sind zusätzlich weitere γ-spektrometrische Messungen durchzuführen.

Radioaktivitätsbestimmungen in Fluss- und Regenwasser: Wöchentlich werden Flusswasserproben an verschieden Stellen im Unterlauf der Aare gezogen und auf ^3H (Direktmessung) und die restliche Probe nach vollständiger Eindampfung auf β-Totalaktivität untersucht. Zudem werden die monatlichen Niederschläge aus Regensammlern auf 3H und α- und β-Totalaktivität analysiert (s. Fig. 1).

$^{90}Sr/^{90}Y$-Analysen von Boden- und Grasproben: Neu in das PSI-Programm zur Umgebungsüberwachung wurde die Bestimmung der Aktivität der reinen β-Strahler $^{90}Sr/^{90}Y$ in Boden- und Grasproben in der Umgebung des KKW Beznau und des PSI aufgenommen. Bei dem Verfahren basierend auf der Methode von Meier und Scholl [6] wird das kurzlebige ^{90}Y (welches im radioaktiven Gleichgewicht mit dem langlebigen Vorgängernuklid ^{90}Sr ist) über Flüssig- Flüssig- Extraktion mit Tributylphosphat (TBP) absepariert und anschliessend in die wässerige Phase zurückextrahiert. Nach Prezipitation als Oxalat wird die β-Aktivität im Low-Level-Proportionalzähler bestimmt. Bei stärker aktiven Proben (z.B. Böden in der Umgebung von Chernobyl) kann auf eine Schnellmethode über Cerenkov-Messung im Flüssigkeitszintillationszähler zurückgegriffen werden. Zur Ueberprüfung der Resultate der TBP-Methode, Sensitivität der Analysengänge und der chemischen Wiedergewinnungsraten wurden in Vorstudien verschiedene Parameter wie Träger- oder Säuregehalt untersucht. Hohe Extraktionsausbeuten über 90% wurden im 11 molaren HNO_3-Medium erreicht. Es stellte sich ferner heraus, dass eine Zugabe des Y-Trägers bis 20 mg das Verteilungsverhältnis von Y zwischen wässeriger und organischer Phase nur insignifikant beeinflusst.



Regen 1993
PSI-OST

Figur 1: *Resultate der ^3H, α- und β-Totalbestimmungen an Regenwasserproben auf dem Ost-Areal des PSI. (Februar 1993: keine Niederschläge).*

