

<b>Zeitschrift:</b>	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
<b>Herausgeber:</b>	Bundesamt für Gesundheit, Abteilung Strahlenschutz
<b>Band:</b>	- (1994)
<b>Rubrik:</b>	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:** 14.02.2026

**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 auch 1994 in den Niederschlägen von Cernier (NE), Fribourg, Valsainte (FR), Davos und Locarno und im Flusswasser der Rhone und des Ticino sehr tief.  $^{137}\text{Cs}$  war nur in wenigen Proben im mBq/Liter-Bereich feststellbar.*

*In den Aerosolproben waren die Aktivitäten künstlicher Radionuklide 1994 sehr tief. Nur dank den grossen Luftdurchsätze bei den Stationen Oberschrot/FR und Mte Ceneri/TI konnten noch Spuren von  $^{137}\text{Cs}$  und vereinzelt  $^{134}\text{Cs}$  nachgewiesen werden.*

*In Bodenproben war der Einfluss des Tschernobyl-Fallouts von 1986 nach wie vor deutlich zu erkennen, in Grasproben nur 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  $\gamma$ -spektrometrischen (und zunehmend auch  $\alpha$ -spektrometrischen) Laboranalysen für die gesamte Sektion durch. Lebensmittel werden gemäss der neuen StSV von den kantonalen Laboratorien (mit unserer Hilfe) überwacht.

Die von unserer Gruppe durchgeführten Radon-Untersuchungen sind im Kapitel Radon und im Kapitel "Natürliche Radionuklide im Wasser" erwähnt.

##### 3.1.3. Methodik

Probenahme und Probenvorbereitung für die routinemässige gammaspektrometrische Analyse wurden in früheren Jahresberichten beschrieben. Neue Methoden für die Analyse von Trinkwässern sind im Kapitel "Natürliche Radionuklide im Wasser" zu finden.

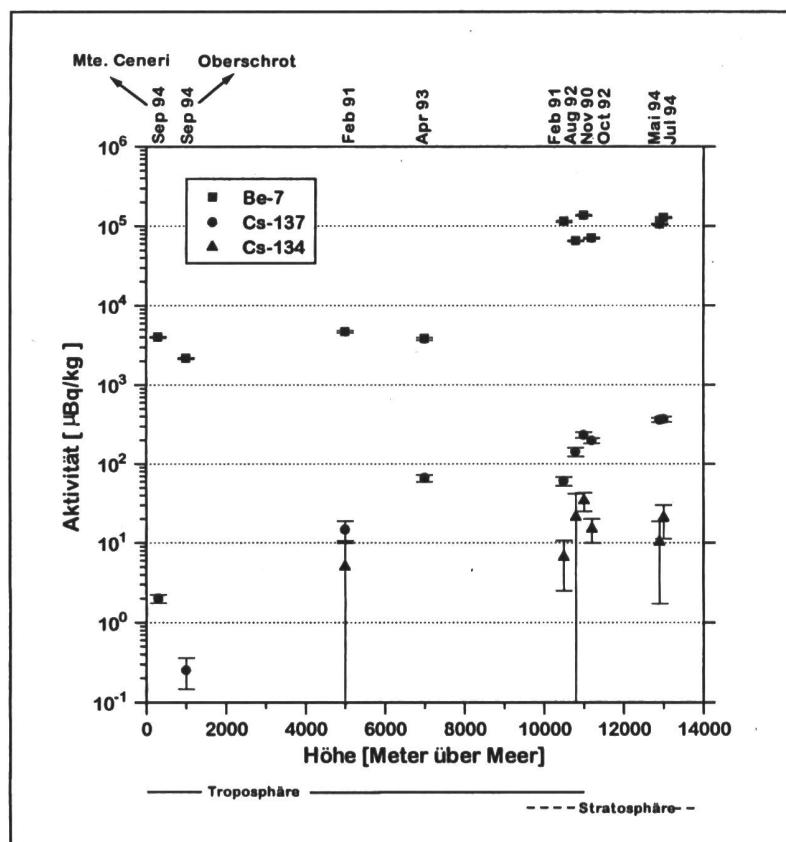
## Ergebnisse

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 (Tab. 3).

### Aerosolproben

#### a) Höhenflugfilter

Figur 1 zeigt die der Resultate der Messungen an Höhenflugfiltern seit 1990. Nicht nur die  $^{7}\text{Be}$ -Aktivität steigt innerhalb der Tropopause (ca 11'000 m ü M) steil an, sondern auch die Cs-Aktivität. Das  $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ -Verhältnis zeigt, dass das Cs-Inventar in der Stratosphäre im wesentlichen vom Unfall in Tschernobyl stammt. Aus den Daten in Figur 1 ist auch ersichtlich, dass ein erheblicher Transport von Cs aus der Stratosphäre in die Troposphäre stattfindet.



**Fig. 1**  $^{7}\text{Be}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{137}\text{Cs}$  auf den Höhenfiltern seit 1990. Zum Vergleich sind auch Werte für die High-Volume-Sampler in Oberschrot/FR und Monte Ceneri/TI im September 1994 eingetragen.

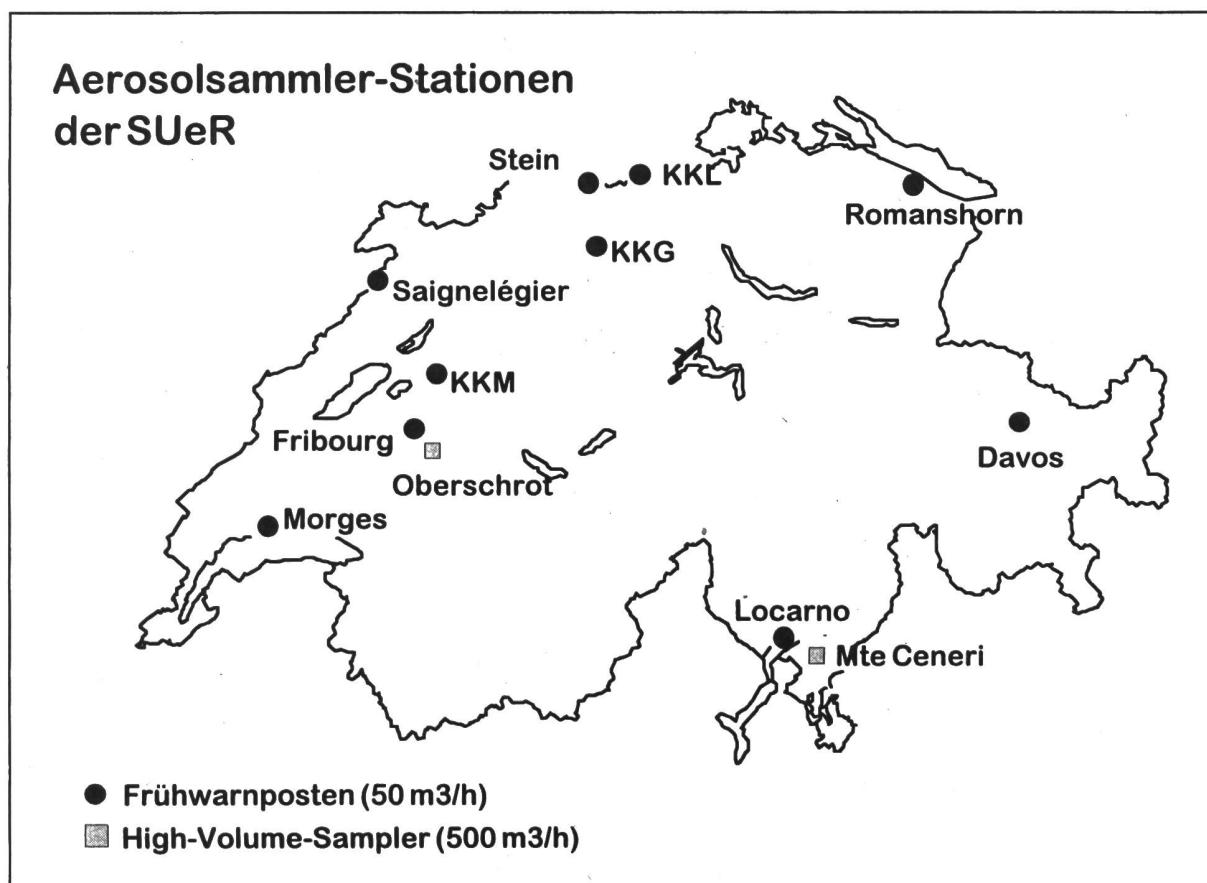
### b) *Aerosol-Sammler mit grossem Durchfluss*

Die Daten die mit den beiden Aerosolsammlern 1994 gewonnen wurden, sind in der Figur 3 zu sehen.

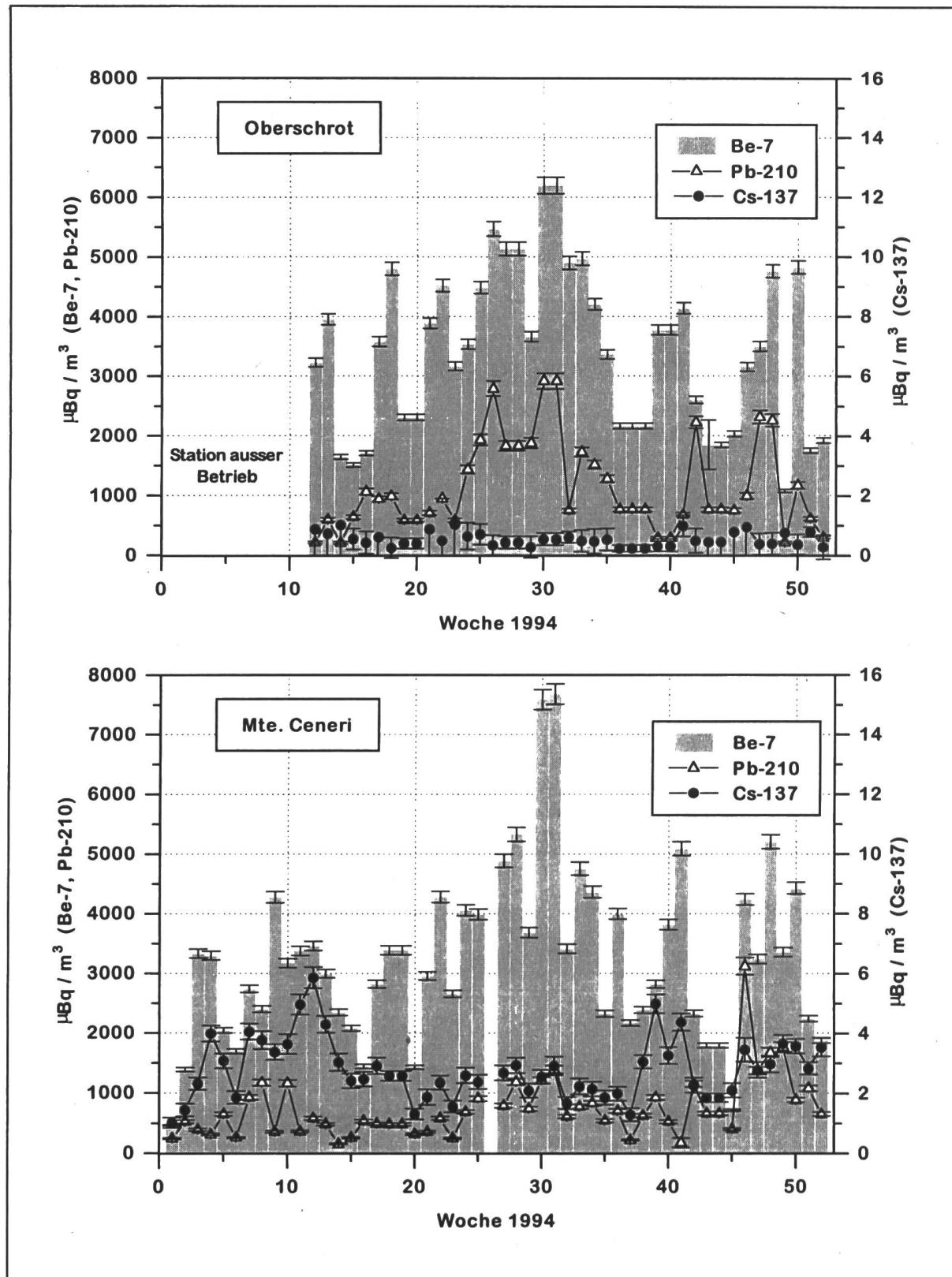
Die  $^{137}\text{Cs}$ -Werte auf dem Mt. Ceneri/TI liegen deutlich höher als in Oberschrot/FR, was auf die höhere Aktivität der resuspendierten Teilchen im Tessin zurückzuführen sein könnte.  $^{134}\text{Cs}$  konnte 1994 in Oberschrot/FR nicht mehr und auf dem Mt. Ceneri/TI nur noch vereinzelt nachgewiesen werden (Nachweisgrenze ca. 0.3 micro-Bq/m<sup>3</sup>).

Figur 4 zeigt den Verlauf der  $^7\text{Be}$ - und  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäts-Konzentrationen für beide Stationen. Während die  $^7\text{Be}$ -Werte nördlich und südlich der Alpen praktisch gleich gross sind, sind die  $^{210}\text{Pb}$ -Konzentrationen in Oberschrot/FR meist deutlich höher als auf dem Mt. Ceneri/TI. Eine mögliche Erklärung dafür könnte sein, dass nördlich der Alpen der Beitrag kontinentaler Luft grösser ist als südlich der Alpen.

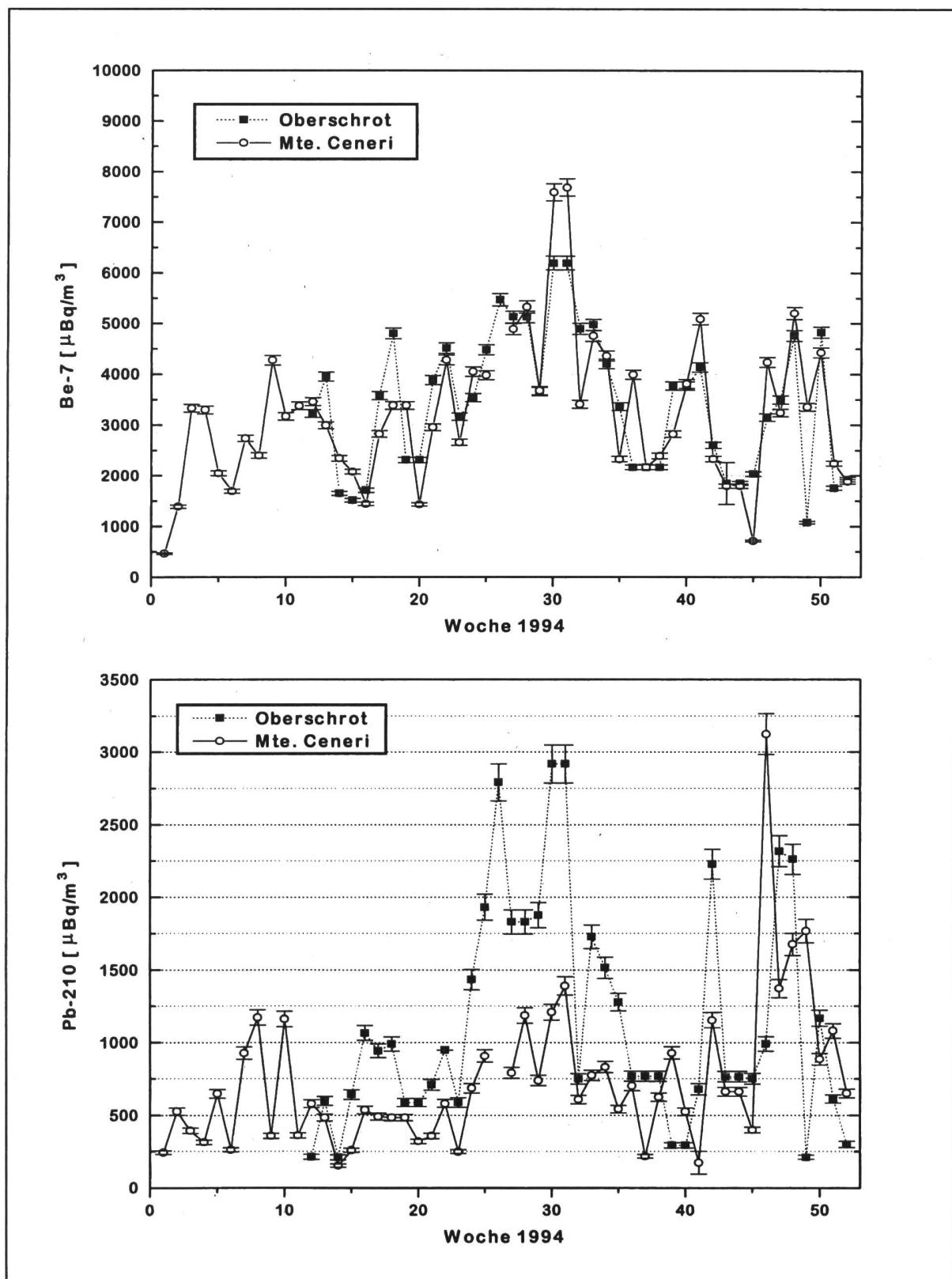
Während des Ausfalls des Gerätes in Oberschrot/FR wurden die Filter des kleinen Aerosolsammlers in Fribourg gemessen. Die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität lag 1994 in allen mit dem kleinen Aerosolsammler erhobenen Proben unter 20 micro-Bq/m<sup>3</sup>.



**Fig. 2** Standorte der Aerosol-Sammler der SUeR.



**Fig. 3**  $^{7}\text{Be}$ ,  $^{219}\text{Pb}$  und  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentration in Aerosolproben an den Stationen Oberschrot/FR und Monte Ceneri/TI.

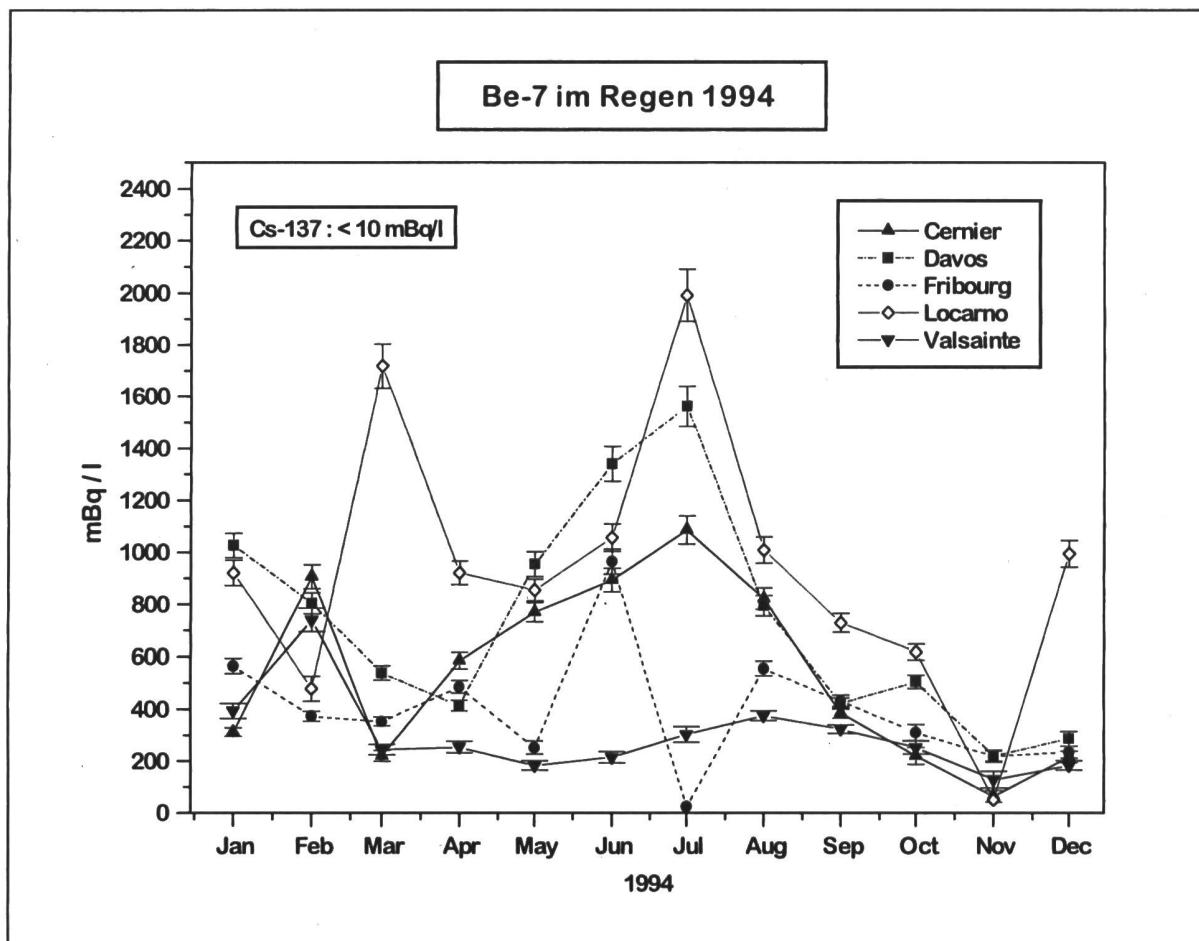


**Fig. 4** Vergleich des Verlaufs der  $^{7\text{Be}}$ - und  $^{210}\text{Pb}$ -Konzentrationen in Aerosolproben nördlich der Alpen (Oberschrot/FR) und südlich der Alpen (Mte. Ceneri/TI).

### Regen und Trockenstaub-Ablagerungen

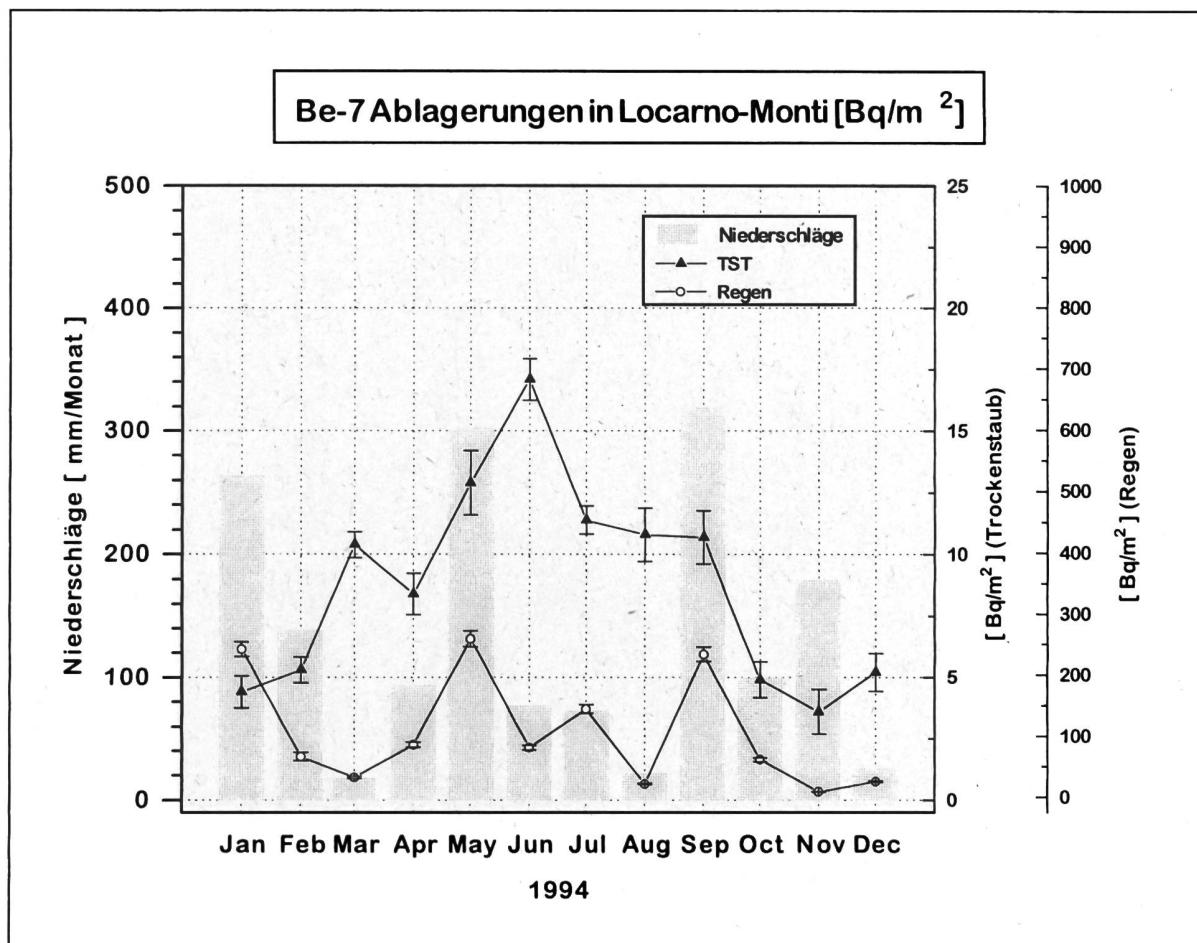
Die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten im Regen von Cernier/NE, Davos/GR, Fribourg, Locarno und Valsainte/FR lagen 1994 in allen Monatsproben unter 10 mBq/Liter.

Die Aktivitäten des natürlicherweise vorhandenen  $^7\text{Be}$  in den Regenproben sind in Figur 5 zu sehen.



**Fig. 5**  $^7\text{Be}$  im Regen an den Standorten Cernier/NE, Davos/GR, Fribourg, Locarno und Valsainte/FR.

An einer Stelle in der Schweiz, in Locarno-Monti, werden Regen und Trockenstaubablagerungen separat gesammelt. Figur 6 zeigt einen Vergleich der Nass- und Trockendeposition des  $^7\text{Be}$ . Die Ablagerung mit dem Regen überwiegt deutlich.



**Fig. 6** <sup>7</sup>Be-Ablagerungen mit Regen und Trockenstaub (TST) in Locarno-Monti.

Die Ablagerung von <sup>137</sup>Cs ist auf dieser Figur nicht angegeben, da die <sup>137</sup>Cs-Aktivitäten sowohl im Regen als auch im Trockenstaub 1994 kaum je über der Nachweisgrenze lagen. Sie beträgt aber sicher zwei Größenordnungen weniger als für das <sup>7</sup>Be.

### Flusswasser

Die <sup>137</sup>Cs-Aktivitäten lagen 1994 in den monatlichen Sammelproben aus der Rhone im Wallis und aus dem Ticino bei Contone unter 30 mBq/Liter (monatliche Sammelproben). Wegen der kleinen Wassermengen, die wir aus der Rhone bei Genf erhielten, lag die Nachweisgrenze für diese Proben bei 120 mBq/Liter. Sie wurde in keinem Monat überschritten.

### Erde

Die <sup>137</sup>Cs-Aktivitäten im Boden zeigen das schon 1986 festgestellte Muster des Tschernobyl-Fallouts (Tab. 1). Bei der Probe von Davos-Stillberg überwiegt das <sup>137</sup>Cs des Fallouts aus den 60er-Jahren.

## Gras

Die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten liegen in allen Proben in Tab. 2 unter 60 Bq/kg Trockensubstanz. Zum Vergleich beträgt die natürliche  $^{40}\text{K}$ -Aktivität in diesen Proben im Mittel ca. 900 Bq/kg Trockensubstanz.

**Tab.1:**  $^{40}\text{K}$ -,  $^{134}\text{Cs}$ - und  $^{137}\text{Cs}$ -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	$^{40}\text{K}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$
Rossberg-Kemptthal/ZH	03.01.94	$320 \pm 15$	$4 \pm 1$	$83 \pm 4$
Arenenberg / TG	03.05.94	$390 \pm 20$	$3 \pm 1$	$80 \pm 8$
Grangeneuve / FR	31.05.94	$400 \pm 20$	$< 0.4$	$10 \pm 1$
Chur / GR	16.05.94	$810 \pm 40$	$< 1.0$	$4 \pm 1$
Sessa / TI	10.06.94	$520 \pm 25$	$16 \pm 1$	$410 \pm 20$
Rasa / TI	13.06.94	$490 \pm 25$	$16 \pm 1$	$420 \pm 20$
Rodi-Fiesso / TI	07.06.94	$370 \pm 20$	$8 \pm 1$	$210 \pm 10$
Davos-Stillberg / GR	28.06.94	$600 \pm 30$	$2 \pm 1$	$160 \pm 8$

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

Ort	Probenahme- datum	$^{40}\text{K}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$
Grangeneuve / FR	28.06.93	$930 \pm 45$	$< 2$	$< 3$
Arenenberg / TG	03.05.94	$880 \pm 45$	$< 1$	$< 1$
Chur / GR	16.05.94	$870 \pm 45$	$< 1$	$< 2$
Grangeneuve / FR	31.05.94	$800 \pm 40$	$< 2$	$< 5$
Davos / GR	28.06.94	$780 \pm 40$	$< 1$	$5.9 \pm 1$
Intragna / TI	21.07.94	$830 \pm 40$	$2.6 \pm 0.9$	$56.3 \pm 3$
Rodi-Fiesso / TI	25.07.94	$600 \pm 30$	$1.3 \pm 0.6$	$18.9 \pm 2$
Saignelegier / JU	26.07.94	$810 \pm 40$	$< 2$	$3.2 \pm 2$
Sessa / TI	27.07.94	$780 \pm 40$	$< 2$	$< 5$
Davos / GR	29.09.94	$1023 \pm 50$	$< 1$	$< 2$

**Tab. 3: Übersichtstabelle: Erde- und Grasproben 1994**

Alle Messungen ohne Umgebung der KKW  
Angaben in Bq/kg Trockensubstanz

**Messung durch KL: BL, BS, GR, JU, LU, TI; IRA Lausanne, AC-Labor Spiez, SUER Fribourg**

Probe	Ort	Datum	K-40	Cs-134	Cs-137	Sr-90
Erde	Lausanne	18.10.94	550±30	1±0.2	20±1	3.2±0.3
Erde	Grangeneuve/FR	31.5.94	400±20	< 0.4	10±1	2.4±0.4
Erde	Susten-Phyn/VS	28.7.94	720±40	2.7±0.3	11.0±0.7	0.3±0.12
Erde	Mürren/BE	14.6.94	470±30	≤ 1	22±1	31.9±2.5
Erde	Fahrni-Thun/BE	7.7.94	430±30	≤ 1	18±1	7.3±0.5
Erde	Diesse/BE	7.7.94	390±20	0.7±0.1	30±1	6.4±0.5
Erde	Sissach/BL	27.6.94	545±20	3.4±0.4	49±1	4.9±0.3
Erde	St. Urban/LU	11.4.94	610±20	≤ 0.12	17±0.7	---
Erde	Rasa/TI	13.6.94	490±25	16±1	420±20	---
Erde	Rodi-Fiesso/TI	7.6.94	370±20	8±1	210±10	8.5±0.4
Erde	Sessa/TI	10.6.94	520±30	16±1	410±20	11.2±0.5
Erde	Chur/GR	16.5.94	810±40	≤ 1	4±1	0.64±0.16
Erde	Davos-Stilberg/GR	28.6.94	600±30	2±1	160±8	28.9±0.7
Erde	Arenenberg/TG	3.5.94	390±20	3±1	80±8	2.2±0.3
Erde	Rossberg-Kemptthal/ZH	3.1.94	320±20	4±1	83±4	---
Gras	Lausanne	18.10.94	1060±60	≤ 1.6	2.1±0.1	11.2±0.2
Gras	Grangeneuve/FR	28.6.93	930±45	≤ 2	≤ 3	---
Gras	Grangeneuve/FR	31.5.94	800±40	≤ 2	≤ 5	2.5±0.1
Gras	Saignelégier/JU	26.7.94	810±40	≤ 2	3.2±2	---
Gras	Susten-Phyn/VS	28.7.94	940±50	≤ 1.3	≤ 1.4	0.95±0.11
Gras	Mürren/BE	14.6.94	480±40	≤ 1	3.3±0.3	20.0±1.5
Gras	Fahrni-Thun/BE	7.7.94	1560±80	≤ 0.8	≤ 0.6	6.8±0.7
Gras	Fahrni-Thun/BE	12.10.94	970±40	≤ 0.9	0.9±0.3	4.3±0.4
Gras	Diesse/BE	7.7.94	1070±60	≤ 0.7	≤ 0.5	6.5±0.7
Gras	Diesse/BE	12.10.94	1190±40	≤ 0.9	0.9±0.2	1.3±0.2
Gras	Sissach/BL	27.6.94	1350±30	≤ 0.5	1.0±0.2	5.2±0.2
Heu	Roveredo/GR	18.8.94	380±40	≤ 2	26±2	---
Heu	Verdabbio/GR	18.8.94	670±50	≤ 2	25±2	---
Heu	Cama/GR	18.8.94	730±40	≤ 2	20±1.3	---
Gras 1)	Rasa-Intragna/TI	13.6.94	860±50	1.3±0.4	64±4	---
Gras 2)	Rasa-Intragna/TI	7.6.94	830±40	2.6±0.9	56.3±3	---
Gras 1)	Rodi-Fiesso/TI	7.6.94	800±50	≤ 1.8	7.4±0.8	4.4±0.1
Gras 2)	Rodi-Fiesso/TI	10.6.94	600±30	1.3±0.6	18.9±2	13.8±0.3
Gras 1)	Sessa/TI	10.6.94	780±50	≤ 1.7	5.0±0.6	28.5±0.5
Gras 2)	Sessa/TI	13.6.94	780±40	≤ 2	≤ 5	25.0±0.4
Gras	Chur/GR	16.5.94	870±45	≤ 1	≤ 2	1.03±0.09
Gras	Davos/GR	29.9.94	1023±50	≤ 1	≤ 2	15.3±0.4
Gras	Davos/GR	28.6.94	780±40	≤ 1	5.9±1	42.4±0.5
Heu	Vicosoprano/GR	16.6.94	720±50	≤ 2	24±2	---
Heu	Castasegna/GR	16.6.94	600±50	≤ 2	40±3	---
Heu	Poschiavo/GR	22.7.94	580±40	≤ 2	15±2	---
Heu	Poschiavo/GR	3.8.94	240±40	≤ 2	19±2	---
Heu	Poschiavo/GR	3.8.94	550±40	≤ 2	10±1.4	---
Heu	Poschiavo/GR	18.8.94	830±50	≤ 2	11±2	---
Gras	Arenenberg/TG	3.5.94	880±45	≤ 1	< 1	1.2±0.1

1) = Gras 1. Schnitt;

2) = Gras 2. Schnitt.

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

**H. Loosli, U. Schotterer und H. Bürki**

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

*Erhöhungen der  $^{14}\text{C}$  Konzentration relativ zu Referenzstationen lassen sich in Baumblättern aus der Umgebung der Siedewasserreaktoren Leibstadt und Mühleberg, aus der Umgebung des Reaktors Saphir des PSI und aus der Umgebung des alten Verbrennungsofens der CIBA in Basel nachweisen. Die maximalen Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte betragen für die beiden Kernkraftwerke ca. 100 %, für die beiden anderen Standorte ca. 200 bzw. 400 %. Obschon sich diese Konzentrations-Erhöhungen leicht messen lassen, sind sie für den Strahlenschutz nicht relevant; hypothetische Dosen betragen höchstens ca. 1 microSv pro Jahr.*

*Der  $^{85}\text{Kr}$ -Level in der nördlichen Troposphäre liegt heute bei etwa 1,1 Bq/m<sup>3</sup> Luft. Die Messungen der im Jahre 1994 wöchentlich auf dem Jungfraujoch genommenen Proben bestätigen einen leicht ansteigenden Trend dieser Aktivität in der Luft. Strahlendosen von  $^{85}\text{Kr}$  sind vernachlässigbar.*

*Die Tritium-Jahresmittelwerte aller Niederschlags- und Flusswasser-Stationen (mit Ausnahme der Aare bei Brugg) bleiben bezogen auf das Vorjahr innerhalb einer Toleranzgrenze von 10 % des Mittelwertes gleich. Eine allfällige weitere Abnahme, verursacht durch die Entleerung des stratosphärischen Reservoirs (aus der Zeit der Kernwaffentests) liesse sich nur über erhöhten Messaufwand (Gascounter) feststellen.*

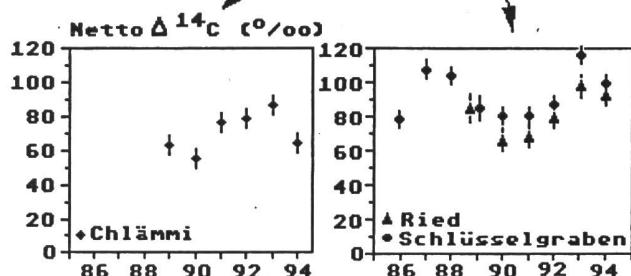
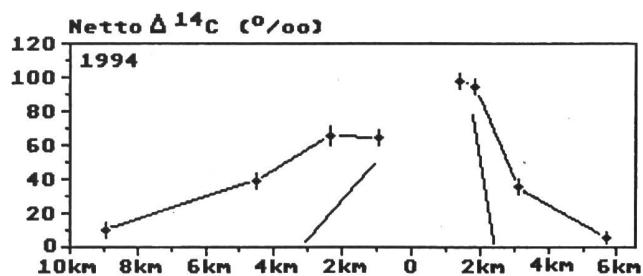
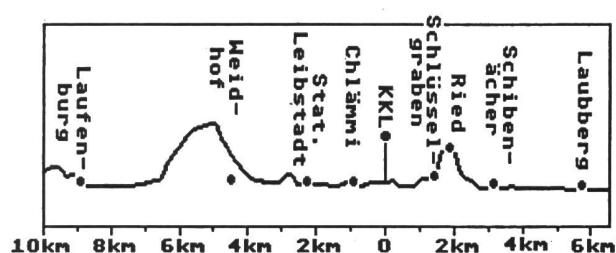
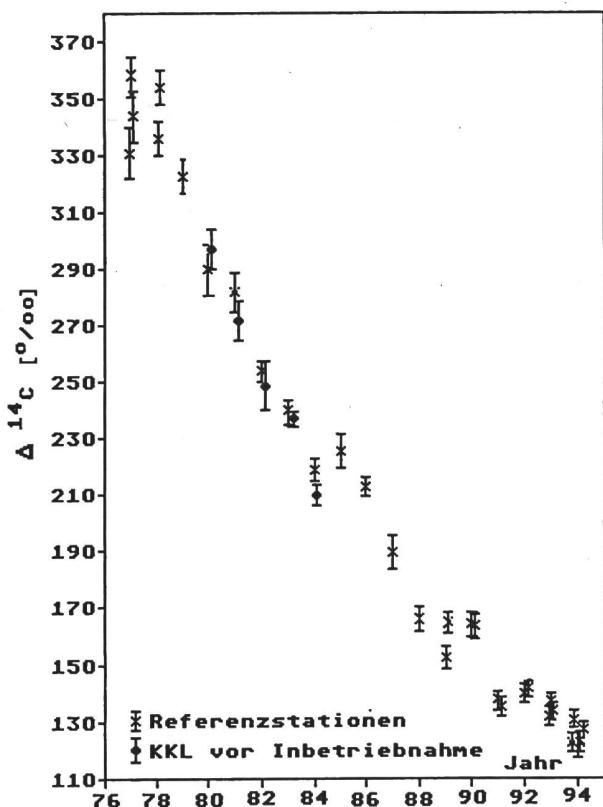
### 3.2.2. Kohlenstoff-14 in Baumblättern und Beeren

#### a) Kohlenstoff-14 an Referenzstationen

An den Referenzstationen (Wiler auf dem Belpberg und Imihubel auf dem Längenberg, je ca. 15 km südlich von Bern) betrug 1994 der  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert noch  $+124 \pm 4 \%$ . Dies entspricht einer spezifischen  $^{14}\text{C}$ -Aktivität von 0,255 Bq/g C. Diese Erhöhung von 124 % über dem "natürlichen" Level (= 0,226 Bq/g C) stammt grösstenteils noch von den atmosphärischen Kernwaffentests der 60er Jahre. Abschätzungen zeigen, dass die Bombenversuche zum heutigen  $^{14}\text{C}$ -Überschuss in der Atmosphäre immer noch etwa 100 bis 1'000 mal mehr beitragen

Figur 1:

$\Delta^{14}\text{C}$ -Konzentrationen in Buchenblättern von den Referenzstationen.