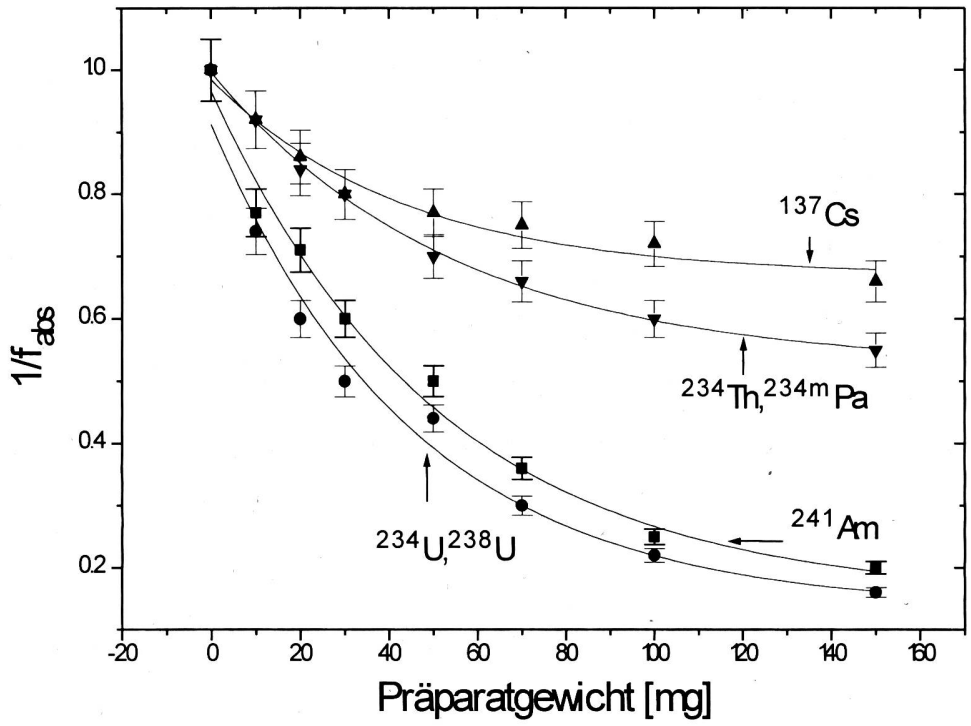
Umweltuntersuchungen nach Störereignissen: Störereignisse in Kernanlagen, der Isotopenproduktion und der Industrie können zur Freisetzung von Radioaktivität in die Umwelt führen. Am PSI kommt bei derartigen Fällen eine Strahlenschutzequippe zum Einsatz, die - unterstützt durch sofortige Modellprognosen über die laterale Ausbreitung - gezielt Proben erhebt und Ortsdosisleistungen an potentiell kontaminierten Stellen misst [7]. Derzeit läuft eine Untersuchung in Zusammenarbeit mit der HSK zur Evaluation der Fragestellung, ob es prinzipiell möglich ist, die nach einem Reaktorunfall mit gezieltem Venting (zur Druckentlastung im Containment) potentiell freigesetze Menge an Radioaktivität durch in-situ g-Spektrometrie zu erfassen. Zu diesem Zweck wurden direkt (24 h) nach einem Shutdown des Forschungsreaktors SAPHIR am PSI hochaktive Brennelemente über ein spezielles Kollimator-System im Reaktorwasser mit einem hochauflösenden Reinstgermanium Spektrometer untersucht. Durch Erstellung einer geeigneten Nukliddatenbank und moderner Auswertesoftware gelang es, die Photopeaks (280 Linien) mehrheitlich zu identifizieren. In weiteren Modellrechnungen wird nun geprüft, wie weit sich aus den Ergebnissen der vorwiegend kurzlebigen Nuklide, Prognosen zur Abschätzung der Aktivitäten langlebiger, umwelrelevanter Nuklide wie ^{137}Cs oder reiner β-Strahler (^{90}Sr) ziehen lassen.

3.15.4. Inkorporationsüberwachung

Ganzkörper- und Schilddrüsenmessungen: Der Nachweis inkorporierter Photonenstrahler erfolgt direkt, d.h. bei der Schilddrüsenmessung je nach Härte der γ-Strahlung mit Szintillationszählern, wobei der Detektor direkt vor die Schilddrüse positioniert wird, um einen möglicht grossen Teil des Strahlenfeldes einzufangen. Typische Nuklide, die in der Radiopharmazie- und -Medizin zum Einsatz kommen, sind ^{123}I, ^{125}I und ^{131}I. Für die Ganzkörpermessungen steht eine Abschirmeinrichtung aus radioaktiv nicht kontaminiertem Stahl zur Verfügung. Derzeit werden die Messungen noch mit einem NaI-Detektor durchgeführt, in Planung ist eine Bestückung der neuen Abschirmeinrichtung für Ganzkörpermessungen in der kürzlich erbauten Schutzanlage des PSI ("Genora") mit einem Halbleiter-Detektor aus Reinstgermanium. Derzeit werden am PSI jährlich ca. 1000 Ganzkörper- und Schilddrüsenmessungen durchgeführt.

α-Analysen: Ueber Atem-, Nahrungsweg oder Verletzung aufgenommene α-Strahler tragen mit hohen Dosisgewichtsfaktoren und mitunter sehr langen Verweilzeiten im Körper wesentlich zu den akkumulierten Organdosen bei. Da im Falle einer Inkorporation eines α-strahlenden Nuklides ein Bruchteil der aufgenommenen Aktivität kontinuierlich über Stuhl und Harn wieder ausgeschieden wird, werden zur routinemässigen Ueberwachung von beruflich strahlenexponierten Personen, die potentiell mit α-Strahlern in Berührung kommen können, periodisch Urinproben erhoben und im Radioanalytiklabor des PSI auf α-Totalaktivitäten analysiert. Jährlich fallen mehr als 600 Proben an, was mit grossem Arbeits- und Zeitaufwand verbunden ist. In der Literatur finden sich verschiedene, meist zeitaufwendige Präparations- und Extraktionsmethoden, die zur Minimalisierung der Selbstabsorption von α-Partikeln bei der Messung mit kommerziellen Gas-Proportionalzählern (s. Fig. 2) oder Si-Sperrschicht-Dioden notwendig sind [8]. Bei der bislang am PSI angewendeten Methode erfolgte die Aktinidenseparation nach Zerstörung der organischen Bestandteile, Fällung, Mineralisation und pH-Wert-Einstellung über Glasfaserfilter, die anschliessende Messung im Proportionalzähler nach der Methode von Eakins und Gomm [9].