Figur 2:

Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Kernkraftwerkes Leibstadt in westlicher und östlicher Richtung.

als die Emissionen in den letzten Jahrzehnten aus Kernanlagen (siehe I. Levin und H. Loosli, Bericht der Konferenz über langlebige Nuklide, Vitznau, 29./30.6.1995). Dabei kann ange- nommen werden, dass die in Blättern der Referenzstationen gemessene  $\Delta^{14}\text{C}$ -Aktivität bis auf wenige ‰ mit der Aktivität im atmosphärischen  $\text{CO}_2$  übereinstimmt.

Die zusätzliche Aktivität in der Atmosphäre war 1994 wieder etwa 8 ‰ geringer als im Vor- jahr (siehe Figur 1). Diese kontinuierliche Abnahme der zusätzlichen atmosphärischen  $^{14}\text{C}$ - Aktivität ist damit zu begründen, dass  $\text{CO}_2$  zwischen Atmosphäre und der Oberflächenschicht der Weltmeere ausgetauscht wird. Der Mixed Layer weist heute einen  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert von ca. +70 ‰ auf. Ferner wird der Atmosphärische  $^{14}\text{C}$ -Gehalt durch das  $^{14}\text{C}$ -freie  $\text{CO}_2$  aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe verdünnt. Dieser Verdünnungseffekt (Suess-Effekt) konnte bis ca. 1945 gemessen werden, später bewirkten die Kernwaffentests, dass der atmosphärische  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert auf ca. +900 ‰ anstieg. Extrapolationen ergeben, dass der Suess-Effekt heute etwa -100 ‰ ausmachen würde. Eigentlich würde dieser Wert die bessere Vergleichsbasis darstellen, um anzugeben, wieviel Bomben- $^{14}\text{C}$  sich noch in der Atmosphäre befindet (124 + ca. 100 ‰ = 224 ‰ relativ zum vorindustriellen natürlichen Level). Damit kann die heutige zusätzliche Dosis wegen  $^{14}\text{C}$  der Kernwaffentests abgeschätzt werden; unter der Annahme, dass in unserem Körper diese Gleichgewichtskonzentration von +224 ‰ herrscht, ergibt sich nach UNSCEAR 1988 jährlich eine Dosis von ca. 3 microSv.

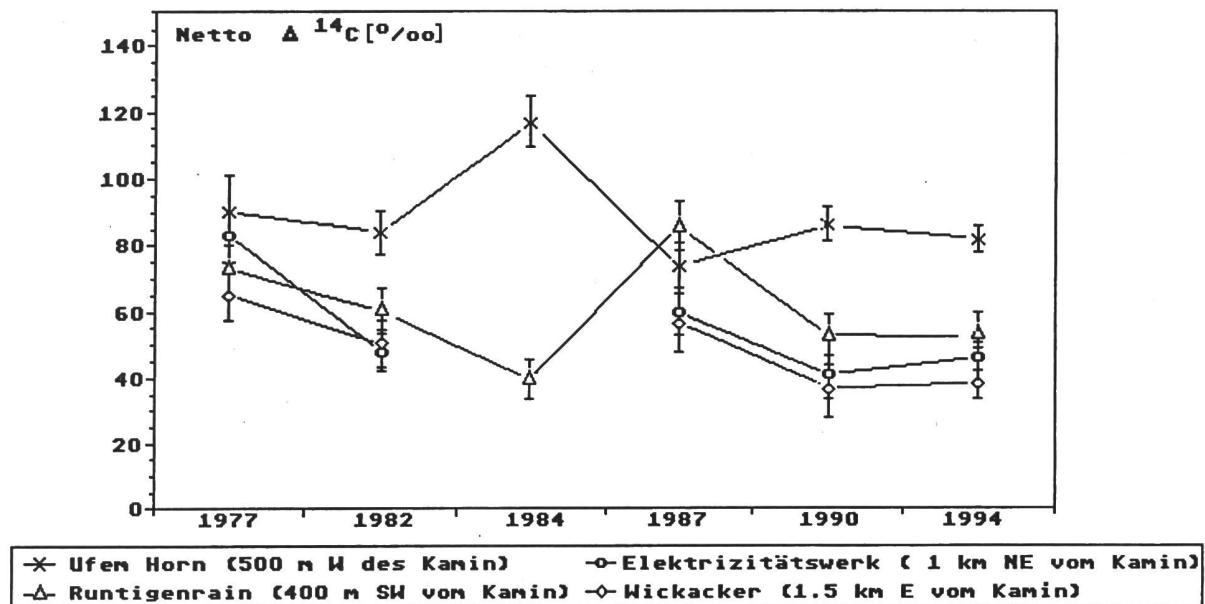
#### **b) Kohlenstoff-14 in der Umgebung von Kernanlagen**

Erhöhungen der  $^{14}\text{C}$ -Aktivität wurden 1994 in Stichproben von Baumblättern aus der Um- gebung der Siedewasserreaktoren Leibstadt und Mühleberg und aus der Umgebung des Reaktors Saphir am PSI gemessen. Die Messwerte und die Netto-Erhöhungen relativ zu den Werten der Referenzstationen sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Für die Referenzstationen wurde ein Mittelwert von  $+124 \pm 4$  ‰ verwendet. In der Figur 2 sind die Netto-Erhöhungen in der Umgebung des KKL dargestellt. Sie sind in ca. 1 km Entfernung von der Emissionsstelle in östlicher und westlicher Richtung am grössten (ca. 100 ‰) und nehmen wegen der Verdün- nung mit zunehmender Entfernung ab. In der Figur 2 unten ist als Zeitreihe dargestellt, wie sich die Netto-Erhöhungen in der kritischen Distanz vom Kamin in den letzten ca. 10 Jahren entwickelten. Bemerkenswert sind die recht konstanten Nettowerte für alle drei dargestellten Probenahmeorte. Dies bedeutet, dass die Emissionen und die mittlere Verdünnung während der Wachstumsphase der Blätter in diesen Jahren also recht konstant waren.

Vier Stichproben wurden 1994 an Stellen aus der Umgebung des KKM erhoben, wo schon früher Proben genommen wurden. Sie ergaben Netto-Erhöhungen von der gleichen Grössen- ordnung wie früher (siehe Figur 3).

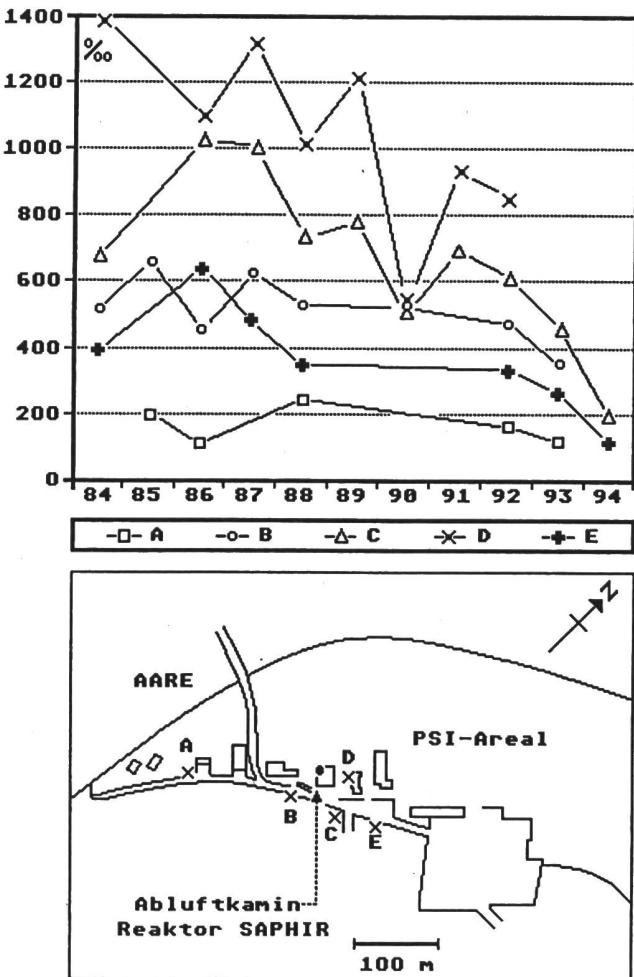
In Figur 4 sind die Netto- $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aus der Umgebung des Reaktors Saphir seit 1984 dar- gestellt. Der Baum, der am nächsten zur Emissionsquelle stand (Saphir D) kann nicht mehr ausgemessen werden, weil er 1993 gefällt wurde. An den übrigen Standorten setzte sich 1994 der schon im Vorjahr beobachtete deutliche Rückgang der  $^{14}\text{C}$ -Aktivität fort. Dies kann dar- auf zurückgeführt werden, dass der Saphir am 17.12.1993 abgestellt wurde. Ob die 1994 fest- gestellte Restaktivität von verzögerten Emissionen stammt oder ob die Bäume im Frühling aktiven Kohlenstoff früherer Jahre in die neuen Blätter einbauen, kann nicht eindeutig beant- wortet werden. Ein analoger Rückgang der  $^{14}\text{C}$ -Aktivität wurde auch an den Standorten EIR-

**Figur 3:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Kernkraftwerkes Mühleberg.



**Figur 4:**

Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Reaktors Saphir (PSI).



Ost und Süd festgestellt, welche sich nordöstlich und südlich in ca. 400 m Entfernung vom Reaktor Saphir befinden (siehe Tabelle 1, vergl. Figur 4 im BAG Bericht 1993). Eher überraschend jedoch ist der ebenfalls beobachtete Rückgang an der Station Au, die etwa in der Mitte zwischen PSI und KKB liegt. Dies und der Rückgang an der Station Wasserkraftwerk (nordöstlich von KKB) deuten darauf hin, dass der Reaktor Saphir auch an diesen Standorten eine wesentliche Quelle darstellte.

Für eine konservative Dosisabschätzung soll angenommen werden, dass jemand in seinem Körper eine  $^{14}\text{C}$ -Konzentration aufweist, die gegenüber dem heutigen Referenzwert um ca. 80 ‰ erhöht ist. Die zusätzliche jährliche effektive Dosis beträgt dann ca. 1 microSv, was verglichen mit anderen Strahlendosen und mit deren Variationsbreiten vernachlässigbar ist. Trotzdem existiert die Tatsache, dass künstliche Radioaktivität in Lebensmittel und damit in unseren Körper eingebaut werden kann. Allerdings sind diese  $^{14}\text{C}$ -Konzentrationen deutlich kleiner als nach den Kernwaffentests der 60er Jahre.

**Tabelle 1:**  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte und Netto-Erhöhungen relativ zu den Referenzstationen Wiler und Imihubel

Umgebung von	Probenahme	Datum Probenahme	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)	$\Delta^{14}\text{C}$ (‰)	$\Delta^{14}\text{C netto}$ (‰)
Ref.	Wiler	22.5.94	-31,5	120,7±3,0	
KKM	Wickacker	26.8.94	-29,5	160,6±3,2	36,9±4,4
KKM	Elektrizitätswerk	26.8.94	-30,8	168,8±3,0	45,1±4,2
KKM	Ufem Horn	26.8.94	-33,8	205,2±3,3	81,5±4,5
KKM	Runtigenrain	26.8.94	-30,4	174,3±2,9	50,6±4,2
KKL	Laufenburg	31.8.94	-32,5	133,4±3,0	9,7±4,2
KKL	Weidhof	31.8.94	-34,2	162,3±2,9	38,6±4,2
KKL	Station Leibstadt	31.8.94	-33,9	189,6±3,3	65,9±4,5
KKL	Chlämmi	31.8.94	-29,8	187,8±3,1	64,1±4,3
KKL	Schlüsselgraben	31.8.94	-33,0	222,2±3,3	98,5±4,5
KKL	Ried	31.8.94	-30,9	218,7±2,9	95,0±4,2
KKL	Schibenächer	31.8.94	-29,9	159,0±3,0	35,3±4,2
KKL	Laubberg	31.8.94	-31,3	129,5±3,2	5,8±4,4
KKB-PSI	Wasserkraftwerk	31.8.94	-32,1	136,6±2,8	12,9±4,1
KKP-PSI	Au	31.8.94	-33,4	165,5±3,0	41,8±4,2
PSI	EIR Ost	31.8.94	-29,3	131,9±3,2	8,2±4,4
PSI	EIR Süd	31.8.94	-34,8	151,8±2,8	28,1±4,1
PSI	Saphir C	31.8.94	-28,9	326,1±3,1	202,4±4,3
PSI	Saphir E	31.8.94	-30,8	249,3±3,4	125,6±4,5
Ref.	Imihubel	19.6.94	-31,7	126,7±3,0	

c) **Kohlenstoff-14 in der Umgebung der Verbrennungsöfen der CIBA in der Stadt Basel**

Im Auftrag der Firma CIBA, Basel, sind 1994 ca. 50 Blätterproben in der Umgebung des bisher betriebenen Verbrennungsofens K-224 und als Beweissicherung in der Umgebung des neuen Verbrennungsofens gesammelt und gemessen worden. In den Figuren 5 und 6 sind die Standorte dieser beiden Oefen angegeben. Die Probenahme erfolgte unter Mithilfe des Kt. Laboratoriums Basel-Stadt und der Stadtgärtnerei Basel. Beprobt wurden Kastanien, Ahorn, Linde, Platane, Esche, Akazien, Eiche und Buche, je nachdem was im gewünschten Sektor und in der gewünschten Entfernung vorhanden war. Ausgangspunkt für die Standortwahl war die Häufigkeit der Windrichtungen, wie sie für 1992 von der CIBA-Meteostation K-90 bestimmt wurde. Angenommen wurde, dass sich gemäss Ausbreitungsrechnungen der SUVA die maximalen  $^{14}\text{C}$ -Konzentrationen etwa in einer Entfernung von 200 bis ca. 1'000 m vom Kamin einstellen würden (Mitteilung von Dr. Th. Lauffenburger an die CIBA vom 22.6.1993).

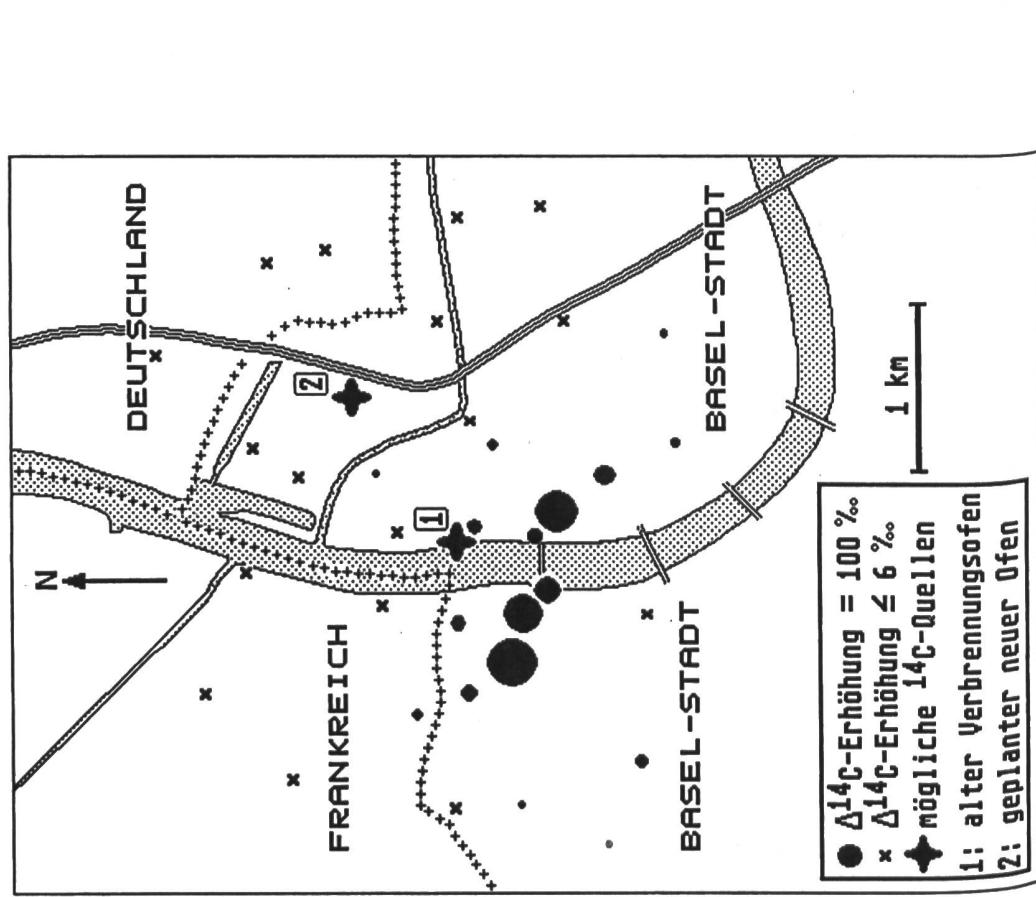
In Figur 5 sind die Netto-Erhöhungen gegenüber dem oben angegebenen Mittelwert der Referenzstationen für die Probenahmen am 31.5., 1.6. und 7.6.1994 graphisch dargestellt: die Fläche der ausgefüllten Kreise ist proportional zur Netto-Erhöhung, wobei als Massstab die Fläche von 100 % in der Legende angegeben ist. Maximale Erhöhungen sind in der Gegend des Volraplatzes, des Sandoz-Parkplatzes und der Dreirosenanlage in ca. 700 m vom Verbrennungsofen K-224 gemessen worden (425, 255 und 230 %). Gemäss Angaben der CIBA erfolgten 1994 vor der Probenahme zweimal kontrollierte  $^{14}\text{C}$ -Abgaben aus dem Verbrennungsofen K-224 von je ca.  $5 \cdot 10^9$  Bq; am 3.5. wehte der Wind während der Zeit der Abgabe in südwestlicher Richtung, am 10.5. in süd-südöstlicher Richtung. Dies stimmt mit den in diesen Richtungen gefundenen  $^{14}\text{C}$ -Erhöhungen überein und lässt den Verbrennungsofen als Quelle als wahrscheinlich erscheinen.

Viele der 50 Proben wiesen  $^{14}\text{C}$ -Aktivitäten auf, die sich innerhalb von  $1\sigma$ -Zählstatistik nicht vom Wert der Referenzstationen unterscheiden; sie sind in der Figur 5 mit Kreuzen markiert. Einige Werte lagen sogar um 6 bis 17 % tiefer als diejenigen der Referenzstationen. Diese befinden sich meist in der Nähe der Autobahn oder einer stark befahrenen Strasse; die  $^{14}\text{C}$ -Erniedrigung erfolgt vermutlich durch die Emission von fossilen  $^{14}\text{C}$ -freien Abgasen. Insbesondere zeigen die Messungen auch, dass sich die  $^{14}\text{C}$ -Aktivität an den Stellen, die zur Beweissicherung in der Umgebung des neuen Verbrennungsofen gewählt wurden, nicht von derjenigen der Referenzstationen unterscheidet.

Am 14. September wurde die Probenahme an gewissen Stellen wiederholt, insbesondere an den Orten, deren  $^{14}\text{C}$ -Aktivität im Mai/Juni deutlich erhöht war. Wie aus Figur 6 ersichtlich ist, blieben die  $^{14}\text{C}$ -Aktivitäten dort etwa auf demselben Level. Die Figur 7 illustriert diesen Vergleich zwischen Mai/Juni- und September-Werten: Die Proben W6 und W10 betreffen die beiden linksufrigen, die Probe E6 den rechtsufrigen Standort. Auch die Figur 7 zeigt, dass die beiden Probenahmen vergleichbare  $^{14}\text{C}$ -Erhöhungen ergaben. Dies könnte bedeuten, dass die Blätter während der Wachstumsphase im Mai die Einlagerung von Kohlenstoff weitgehend abgeschlossen hatten. Der stärkere  $^{14}\text{C}$ -Überschuss der Probe E6 im Süden des alten Verbrennungsofens im Herbst verglichen mit dem Frühlingswert kann dadurch erklärt werden, dass im Juni und Juli noch viermal  $^{14}\text{C}$ -haltige Abfälle verbrannt wurden; in drei dieser Fälle wehte der Wind in südöstlicher Richtung.

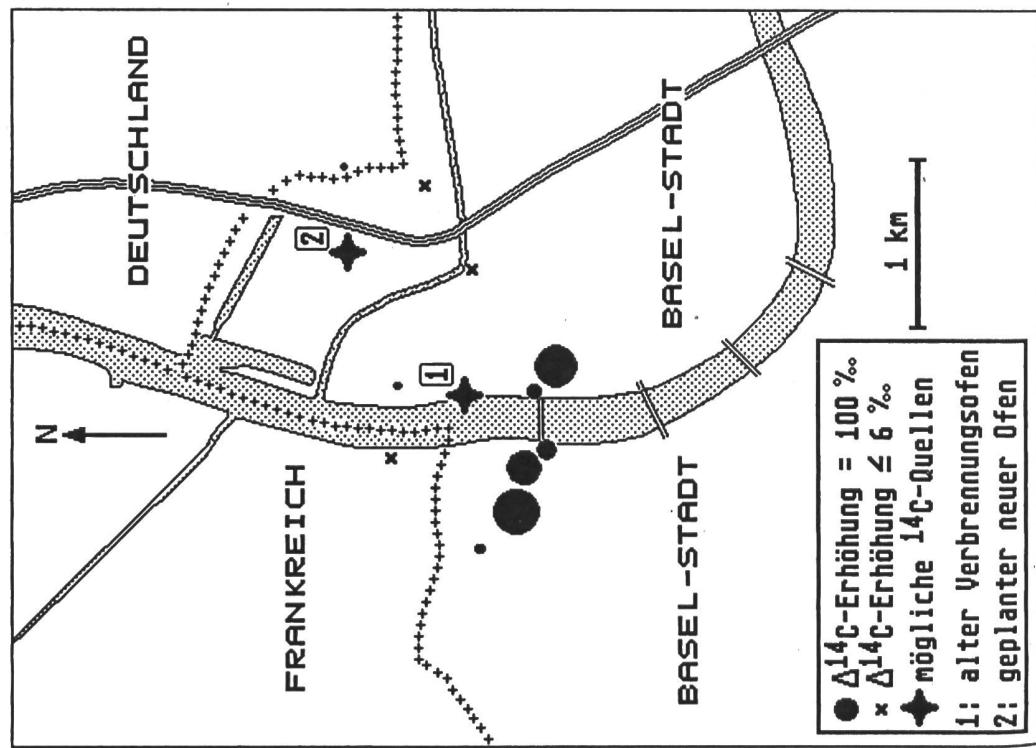
Figur 5:

Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des alten Verbrennungsofens der Firma CIBA in Basel.  
Probenahme: Ende Mai/Anfang Juni 1994.



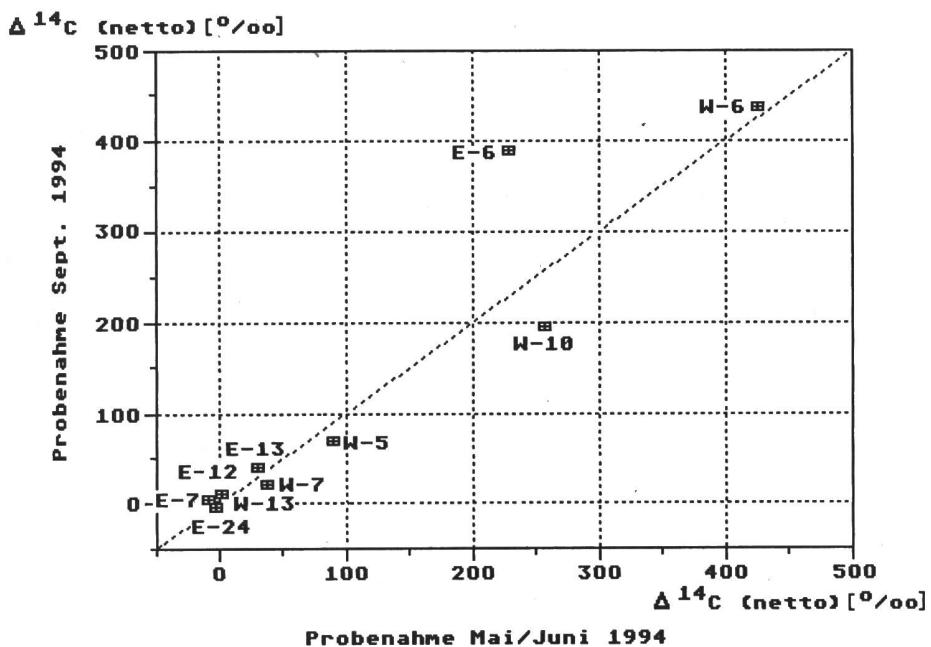
Figur 6:

Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des alten Verbrennungsofens der Firma CIBA in Basel.  
Probenahme: 14. September 1994.



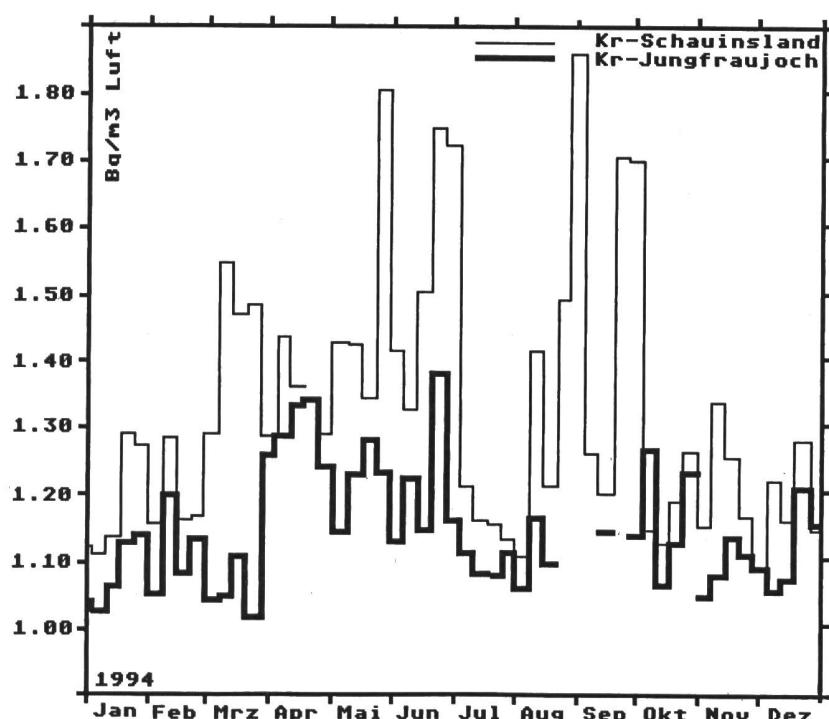
**Figur 7:**

Vergleich der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte zwischen Proben, die im Mai/Juni und solchen, die im September gewonnen wurden. W-Standorte liegen westlich des Rheins, E-Standorte östlich.



**Figur 8:**

$^{85}\text{Kr}$ -Aktivität in Wochenproben vom Jungfraujoch und vom Schauinsland (Nähe Freiburg i. Br.).



Zum Vergleich wurden im September 1994 an vier Stellen zwischen Voltaplatz und Dreirosenbrücke auch Beerenproben erhoben. Zwei Proben ergaben  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte wie an den Referenzstationen; die anderen beiden Proben zeigten einen Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert von +65 resp. +81 ‰ (im Sandoz - Areal resp. am Voltaplatz). Die geringere Erhöhung in Beeren verglichen mit derjenigen in Baumblättern kann dadurch erklärt werden, dass während der Hauptwachstumszeit der Beeren (August/September) keine  $^{14}\text{C}$ -Emissionen erfolgten.

Neben der Windrichtung und der beobachteten kritischen Entfernung der Maximalwerte vom möglichen Emissionszentrum kann auch der Absolutwert der  $^{14}\text{C}$ -Bestimmung dazu herangezogen werden, die Quelle zu identifizieren. Aus der bekannten Emissionsmenge von zwei mal  $5 \cdot 10^9 \text{ Bq } ^{14}\text{C}$  soll im folgenden die Immissions-Konzentration in Blättern abgeschätzt werden. Dazu werden ein Kurzzeitverdünnungsfaktor von  $10^{-4} \text{ s/m}^3$  und eine Verdünnung der abgegebenen  $^{14}\text{C}$ -Aktivität durch das bei der Verbrennung dazugemischte  $^{14}\text{C}$ -freie  $\text{CO}_2$  von einem Faktor 175 verwendet. Ferner wird angenommen, dass der Hauptteil der Blätter im Frühling während ca. 2 Wochen gewachsen ist, davon mit erhöhter  $^{14}\text{C}$ -Konzentration im  $\text{CO}_2$  während der Emissionszeit (welche nicht in die Rechnung eingeht). Aus diesen Annahmen lässt sich eine netto Erhöhung von 250 ‰ erreichen, also ein Wert, der mit den gemessenen Erhöhungen sehr gut übereinstimmt. Damit erscheint der CIBA-Ofen als Emissionsquelle nochmals wahrscheinlicher.

Eine hypothetische Strahlendosis kann wie folgt abgeschätzt werden: würde ein Basler 1/4 seines Nahrungsbedarfs mit Lebensmitteln decken, die einen  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert von 400 ‰ aufweisen und würde sich im Laufe der Jahre im Körper dieser Person ein neues  $^{14}\text{C}$ -Gleichgewicht von +100 ‰ einstellen, ergäbe sich eine zusätzliche jährliche Dosis von ca. 1 microSv. Dies ist gegenüber anderen Strahlendosen und deren Variationsbreite (z.B. Radon-Folgeprodukten) vernachlässigbar. Dass die Immissionen in Basel bez. Strahlendosis nicht ins Gewicht fallen, sieht man auch daraus, dass die erhöhten  $^{14}\text{C}$ -Werte deutlich geringer sind als der Toleranzwert für Lebensmittel gemäss neuer Strahlenschutzgesetzgebung: ein Wert von  $\Delta^{14}\text{C} = +400 \text{ ‰}$  entspricht einer Gesamtaktivität von ca. 300 Bq/kg C, also einem Wert von ca. 50 Bq/kg Lebensmittel; der Toleranzwert beträgt 200 Bq/kg.

### 3.2.3. Krypton-85 Aktivität in der Troposphäre

Die Sammlung von wöchentlichen Proben auf dem Jungfraujoch wurde auch 1994 fortgesetzt. Die in Freiburg i. Br. gemessenen  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivitäten sind in Figur 8 mit denjenigen der deutschen Station Schauinsland (ca. 1'000 m.ü.M.) verglichen. Aus der Figur sind drei Schlüsse ablesbar:

- a) der Grundlevel auf dem Jungfraujoch liegt 1994 bei etwa  $1,1 \text{ Bq/m}^3$  Luft, einem Wert, der höher liegt als in früheren Jahren. Dies stimmt damit überein, dass die  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivität auch an anderen Stationen Europas im Steigen begriffen ist. Dieser Anstieg bedeutet, dass die Emissionen angestiegen sind und nicht nur in der Lage sind, den atmosphärischen Verlust an  $^{85}\text{Kr}$  durch den radioaktiven Zerfall zu kompensieren. Eine vergrösserte Emission von  $^{85}\text{Kr}$  aus der Wiederaufbereitungsanlage in La Hague ist bekannt und ist als Teilerklärung des oben erwähnten atmosphärischen Anstiegs der  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivität anzusehen. Die auf dem Jungfraujoch gemessenen tiefsten  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivitäten entsprechen etwa dem heutigen mittleren  $^{85}\text{Kr}$ -Level in der nördlichen Troposphäre.

- b) Spitzen der  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivität sind auf dem Schauinsland und etwas gedämpft auch auf dem Jungfraujoch zu beobachten. Solche Spitzen treten auf, wenn eine Station in einer nur teilweise verdünnten Abluftfahne einer Wiederaufbereitungsanlage liegt, wenn also insbesondere kontaminierte Luft von Meereshöhe bis in die Höhe von 3'500 m.ü.M. gelangt. Weil die Distanz von La Hague oder von Sellafield bis aufs Joch grösser ist als bis auf den Schauinsland, sind die Spitzen auf dem Jungfraujoch geringer (wegen der grösseren Verdünnung).
- c) Fast alle Wochenwerte auf dem Jungfraujoch sind kleiner als auf dem Schauinsland. Dies kommt daher, dass sich die Emissionen auf Meereshöhe und die Senke (= der radioaktive Zerfall) in der ganzen Atmosphäre befinden. Deshalb ist eine Abnahme der  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivität mit zunehmender Höhe zu erwarten, wie sie in der Tat gemessen wurde. Aus dem Verhältnis der beiden Aktivitäten können vertikale Diffusionskoeffizienten zwischen  $10^3$  und  $10^5 \text{ cm}^2/\text{s}$  bestimmt werden.

Zur Überprüfung des langfristigen Trends der atmosphärischen  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivität wurde diese auch in zwei Stichproben gemessen, die in Bern aus Luft abgetrennt wurden. Die Resultate lauten:

Probenahmedaten	$^{85}\text{Kr}$ -Aktivität	
	dpm/cc Kr	Bq/m <sup>3</sup> Luft
28.3.1994	$62,3 \pm 3,8$	$1,18 \pm 0,07$
20.9.1994	$55,6 \pm 2,3$	$1,06 \pm 0,04$

Diese Werte stimmen mit Messwerten anderer europäischer Stationen gut überein.

Die durch  $^{85}\text{Kr}$  bewirkte zusätzliche Dosis (Hautdosis) fällt überhaupt nicht ins Gewicht, obschon  $^{85}\text{Kr}$  das künstliche Nuklid mit der höchsten Aktivität in der Luft ist.

### 3.2.4. Argon-37 in Troposphärenluft

Troposphärische Argon-Proben, die von der Firma Carbagas in Wiler bei Utzensdorf zwischen Januar und März 1994 gewonnen wurden, ergaben  $^{37}\text{Ar}$ -Werte wie in früheren Jahren: zwischen 0,7 und 4 mBq/m<sup>3</sup>. Das Zählrohr ist aber seither defekt und konnte noch nicht repariert werden.

### 3.2.5. Tritium in Niederschlags- und Flusswasserproben

Die Resultate sind in den Figuren 9a-h und der Tabelle 2 dargestellt. Die Tritium-Jahresmittelwerte aller Niederschlags- und Flusswasser-Stationen (mit Ausnahme der Aare bei Brugg) bleiben bezogen auf das Vorjahr innerhalb einer Toleranzgrenze von 10 % des Mittelwertes gleich. Eine allfällige weitere Abnahme, verursacht durch die Entleerung des stratosphärischen Reservoirs (aus der Zeit der Kernwaffentests) liessen sich nur über erhöhten Messaufwand (Gascounter) feststellen.