Bei Proportionalzählern mit 2π-Geometrie sind Zählausbeuten bis 50% erreichbar, die chemischen Verluste von Am, Pu, Np, U liegen nach [9] zwischen 10 und 50%. Dies bedeutet, dass bei der GF-Methode von den Aktiniden nur etwa 1/3 der Aktivität direkt nachgewiesen werden kann, wohingegen die LS-Methode nahezu verlustfrei ist (s.u.).

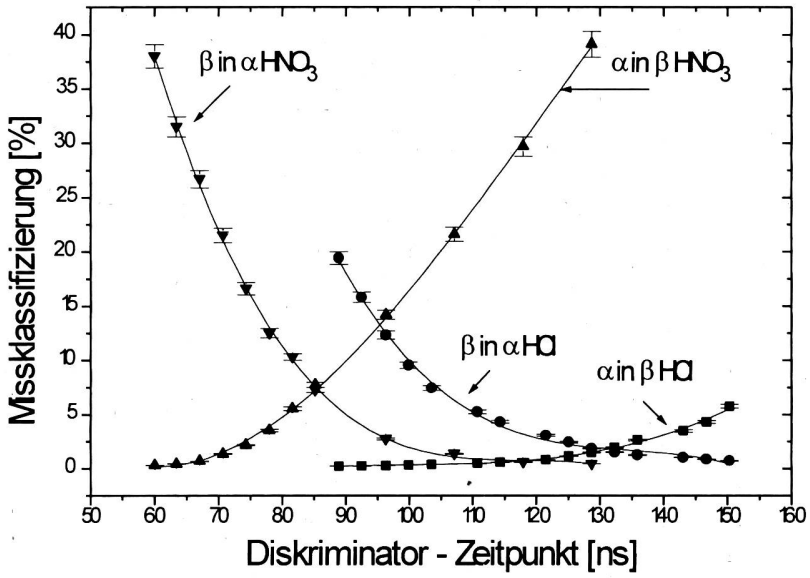


Figur 2: *Abhängigkeit des Korrekturfakors für Selbstabsorption ($1/f_{abs}$) vom Präparatgewicht für die α-Strahler ^{234}U, ^{238}U und ^{241}Am und die β-Strahler ^{234}Th, ^{234}Pa und ^{137}Cs beim verwendeten Gas-Proportionalzähler. Eine deutliche Reduktion der registrierten Zerfälle mit zunehmenden Präparatgewicht ist besonders bei den α-Strahlern offensichtlich.*

Ein neues und wesentlich effizienteres Verfahren wurde kürzlich eingeführt, bei welchem die α-Aktivität über Flüssigkeitzsintillationszählung (LSC) mit integrierter α/β-Diskriminierung bestimmt wird. Das Verfahren basiert auf einer einfachen Oxidation der organischen Substanzen, Phosphatfällung der Aktiniden, Nassveraschung, Aufnahme des Rückstandes in 0.1 m HCl, Mischung mit einer Szintillationsflüssigkeit und anschliessende Messung im α/β-Modus. Durch Kombination des chemischen Verfahrens mit der LS-Messtechnik gelang es, Quencheffekte zu minimalisieren und eine α-Nachweisgrenze von 5 mBq pro Liter Urin in 8 Stunden Messzeit zu erreichen. Die neue Methode liefert sehr präzise Resultate, weil a) die chemischen Rückgewinnungsraten der Aktiniden nahezu bei 100% liegen und b), störende β-Emitter wie ^{3}H, ^{40}K und ^{137}Cs (α/β-Verhältnis in Urin in der Regel $< 10^{-4}$) durch chemische Abseparation um drei Grössenordnungen reduziert werden.