**Tabelle 2a:** Tritium in Niederschlägen, 1994 (Angaben in Becquerel pro Liter Wasser)

Monat	Basel	Bern	Grimsel	Guttannen	Meiringen
Januar	4.9±0.4	5.3±0.4	0.8±0.4	1.2±0.4	1.8±0.4
Februar	5.4±0.4	28.4±0.7	2.9±0.4	2.6±0.4	1.8±0.4
März	keine Probe	5.7±0.4	1.8±0.4	2.3±0.4	1.6±0.4
April	3.2±0.4	6.5±0.5	1.9±0.4	1.9±0.4	2.5±0.4
Mai	3.2±0.4	3.2±0.4	1.8±0.4	1.3±0.4	2.7±0.4
Juni	3.3±0.4	4.7±0.4	2.7±0.4	2.9±0.4	2.2±0.4
Juli	3.9±0.4	6.2±0.4	2.7±0.4	4.3±0.4	2.6±0.4
August	2.5±0.4	3.3±0.4	1.8±0.4	2.7±0.4	1.9±0.4
September	1.8±0.4	4.1±0.4	1.0±0.4	1.4±0.4	3.0±0.4
Oktober	2.0±0.4	6.0±0.4	0.7±0.4	0.9±0.4	1.1±0.4
November	2.4±0.4	5.7±0.4	0.5±0.4	1.0±0.4	1.0±0.4
Dezember	0.9±0.4	3.1±0.4	0.5±0.4	0.4±0.4	1.4±0.4
<b>Mittel *:</b>	<b>2.9</b>	<b>5.4</b>	<b>1.5</b>	<b>1.8</b>	<b>2.1</b>

Monat	Vaduz	Nyon	La Brévine	Locarno
Januar	1.4±0.4	2.4±0.4	1.1±0.4	1.2±0.4
Februar	3.5±0.4	7.1±0.4	1.9±0.4	1.1±0.4
März	2.1±0.4	2.8±0.4	1.5±0.4	2.3±0.4
April	3.0±0.4	2.1±0.4	2.9±0.4	2.5±0.4
Mai	3.1±0.4	3.2±0.4	2.7±0.4	1.9±0.4
Juni	3.3±0.4	2.4±0.4	4.3±0.4	2.3±0.4
Juli	4.6±0.4	2.5±0.4	3.2±0.4	3.9±0.4
August	2.4±0.4	2.4±0.4	2.4±0.4	1.1±0.4
September	1.8±0.4	1.3±0.4	1.2±0.4	1.5±0.4
Oktober	1.6±0.4	0.8±0.4	1.0±0.4	2.9±0.4
November	1.2±0.4	1.3±0.4	0.5±0.4	0.3±0.4
Dezember	1.1±0.4	0.9±0.4	0.5±0.4	0.8±0.4
<b>Mittel *:</b>	<b>2.7</b>	<b>2.1</b>	<b>1.8</b>	<b>1.6</b>

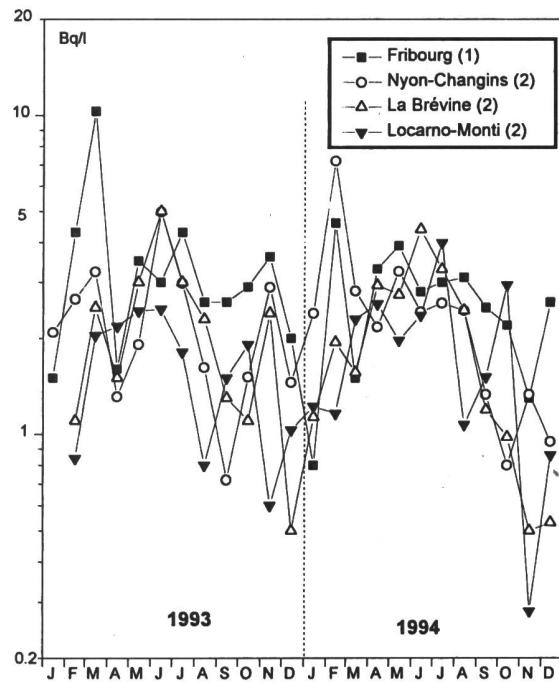
**Tabelle 2b:** Tritium in Flüssen, 1994 (Angaben in Becquerel pro Liter Wasser)

Monat	Aare bei Brugg
Januar	4.5±0.4
Februar	4.3±0.4
März	keine Probe
April	8.7±0.5
Mai	12.0±0.5
Juni	4.4±0.4
Juli	3.9±0.4
August	3.5±0.4
September	2.8±0.4
Oktober	2.2±0.4
November	4.1±0.4
Dezember	5.6±0.4
<b>Mittel **:</b>	<b>5.1</b>

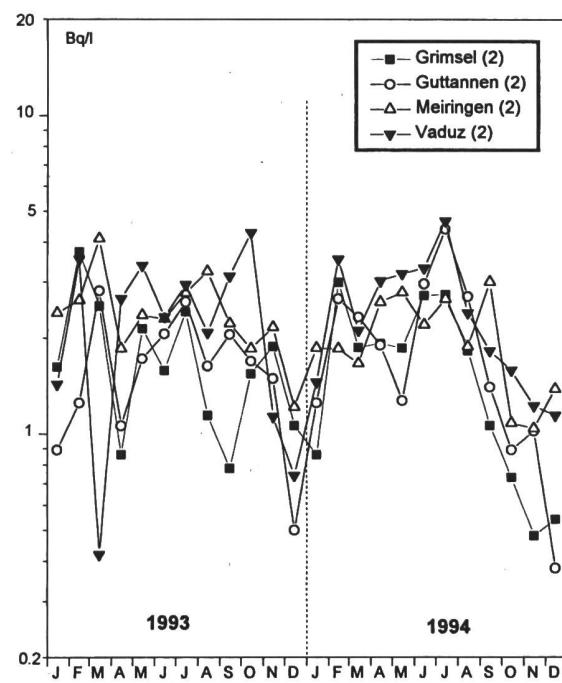
\* Mittel gewichtet nach Niederschlagsmenge

\*\* arithmetisches Mittel

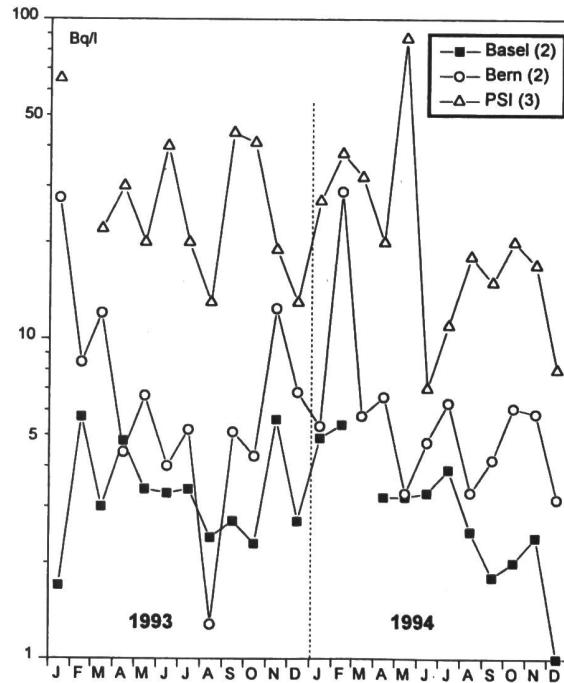
**Fig. 9a** Tritium im Regen 1993-1994  
Fribourg, Nyon, La Brévine, Locarno-Monti



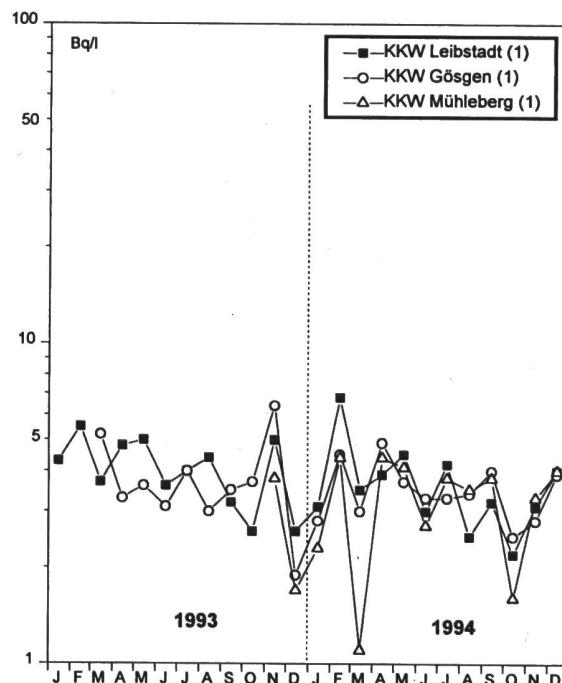
**Fig. 9b** Tritium im Regen 1993-1994  
Grimsel, Guttannen, Meiringen, Vaduz



**Fig. 9c** Tritium im Regen 1993-1994  
Basel, Bern, PSI

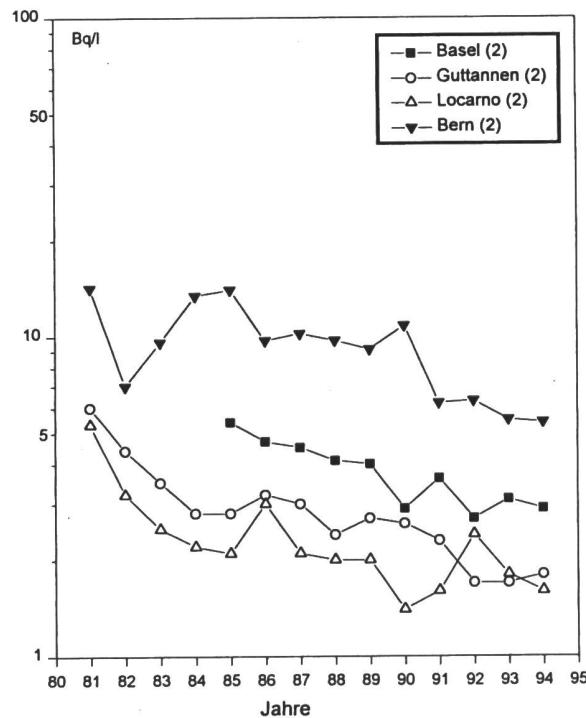


**Fig. 9d** Tritium im Regen 1993-1994  
KKW Leibstadt, Gösgen, Mühleberg

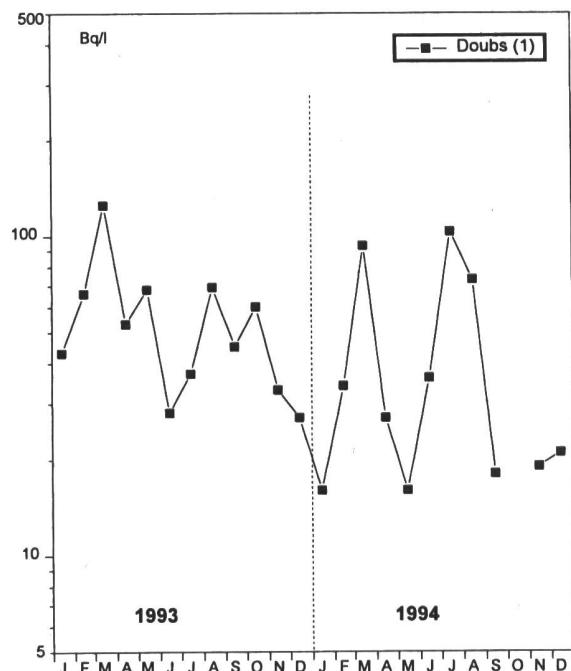


Messung: (1) SUER; (2) UNI BERN; (3) PSI

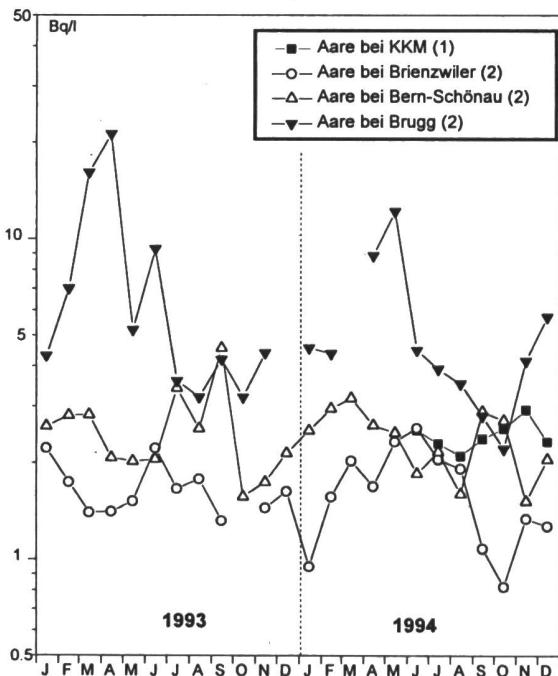
**Fig. 9e** Tritium im Regen  
Übersicht: Jahresmittel 1981-1994  
Basel, Guttannen, Locarno, Bern



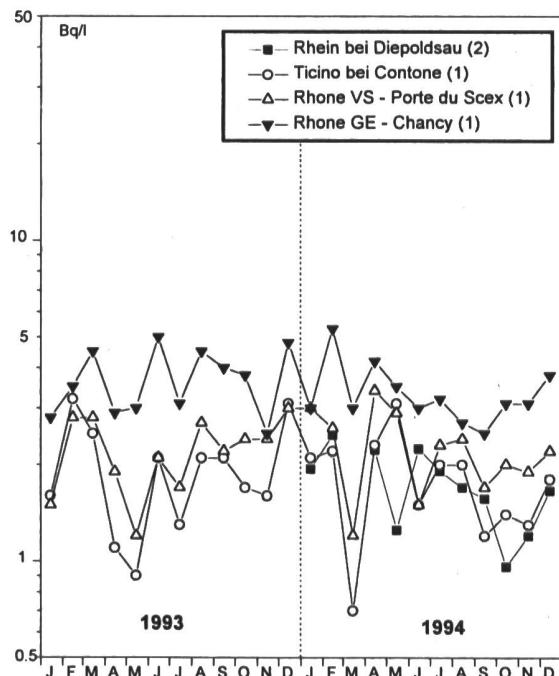
**Fig. 9f** Tritium im Flusswasser 1993-1994  
Doubs bei St. Ursanne



**Fig. 9g** Tritium im Flusswasser 1993-1994  
Aare bei KKM, Brienzwiler, Bern-Schönaу,  
Brugg



**Fig. 9h** Tritium im Flusswasser 1993-1994  
Rhein bei Diepoldsau, Ticino,  
Rhone Porte du Scex/VS, Chancy/GE



Messung: (1) SUER; (2) UNI BERN

### 3.3 MESURES IN SITU ET EXPOSITION EXTERNE

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

#### Résumé

*La spectrométrie gamma in situ constitue une méthode aux performances reconnues pour déterminer la radioactivité contenue dans le sol. Cette connaissance revêt un intérêt considérable dans l'évaluation de l'exposition du public aux rayonnements. En effet la présence de radionucléides dans le sol contribue à notre exposition externe et également à notre irradiation interne via la chaîne alimentaire ou suite à l'inhalation des radionucléides en émanation ou en resuspension.*

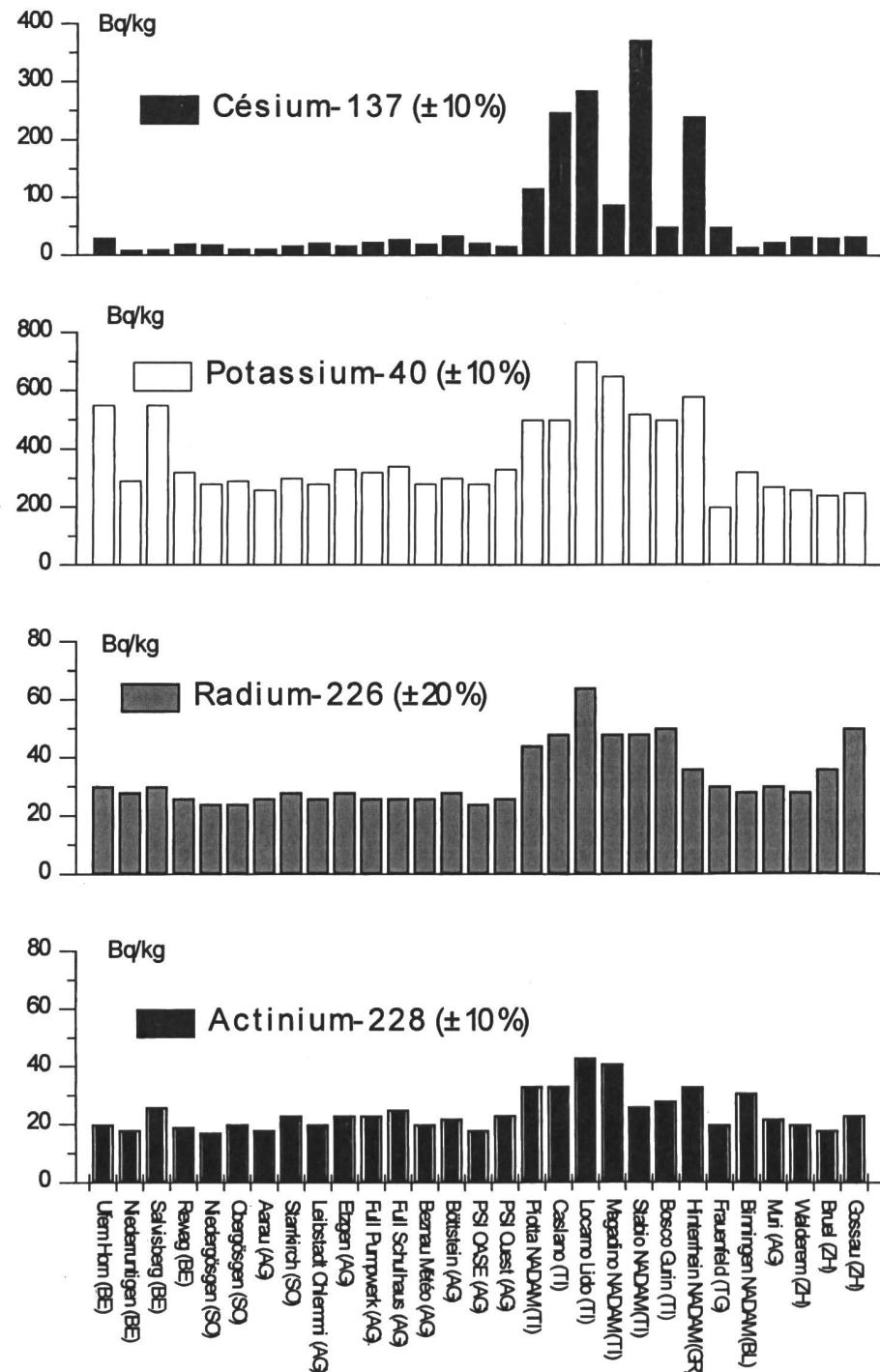
*La radioactivité naturelle des sols est caractérisée en permanence par les radioisotopes terrestres de longue vie, potassium-40, séries uranium-238 et séries thorium-232, dont la distribution est habituellement quasi uniforme.*

*La radioactivité artificielle provient essentiellement des contaminations atmosphériques causées par les essais nucléaires dans les années 50 et 60 et par l'accident au réacteur de Tchernobyl en mai 1986. Durant la phase de contamination, l'activité déposée se concentre principalement dans les couches supérieures du sol avant de se transférer graduellement dans les couches plus profondes. Au niveau des émetteurs gamma, le césium-137 (période 30 ans) reste le témoin privilégié de ces injections artificielles. Si l'on excepte les traces subsistantes des radioisotopes du césium et du cobalt-60 encore décelables localement auprès de Mühleberg en conséquence du rejet des résines radioactives en automne 1986, la spectrométrie gamma in situ ne signale aucun émetteur gamma témoin d'une contamination ou d'une accumulation attribuable aux rejets des centrales nucléaires suisses.*

#### 3.3.1. Les concentrations in situ (Fig. 1)

La figure 1 donne l'aperçu des concentrations in situ calculées en Bq/kg pour une distribution homogène des émetteurs gamma naturels et artificiels identifiés dans le sol. L'hypothèse homogène est réaliste pour les radionucléides naturels comme l'ont confirmé les analyses de profils de sol. Pour les radionucléides artificiels cette même hypothèse, même si elle n'est pas forcément conforme à la réalité, permet de déceler avec une bonne sensibilité tout nouvel apport d'un an sur l'autre. Une distribution uniforme peut également traduire le transfert progressif des contaminations par une décroissance plus rapide que ne le laisse prévoir les périodes des nucléides en question. Le choix d'une distribution uniforme s'adapte par conséquent fort bien aux exigences d'une surveillance suivie et sensible. Pour les contaminations, outre le césium-137, l'ensemble des sites examinées en 1994 est aussi marqué par le césium-134 avec un rapport moyen d'activité césium-137 / césium-134 =  $25 \pm 5$  caractéristique des retombées de Tchernobyl, sauf à Ufem Horn où ce rapport n'est que de 12.5 en raison de l'émission additionnelle en automne 1986 de ces radioisotopes du césium à Mühleberg. Les traces de cette contamination restent encore perceptibles au niveau du cobalt-60 avec  $1.6 \pm 0.3$  Bq/kg. Comme le montre la figure 1, ce sont les radionucléides naturels et le dépôt Tchernobyl (surtout au Tessin) qui indiquent les concentrations prédominantes.