Prinzip bei allen LS-Techniken ist die Konvertierung von Strahlungsenergie mit Hilfe einer Szintillationsflüssigkeit in Licht (Photonen). Die Diskriminierung der β- von den α-Partikeln erfolgt über die sogenannte Pulsformanalyse (engl. pulse decay analysis, PDA), die den Effekt der verschiedenen Abklingzeiten der Photopulse, verursacht durch die unterschiedlichen Teil-

chensorten, ausnützt. Durch Festlegung eines Diskriminator-Zeitpunktes werden die vom Photomultiplier registrierten Spannungsstösse in einen α- bzw. β-Vielkanalanalysator weitergeleitet [10]. Wie Figur 3 zeigt, ist die Missklassifizierung oder Falscherkennung der β-Zerfälle als α-Teilchen - und umgekehrt - eine Funktion des gewählten Diskriminator-Zeitpunktes. Für den optimalen gleichzeitigen Nachweis beider Teilchensorten ist der Diskriminator-Zeitpunkt somit auf den Schnittpunkt der Missklassifizierungskurven f_α und f_β (engl. spill over) festzulegen. Diverse Experimente zur Cocktailmischbarkeit, Vermeidung von Quencheffekten und effizienter Teilchendiskriminierung ergaben bei den Urinproben ein Optimum in 0.1 m HCl-Medium. Wie aus Figur 3 weiter hervorgeht, werden bei einer Verkürzung des Diskriminator-Zeitpunktes zunehmend β-Zerfälle als α-Zerfälle missklassifiziert, weil im enger gesetzten Zeitfenster bei der Pulse-Shape-Analyse nun zunehmend auch die schärferen β-Pulse noch nicht abgeklungen sind und sich somit elektronisch von den a-Pulsen nicht "abfiltrieren" lassen. Damit reduziert sich aber auch die Zählausbeute direkt um die Anzahl der missklassifizierten Teilchen.

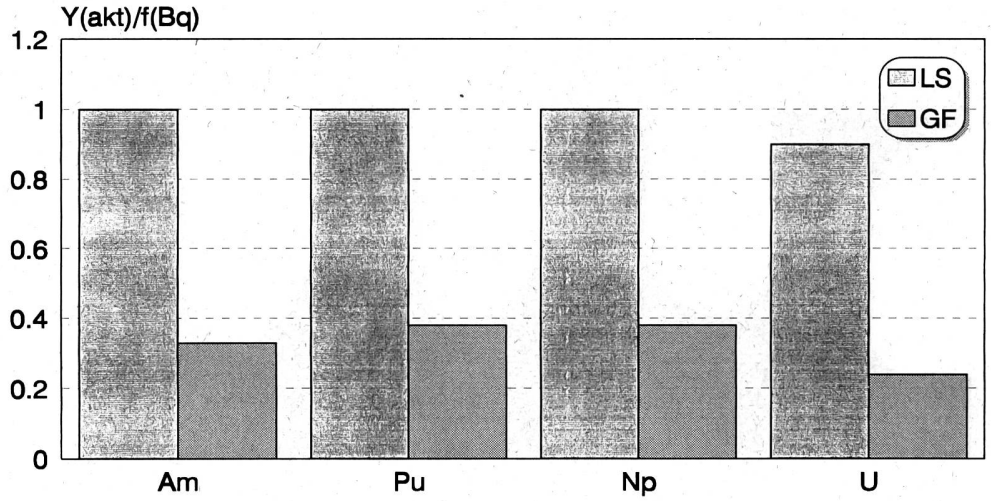


***Figur 3**: α- und β-Missklassifizierungskurven von getracerten Urinproben in 0.1 m HNO_3- und 0.1 m HCl-Medium. Im Chloridmilieu gelang es, den Schnittpunkt der Missklassifizierungskurven auf eine Fehlerkennung von je < 2% zu reduzieren.*

Wegen der nahezu kompletten Zählausbeuten und ebenfalls nahezu vollständiger chemischer Ausbeuten beim LS-Verfahren werden im Vergleich zum alten Verfahren deutlich mehr α-Partikel registriert, wodurch das Ausgangsvolumen von 1 Liter Urin auf 250 ml reduziert werden konnte. Den Vergleich der Detektorausbeuten und chemischen Wiedergewinnungsraten zeigt Figur 4.

β-Analysen: Neben den α-Strahlern erfolgt der Nachweis reiner β-Strahler bei der Inkorporationsüberwachung mit indirekten Methoden. Auch hier gewinnen Verfahren mit LS-Messtechnik zunehmend an Bedeutung. Bei den zu analysierenden Nukliden handelt es sich vorwiegend um ^{3}H , ^{14}C, ^{32}P ^{35}S ^{45}Ca und $^{90}Sr//^{90}Y$ (Urinproben von internen Mitarbeitern sowie Angestellten von Spitälern, Universitäten und der Industrie). Als Messgerät steht ein

Low-Level LS-Zähler mit einer hohen Detektorempfindlichkeit zur Verfügung (Empfindlichkeit für ^{3}H ca. 30%, ^{14}C 90% härtere β-Strahler 100%). Kann davon ausgegangen werden, dass die betroffene Person nur mit einem dieser Nuklide beruflich in Berührung kommt, reichen Schnellmethoden aus, d.h. entweder Cerenkov-Direktmessung bei härteren β-Strahlern (^{32}P, $^{90}Sr/^{90}Y$) oder durch Zugabe von Szintillationsflüssigkeiten bei weicheren β-Strahlern (^{3}H, ^{14}C, ^{35}S, ^{45}Ca). Radiochemische Trennverfahren werden erst dann nötig, wenn insbesondere bei den weicheren β-Strahlern Multinuklidzusammensetzungen vorliegen (zusammengesetzte β-Spektren). Im einzelnen kommen dann folgende Trennmethoden zum Zuge: ^{3}H: Destillation, ^{14}C: Verdampfung im geschlossenen System und Einleitung der Gasphase in alkalische Lösungen, ^{35}S: Fällung mit Bariumchloridlösung ^{45}Ca: Fällung mit Ammonoxalatlösung.



***Figur 4**: Vergleich GF- und LS-Methode: Zählratenverluste bedingt durch Detektorwirkungsgrad ($1/f_{Bq}$) und chemische Ausbeuteverluste (Y_{akt}) während der Aktinidenseparation.*

Literatur

[1] Eikenberg, J., Kopajtic, Z. (1993) Radiometrische und massenspektrometrische Untersuchungen von U-Pellets. PSI-AN-23-92-38.

[2] Ballestra, S. Gastaud, J., Lopez, J. J., Parsi, P., Vas, D. (1993) Report on the intercomparison run IAEA-134. Radionuclides in cockle flesh. IAEA/AL/062.

[3] Ballestra, S. Gastaud, J., Lopez, J. J., Parsi, P., Vas, D. (1993) Report on the intercomparison run IAEA-135. Radionuclides in Irish sea sediment. IAEA/AL/063.

[4] Eikenberg, J., Bajo, S., Fiechtner, A., Hitz, J., Rüthi, M., Zumsteg, I. (1994) Radioanalytics: research projects and other activities. PSI Annual Report, Technical Annex II.

[5] HSK (1992) Reglement für die Abgabe radioaktiver Stoffe und deren Ueberwachung in der Umgebung des Paul Scherrer Instituts. HSK-Reglement 2/165.

[6] Meier, D., Scholl, W. (1982) ^{90}Sr-Bestimmung in Böden und pflanzlichem Material. Landwirtsch. Forsch. 35, 269.

[7] Eikenberg, J., Leupin, A., Cartier, F. (1993) Ausbreiung und Deposition einer ^{123}Xe/^{123}I-Wolke nach einem geringfügigen Störereignis während der Isotopenproduktion: eine kombinierte Feld- und Modellstudie. In: Umweltradiooaktivität, Radioökologie, Strahlenwirkungen (M. Winter, A. Wicke, Ed.) Fachverband für Strahlenschutz, FS-93-67-T, 791.

[8] Horwitz, E. Ph, Dietz, M. L., Nelson, D. M., LaRosa, J. J., Fairman, W. D. (1990) Concentration and separation of actinides from urine using a supported biofunctional organophosphorus extractant. Anal. Chim. Acta, 238, p. 263-271.

[9] Eakins, J. D., Gomm, P. J. (1968) The determination of gross alpha activity in urine. Health Phys., 14, p. 461-472.

[10] Passo, C., Kessler, M. (1992) The essentials of alpha/beta discrimination. Packard Instrument Company, Report PBR0012, Meriden, CT 06450 USA.