**Figure 1: Concentrations in situ (Bq/kg) des principaux émetteurs gamma mesures SUER 1994**



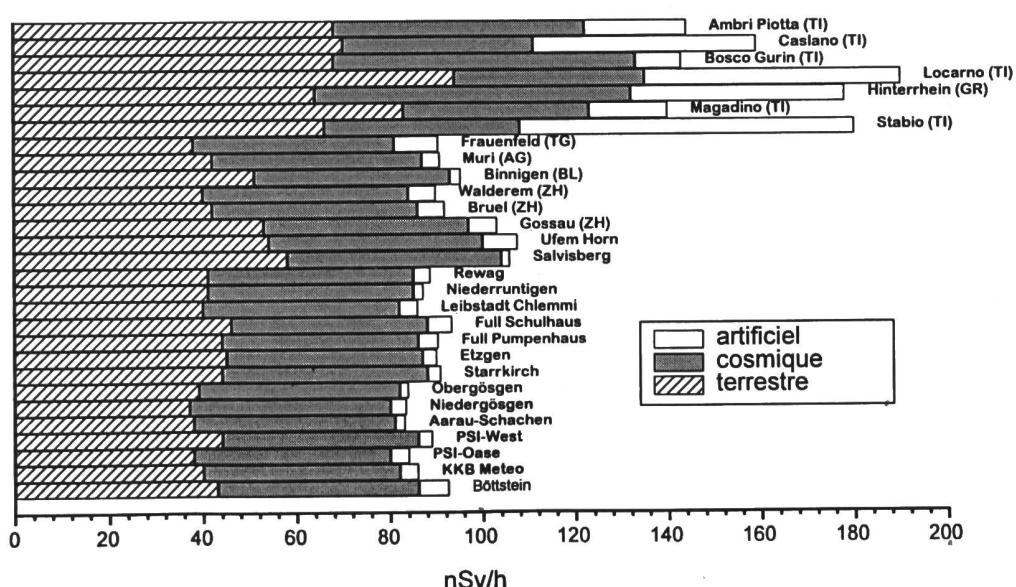
### 3.3.2. Exposition ambiante (Fig. 2)

La spectrométrie gamma in situ permet de surcroît de calculer l'exposition ambiante 1 mètre au-dessus du sol à partir des concentrations in situ. Les facteurs de conversion des concentrations en débit de dose ambiante  $\bar{H}^*(10)$  tiennent compte de toutes les émissions gamma du nucléide en question et des ses descendants. Ils sont indiqués dans le tableau suivant pour une distribution uniforme.

Radionucléides	Séries $^{238}\text{U}$	Séries $^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{60}\text{Co}$
nSv.h <sup>-1</sup> /Bq.kg <sup>-1</sup>	0.501	0.710	0.0464	0.174	0.474	0.747

Ainsi à partir des concentrations reportées dans la figure 1, on détermine les contributions à l'exposition ambiante indiquées dans la figure 2 en prenant également en compte la part cosmique calculée en nSv/h selon:  $\bar{H}^*(10) = 37 \cdot \exp(0.38 \cdot Z)$  où Z représente l'altitude exprimée en km. Il convient de mentionner que l'hypothèse d'une distribution uniforme de l'activité dans le sol implique une surestimation du débit de dose artificiel d'autant plus prononcée que les contaminations restent piégées dans les couches supérieures du sol. On peut déduire une surestimation d'un facteur voisin de 1.6 pour les sites où le transfert des contaminations en profondeur est faible. Au niveau de l'exposition ambiante totale, cette surestimation se traduit par une valeur calculée du débit de dose ambiante d'au plus 20% supérieure à la valeur mesurée avec la chambre d'ionisation pour les sites examinés en 1994.

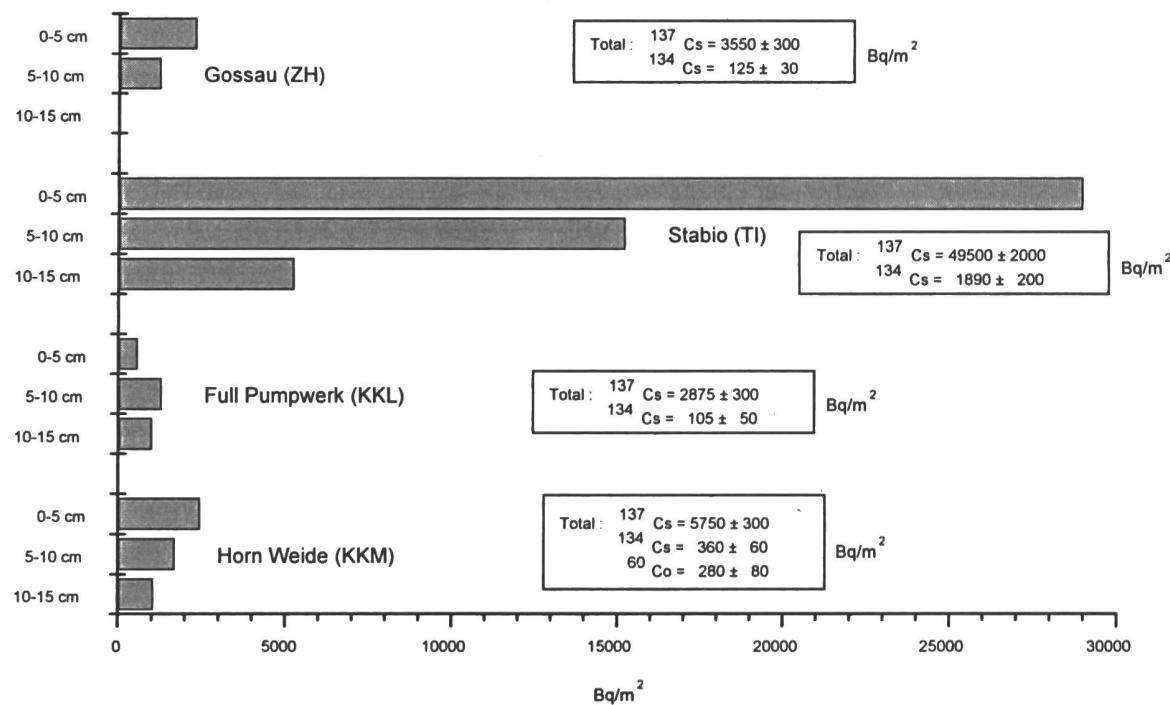
**Figure 2: Contributions à l'exposition ambiante dans les sites examinés en 1994  
mesures SUER**



### 3.3.3. Profils de sol (Fig. 3)

Le devenir des contaminations dépend de leur transfert dans le sol récepteur. La figure 3 montre la distribution du césium-137 dans les profils des sols suisses examinés en 1994. L'inventaire des contaminations peut être estimé à partir des spectres in situ en se basant sur une distribution exponentielle de la forme:  $A(\text{Bq} / \text{m}^2) = A_0 \exp(-\alpha/\rho \cdot \rho \cdot z)$ , où  $A_0$  représente la concentration en surface,  $\rho$  la densité du sol,  $1/\alpha$  la longueur de relaxation et  $z$  la profondeur. Pour 1994, une valeur  $\rho/\alpha$  voisine de  $8 \text{ g.cm}^{-2}$  restitue les concentrations totales reportées dans les graphiques. Cette valeur indique une progression annuelle du paramètre  $\rho/\alpha$  de l'ordre de  $1 \text{ g.cm}^{-2}$  depuis 1986, qui semble caractériser les sols suisses non soumis à des remaniements dus aux activités humaines. Une progression plus lente de ce paramètre se confirme cependant pour les sols forestiers ainsi que pour des sols au piégeage favorable par les argiles.

**Figure 3: Concentrations Césium-137 dans les profils de sols suisses examinés en 1994 mesures SUER**



Tant que les traceurs cobalt-60 et césium-134 sont détectables, le calcul des contaminations selon leur origine reste possible. Ainsi on peut distinguer dans les 15 premiers centimètres à Horn Weide les contributions suivantes:

Dépôt en Bq/m²	Cobalt-60	Césium-134	Césium-137
Résines KKM	$280 \pm 80$	$310 \pm 50$	$2900 \pm 200$
Tchernobyl		$50 \pm 10$	$1200 \pm 100$
Essais nucléaires		-	$1650 \pm 150$

Rapportées à 1986, ces concentrations sont conformes à celles déterminées par spectrométrie gamma in situ, pour une évaluation basée alors sur une distribution caractéristique d'une déposition humide ( $\rho/\alpha = 1 \text{ g.cm}^{-2}$ )

### 3.3.4. Conclusions et bilan radiologique

Les mesures in situ effectuées sur le territoire suisse en 1994 confirment le recul des contaminations, dont la contribution à l'exposition externe est en moyenne 10% inférieure à celle déterminée dans les mêmes sites en 1993. Cette diminution s'explique par la décroissance des contaminations et par leur transfert en profondeur. Aucune nouvelle contamination n'a été enregistrée dans les sites examinés, aussi bien dans le voisinage des centrales nucléaires suisses qu'en dehors de ce dernier. Un séjour permanent dans ces sites se traduirait par des doses ambiantes échelonnées de 0.7 à 1.7 mSv/an.

La part naturelle prédominante de 0.7 à 1.2 mSv/an se compose de 0.32 à 0.8 mSv/an provenant du rayonnement terrestre et de 0.35 à 0.6 mSv/an du rayonnement cosmique.

La part artificielle de 0.02 à 0.6 mSv/an est essentiellement due aux retombées de l'accident de Tchernobyl, dont l'impact maximal s'enregistre toujours au Tessin. Une faible contribution de l'ordre de 0.01 à 0.03 mSv/an incombe encore au césium-137 des essais nucléaires passés, qui a pu atteindre des couches plus profondes. Enfin, les traces subsistantes du rejet de résines radioactives à la centrale nucléaire de Mühleberg en 1986 occasionnent au point critique Ufem Horn une exposition additionnelle jusqu'à 0.05 mSv/an.

En résumé, les mesures in situ entreprises par la SUER en 1994 ne signalent 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. Un complément d'information sur le suivi et les principaux résultats des mesures in situ des 10 dernières années figure dans la référence [1]. Les performances des mesures de spectrométrie in situ et la qualité des résultats qui en résultent ont été attestées lors d'une intercomparaison entre la SUER et le laboratoire AC de Spiez à l'occasion de l'exercice NARADO mis sur pied par la CENAL. Au niveau international, ces deux laboratoires ainsi que celui de la DSN ont également pris part à une campagne de mesures en Autriche (Salzburg et Badgastein), où 26 laboratoires ont été engagés. Le rapport final de cette intercomparaison est en cours et devrait permettre aux spécialistes de cette technique de mesure de se situer dans le concert international et de s'améliorer sur les points problématiques qui leurs ont été soumis au niveau de l'évaluation des spectres, des facteurs de conversion en doses ambiantes et de l'estimation de sources ponctuelles enfouies dans le sol.

Nous n'aimerions pas omettre de remercier les responsables des diverses stations de l'Institut suisse de météorologie, les exploitants des centrales nucléaires, les collaborateurs de la DSN et du laboratoire AC de Spiez ainsi que toutes les personnes privées qui ont pu favoriser la bonne réalisation de nos mesures.

[1] « Radioactivité, environnement et centrales nucléaires: bilan décennal de surveillance (1984 - 1994) ». Ch. Murith, A. Gurtner, ISBN 3-905235-15-3, novembre 1994 OFSP/SUER

## 3.4. DIE AUTOMATISCHE ÜBERWACHUNG DER ORTSDOSEN MIT NADAM

**D. Rauber, A. Leonardi**

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

### 3.4.1. Übersicht

*Das seit 1988 im Routinebetrieb stehende Netz für die automatische Ortsdosisleistungsmessung und -alarmierung NADAM dient der grossräumigen und permanenten Überwachung der externen Strahlung. Das Netz zeichnete sich auch 1994 durch eine sehr hohe Verfügbarkeit aus. In einem Fall wurden bei Gösgen erhöhte Werte festgestellt, die durch eine bei Schweißnahtprüfungen eingesetzte Strahlenquelle verursacht wurden. Sonst wurden bis auf wenige Störungen keine besonderen Vorfälle registriert.*

*Ende 1993 wurde ein Messprogramm gestartet, in dem die Vergleichbarkeit der NADAM-Sonden mit anderen ähnlichen Geräten überprüft wurde. Im Schwerpunkt des Interesses standen dabei die Gegenüberstellung mit den Werten, die vom Messnetz zur automatischen Dosisleistungsmessung in der Umgebung der Kernkraftwerke MADUK gemessen werden, aber auch der Vergleich mit den Messnetzen benachbarter Länder.*

*1995 wird ein routinemässiges Qualitätssicherungsprogramm für die NADAM-Sonden eingeführt.*

### 3.4.2. Spezielle Ereignisse

Auch 1994 konnte das NADAM-Netz eine räumlich und zeitlich praktisch lückenlose grossräumige Überwachung gewährleisten. In der Berichtsperiode wurden keine Werte festgestellt, die auf eine erhöhte Strahlenexposition der Bevölkerung schliessen liessen. Einige besondere Vorkomnisse, die zu Störungen oder zu einer Zunahme der Messwerte führten, werden im folgenden kurz geschildert.

#### *Sonde Leibstadt, 7. - 8. 9.: Stationsausfall infolge Blitzschlag*

Bei der Station Leibstadt wurde in der Nacht des 7. September 1994 die Elektronik durch einen Blitzschlag stark beschädigt. Dies hatte einen Ausfall der Station während ca. 35 Stunden zur Folge.

#### *Sonde Mühleberg, 8.9. und 12. 9.: Erhöhte 10-Minutenwerte*

Am 8. und am 12. September 1994 wurden von der Sonde Mühleberg je ein einzelner stark erhöhter 10-Minutenwert registriert, die am gleichen Standort stationierte MADUK-Sonde hingegen zeigte keinen entsprechenden Effekt. Diese Ausschläge sind auf technische Störungen zurückzuführen, deren Ursache vermutlich elektromagnetische Pulse waren, die von Blitzen ausgelöst wurden. Zu dieser Zeit herrschten in der ganzen Region Gewitter.

### *Sonde Gösgen, 21.11. und 15. 12.: Erhöhte Werte bei Schweißnahtüberprüfungen*

Am 21. November und am 15. Dezember 1994 wurden in der Nähe der Sonde Gösgen, jedoch ausserhalb des Werkgeländes, mit einer Strahlenquelle Schweißnähte überprüft. Dies führte vereinzelt zu erhöhten Zehnminutenwerten sowohl bei der NADAM-, als auch bei der nächstgelegenen MADUK-Sonde. Ein Vergleich der von beiden Sonden registrierten Werte ist in *Fig. 1* dargestellt.

### **3.4.3. Erfahrungswerte und Mittelwerte**

Die Erfahrungswerte wurden anhand des neuen Datenmaterials überprüft. Eine Darstellung der Jahresmittelwerte sowie der extremen Wochenwerte für die einzelnen Stationen ist in *Fig. 2* abgebildet. Auch dieses Jahr ergeben sich für mehrere Stationen leichte Änderungen. Für Sonden, deren Mittelwert 1994 um mehr als 5 nSv/h vom bisherigen Erfahrungsbereich abweichen, wurden entsprechende Anpassungen vorgenommen. Diese sind in der nachfolgenden Tabelle zusammengefasst.

Station	Erfahrungswerte 1993 [nSv/h]	Erfahrungswerte 1994 [nSv/h]	Neue Erfahrungsbereiche [nSv/h]	Ursache der Änderung des Erfahrungswerts
Jungfraujoch	219	215	180-250	unbekannt
Lugano	161	158	135-185	Tschernobyl
Stabio	200	194	160-225	Tschernobyl

In den letzten Jahren konnte in den Regionen, die 1986 stärker vom radioaktiven Niederschlag von Tschernobyl betroffen waren, eine kontinuierliche Abnahme der ODL-Werte beobachtet werden. Sie ist in erster Linie durch den physikalischen Zerfall und das langsame Eindringen der langlebigen Radionuklide in den Boden bedingt. Dieser Trend setzt sich zwar weiter fort, ist aber mit der Zeit schwächer geworden und liegt heute bereits im Bereich der natürlichen Schwankungen. So zeigt z. B. der Erfahrungswert von Lugano dieses Jahr eine weitere leichte Abnahme, während derjenige der Station Hinterrhein nach dem starken Rückgang vom letzten Jahr wieder etwas angestiegen ist. Der langfristige Verlauf jedoch ist für beide Stationen abnehmend (*Fig. 3*).

### **3.4.4. Korrektion**

Vergleiche zwischen den NADAM-Messwerten und der mit anderen Geräten bestimmten Ortsdosisleistung haben gezeigt, dass die NADAM-Werte systematisch höher liegen als jene anderer Messgeräte. Um die Ursache dieser Diskrepanz zu untersuchen, wurden Ende 1993 Messungen durchgeführt, in denen man die Überbewertung der kosmischen Strahlung sowie den apparativen Nulleffekt der NADAM-Sonden bestimmt hat. Die Untersuchungen haben gezeigt, dass die NADAM-Werte um ca. 40 nSv/h zu hoch sind, was je ca. zur Hälfte auf den Eigennulleffekt und die Überbewertung die kosmischen Strahlung zurückzuführen ist. Wie auch bei anderen Netzen üblich, wird bei den NADAM-Werten die Überbewertung der kos-

mischen Strahlung auch in Zukunft nicht korrigiert. Wo es für den Vergleich mit anderen Messungen wichtig ist, wird hingegen für den Eigennulleffekt ein mittlerer Wert von 20 nSv/h subtrahiert. Diese Umstellung ist auf den 1.10.95 geplant.

Dieser Effekt kann auch bei den Vergleichsmessungen zwischen NADAM- und EG-90 beobachtet werden, die anlässlich der Jahresrevision der NADAM-Sonden durch die Schweizerische Meteorologische Anstalt SMA durchgeführt werden. Diese Messungen wurden nicht unter Laborbedingungen durchgeführt und zeigen dementsprechend eine grössere Streuung. Sie liefern uns aber eine Statistik, die alle Sonden über mehrere Jahre erfasst, und ermöglichen auch standortspezifische Vergleiche der beiden Geräte. Eine Zusammenstellung der während der letzten vier Jahre gemessenen Werte ist in *Fig. 4* abgebildet. Daraus ergibt sich eine Abschätzung für den Offset, die erstaunlich gut mit dem im Labor bestimmten Wert übereinstimmt.

### **3.4.5. Vergleich mit weiteren Messnetzen**

Seit September 1994 können die Daten der in Payerne stationierten Sonde des französischen Netzes TELERAY abgerufen werden. Erste Vergleiche zeigen auch hier eine gute Übereinstimmung, wobei wiederum bei den NADAM-Sonden die in Abschnitt 4 erwähnte Effekte sichtbar sind (*Fig. 5*).

Bei der auf dem Schauinsland bei Freiburg i. Br. installierten NADAM-Sonde, die einen Vergleich zwischen dem schweizerischen und dem deutschen Messnetz (WADIS) bieten soll, gibt es hingegen noch einige Probleme bei der automatischen Datenübermittlung über die Landesgrenzen hinweg. Dies hängt vor allem mit der hierfür gewählten neuen Technologie zusammen, die bis heute kaum bei Messnetzen angewendet wurde.

### **3.4.6. Qualitätssicherung**

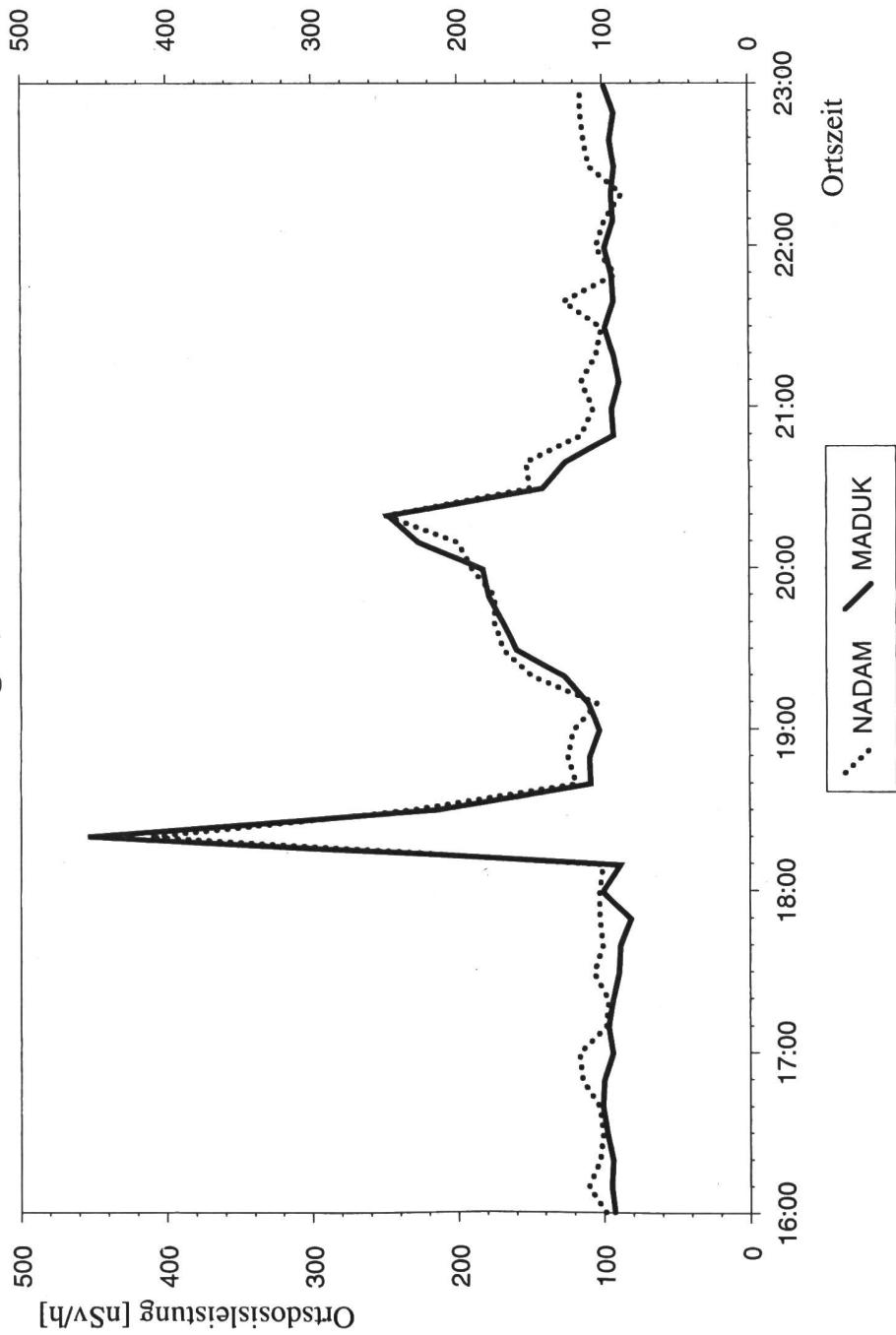
Im Jahr 1995 wird ein Qualitätssicherungsprogramm für die NADAM-Sonden gestartet. Das Programm sieht folgende Schritte vor:

1. Ermitteln der wesentlichen physikalischen Eigenschaften der NADAM-Sonden im Sinne einer Typenprüfung (Eigennulleffekt, Kalibrierung, Linearität, Richtungs-, Energie- und Temperaturabhängigkeit)
2. Qualitätssicherung durch die jährliche Überprüfung ausgewählter Sonden (Eigennulleffekt, Kalibrierung, Linearität)

Der erste Teil der Überprüfung wird Ende März 1995 abgeschlossen. Anschliessend wird die routinemässige Qualitätssicherung gestartet, bei der ca. 10 Sonden pro Jahr überprüft werden wird. Bei einem Bestand von ca. 60 Stationen ergibt sich daraus für die einzelnen Sonden ungefähr ein 6-Jahresrhythmus.

## Vergleich NADAM - MADUK

Station Gösgen, 21. November 94



**Fig.1:** Verlauf der Zehnminutenwerte der Ortsdosisleistung der beim KKW Gösgen stationierten NADAM- und MADUK-Sonde am 21.11.94. Die hier beobachteten Spitzen wurden durch die Überprüfung von Schweißnähten mit einer Strahlenquelle verursacht wobei die Untersuchung ausserhalb des Werkareals durchgeführt wurde. (NADAM-Werte ohne Korrektion)

## Jahresmittelwert 1994 nach Regionen

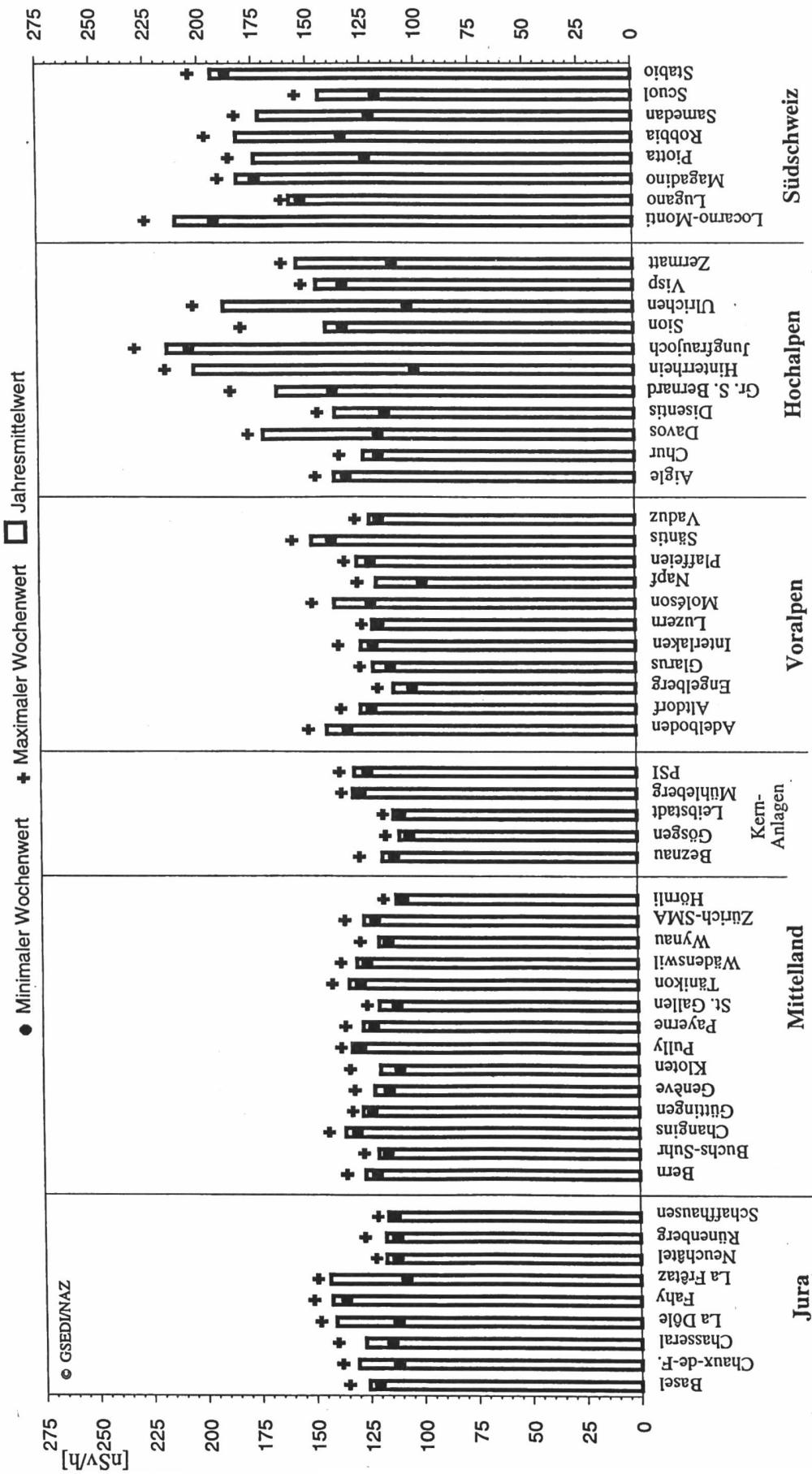
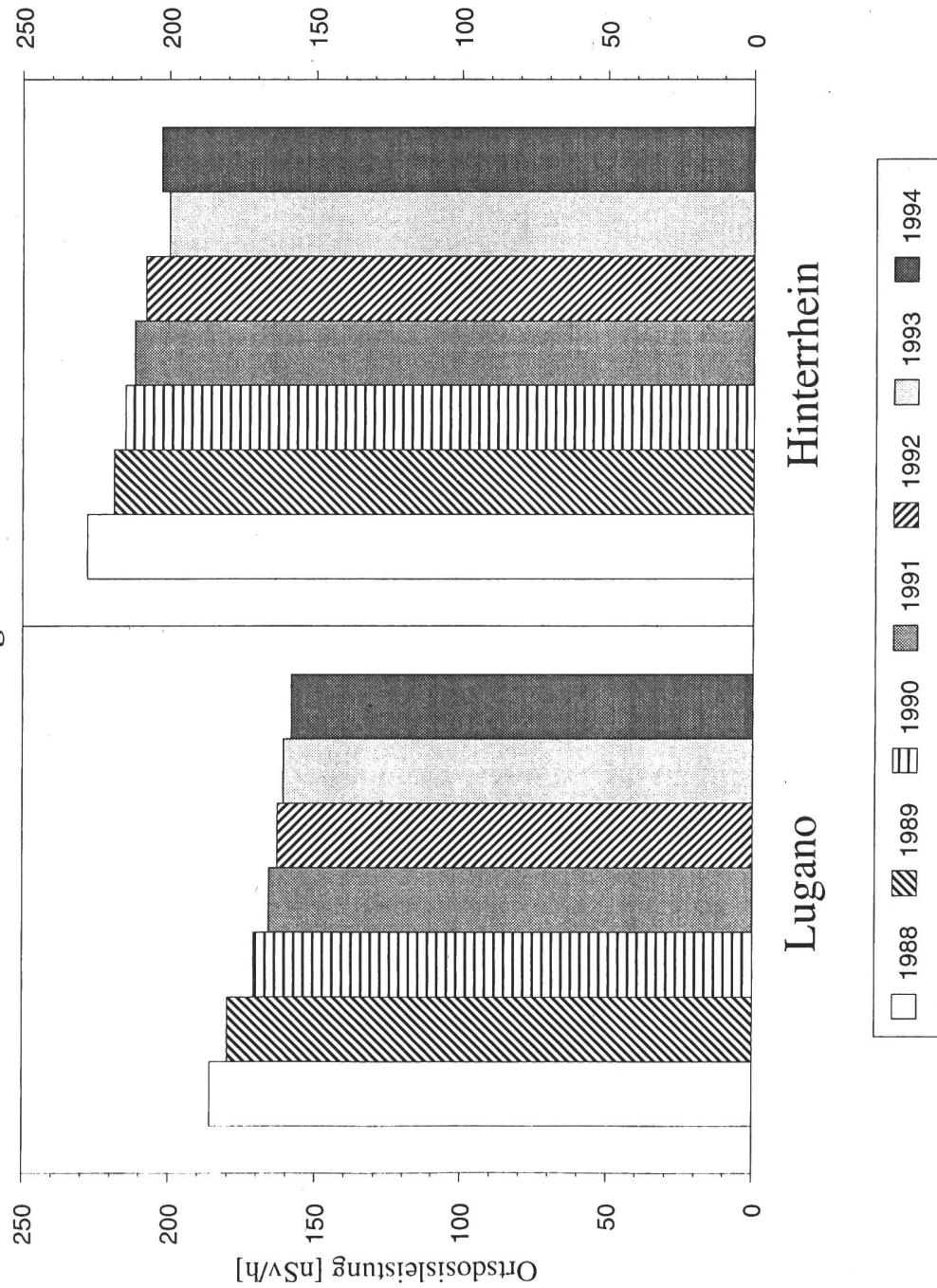


Fig. 2: Jahresmittelwerte der NADAM-Sonden 1994, aufgeteilt nach Regionen (Werte ohne Korrektion).

Die Ortsdosleistung variiert je nach Standort zwischen 110 - 225 nSv/h. Dies ist vor allem durch Unterschiede in der natürlichen Strahlung bedingt; einerseits hängt sie von Art und Zusammensetzung des Bodens zusammen, andererseits nimmt die Intensität der kosmischen Strahlung mit der Höhe zu. Der künstliche Beitrag durch den Tschernobylausfall und die Atombombentests ist heute praktisch ver-

## Verlauf der Erfahrungswerte

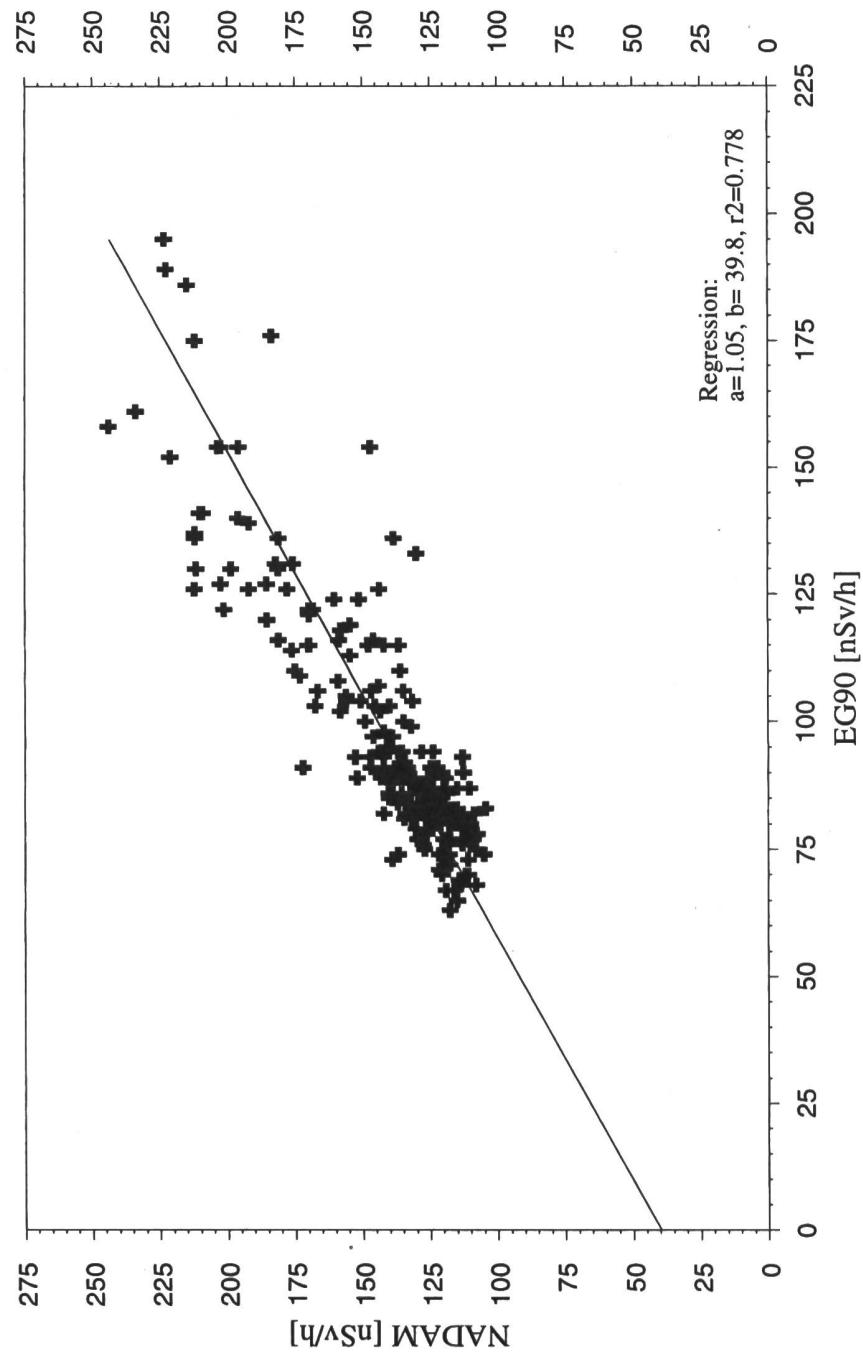
für zwei ausgewählte Stationen



**Fig. 3:** Verlauf der Erfahrungswerte der Stationen Lugano und Hinterrhein für die Periode 1988 - 1994 (Werte ohne Korrektion). Stationen in Gebieten, die von radioaktiven Niederschlägen nach dem Unfall in Tschernobyl stark betroffen waren, zeigen eine kontinuierliche Abnahme der Ortsdosisleistung. Diese Abnahme entspricht der Reduktion des künstlichen Anteils der Strahlung (bedingt durch den radioaktiven Zerfall und das Eindringen der langlebigen Radionuklide in tiefere Bodenschichten). In der Graphik ist der Verlauf der Erfahrungswerte der Jahre 1988 bis 1994 für die Orte Lugano und Hinterrhein dargestellt.

## Vergleich NADAM - EG90

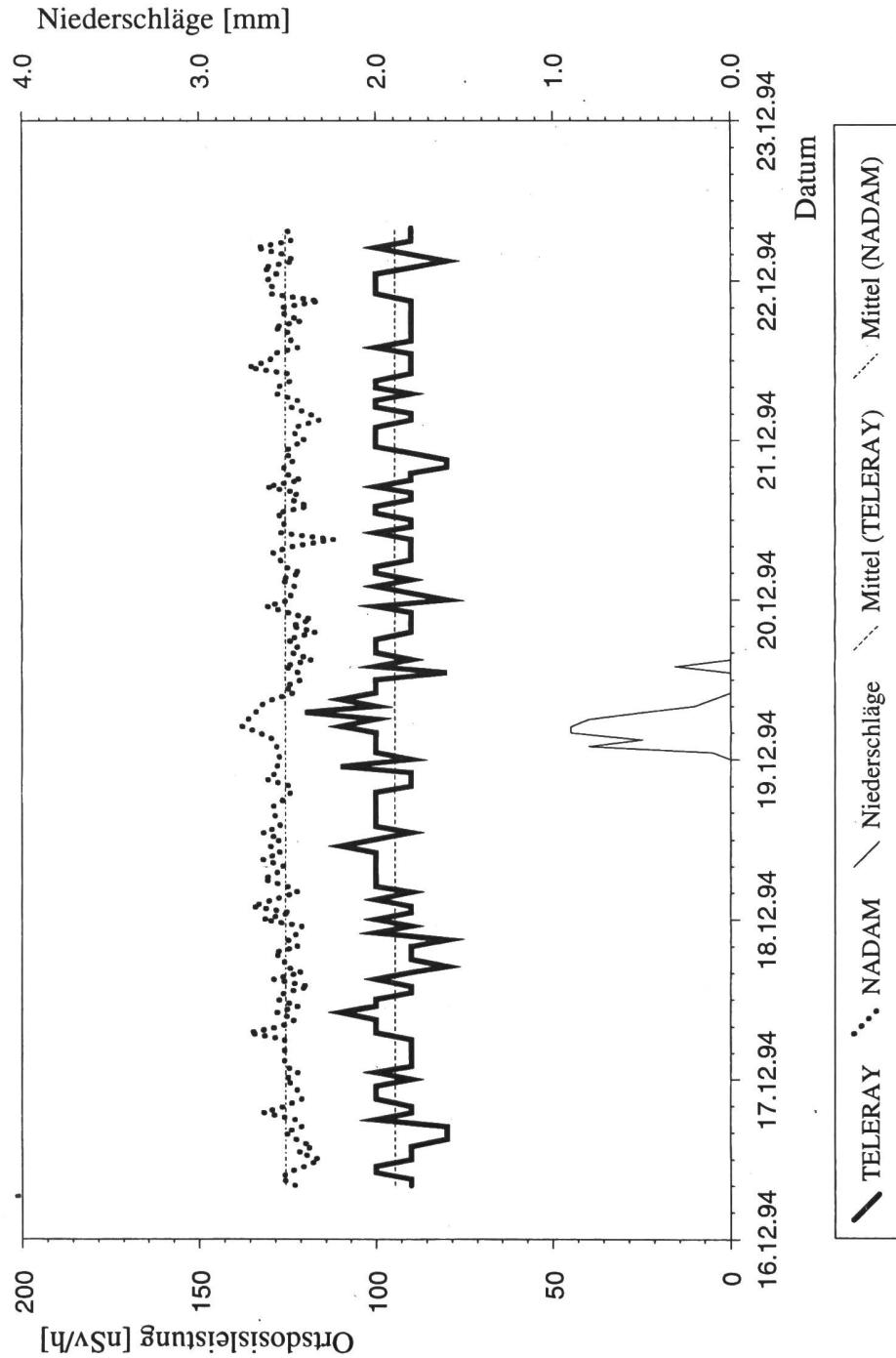
Werte 1991 - 1994



**Fig. 4:** Vergleich der NADAM- und EG-90-Werte. (Stundenmittelwerte, Werte der NADAM-Sonde ohne Korrektion). Die durch lineare Regression aus diesen Daten bestimmte Abweichung liegt bei 39 nSv/h und stimmt somit gut mit dem im Labor bestimmten Wert überein.

## Vergleich TELERAY - NADAM

16.22. Dezember 1994



**Fig. 5:** Verlauf der Ortsdosisleistung der NADAM-Sonden Payerne und der am gleichen Standort stationierten französischen TELERAY-Sonde.  
Dargestellt sind die Stundenwerte (Werte der NADAM-Sonde ohne Korrektion).

### 3.5. DIE NATÜRLICHE TERRESTRISCHE UND KOSMISCHE STRAHLUNG IM HAUSINNERN UND IM FREIEN

**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 im menschlichen Körper vorhanden. Ihr Vorkommen im Boden und in Baumaterialien führt zu einer permanenten 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. einen Fünftel der durchschnittlichen jährlichen Strahlenexposition der Bevölkerung in der Schweiz aus. Im Hausinnern wird die terrestrische und kosmische Strahlung durch die Hauswände zwar geschwächt, andererseits kommt aber ein geringfügig höherer Beitrag durch die Radionuklide in den Baustoffen hinzu, sodass die Dosen im Hausinnern im Durchschnitt gesamthaft um etwa einen Fünftel höher sind als im Freien. Der Variationsbereich dieser Dosiskomponente ist allerdings nicht so gross wie beim Radon.*

#### **3.5.1. Einleitung**

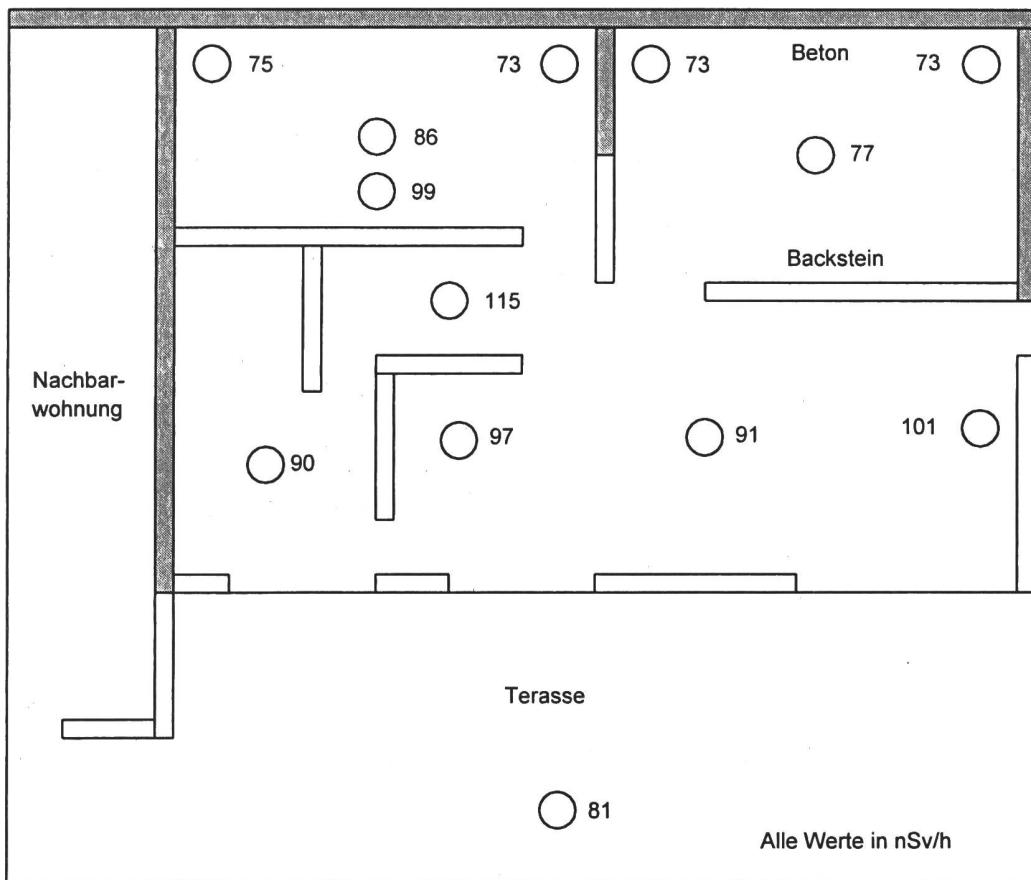
Im Rahmen des BAG-Projektes «Natürliche Strahlung in der Schweiz» werden die Beiträge der natürlichen Radionuklide und der kosmischen Strahlung zur externen Dosis im Freien und im Hausinnern erfasst. Ein weiteres Ziel ist die Ermittlung der zivilisationsbedingten Einflüsse wie z.B. der Anteil durch die Radionuklide in den Baustoffen sowie die Verminde-  
lung der Dosen im Hausinnern infolge Absorption der kosmischen und terrestrischen Strah-  
lung durch die Gebäudehüllen. Von Interesse ist weiter auch die Frage, wie weit die Ortsdosis-  
leistung mit der örtlichen Radon-Konzentration korreliert.

#### **3.5.2. Messungen im Hausinnern**

Bisher wurden Messungen im Hausinnern schwerpunktmässig im Kanton Freiburg durchge-  
führt. Sie zeigen eine Abhängigkeit vor allem von den folgenden Faktoren:

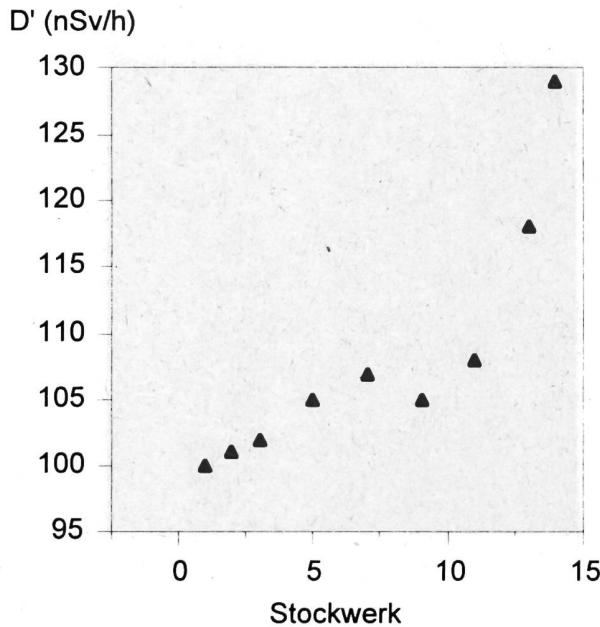
- verwendetes Baumaterial (Radionuklidegehalt der Baustoffe)
- Raumgeometrie (Grösse des Raumes, Abstand des Messpunktes zu den Wänden)
- Anzahl Stockwerke eines Gebäudes
- Stockwerk, auf dem die Messung durchgeführt wird.

Bei der Dosisleistung im Hausinnern spielt der unterschiedliche Radionuklidgehalt in den Baustoffen eine wichtige Rolle, aber auch die Raumgeometrie, d.h. die Grösse des Raumes und die Messanordnung, wie aus Fig. 1 und 2 ersichtlich ist. Figur 1 zeigt den Einfluss der Baustoffe: Bei den in der Region Freiburg verwendeten Baumaterialien haben die Backsteine im Mittel einen etwa 5-mal höheren Radionuklidgehalt als der Beton. Im weiteren ist auf der Figur auch der Einfluss der Raumgeometrie, d.h. des Abstandes zu den Wänden zu erkennen.



**Figur 1:** *Ortsdosisleistung (nSv/h) in einem Neubau: Der höhere Radionuklidgehalt der verwendeten Backsteine führt zu höheren Dosiswerten in der Nähe von Backsteinwänden, der tiefere Gehalt des Betons zu niedrigeren in der Nähe von Betonwänden; tiefer sind die Werte auch in der Mitte der Räume und in den grossen Räumen. Der Fehler der Messwerte beträgt  $\pm 1$  nSv/h.*

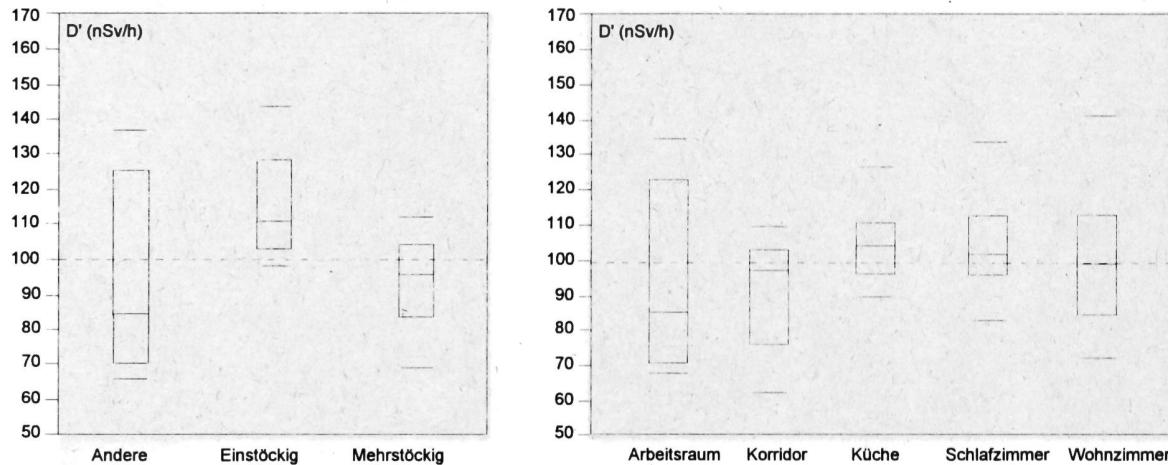
In Hochhäusern wird der Beitrag durch die kosmische Strahlung, je nach Stockwerk, durch die Betonböden der darüberliegenden Stockwerke geschwächt. Mit zunehmender Stockwerknummer steigt daher die Dosisleistung annähernd exponentiell an, wie auf Fig. 2 anhand einer Messung in einem solchen Gebäude in der Stadt Freiburg ersichtlich ist.



**Figur 2:**

*Ortsdosiseleistung (nSv/h) in Abhängigkeit vom Stockwerk: Bei den unteren Stockwerken ist die Absorption der kosmischen Strahlung durch die darüberliegenden Betondecken grösser als bei den oberen. Der Fehler der Messwerte beträgt  $\pm 1$  nSv/h.*

Betrachtet man die Mittelwerte der Ortsdosiseleistung in der Region Freiburg (Fig. 3), z.B. klassiert nach Haus- oder Raumtyp, so ergeben sich zwar geringere Variationsbreiten als beim Radionuklidegehalt in Baumaterialien, aber grosse Streuungen um den Mittelwert. Das Verhältnis zwischen Maximal- und Minimalwerten von bis zu einem Faktor 3 liegt somit im Bereich der Variation der lokalen Radionuklidegehalte.



**Figur 3:** *Häufigkeitsverteilung der Ortsdosiseleistung (nSv/h) nach Haus- und Raumtyp: Der mittlere Strich entspricht dem Median, die Box 25%-75% und die äusseren Striche 10% und 90%.*

Der Unterschied zwischen den einstöckigen und mehrstöckigen Häusern liegt in der stärkeren Absorption der kosmischen Strahlung und der häufigeren Verwendung von Beton bei den letzteren.

Der viel kleinere Variationsbereich der Dosiswerte im Vergleich zu jenem der lokalen Radionuklidkonzentrationen in Baumaterialien hat zwei mögliche Gründe: Zum einen macht der Beton, der in der Regel geringere Variationen bei der Radionuklidkonzentrationen aufweist als der Backstein, die grössere Masse eines Hauses aus und ein Haus ist nie ausschliesslich aus Backsteinen gebaut. Zum andern wurden die Messungen meistens an den Aufenthaltsorten der Bewohner, also nicht in unmittelbarer Nähe der Wände gemacht. Eine feinere Einteilung bezüglich der möglichen Einflussgrössen wie Wände, Boden, Strahlung im Freien, Anteile der kosmischen oder terrestrischen Strahlung etc. ergibt daher keine statistisch signifikanten Unterschiede.

Der oft verwendete «Housingfactor» ist definiert, als das Verhältnis zwischen der Dosisleistung im Hausinnern und derjenigen im Freien in der Nähe des Hauses. Anhand der Messungen im Kanton Freiburg kann er durch folgende empirische Formel ersetzt werden.

$$D'(\text{Innen}) = 1.7 \pm 0.1 * D'(\text{terrestrisch}) + 0.63 \pm 0.09 * D'(\text{kosmisch})$$

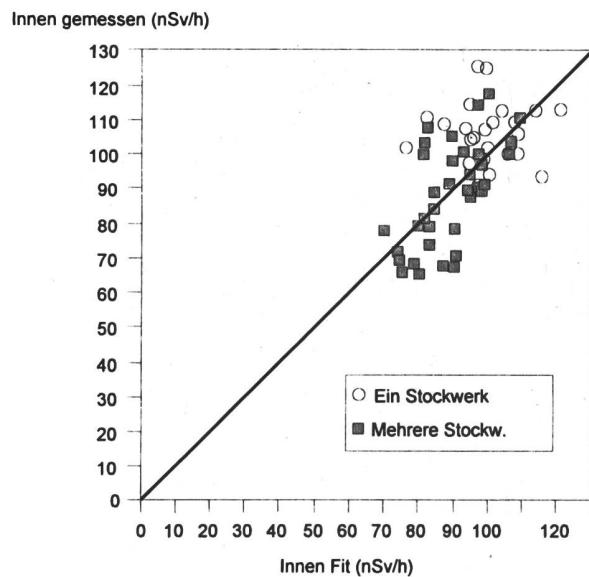
Für die bisherigen Messungen kann mit dieser Formel ein Erwartungswert, mit einer durchschnittlichen Genauigkeit von etwa 15 %, berechnet werden. Die Formel basiert auf folgenden Annahmen:

- die Regressionsgerade auf Figur 4 gehe durch den Ursprung, d.h. der Eigennulleffekt der Messgeräte werde vernachlässigt,
- das Baumaterial habe eine ähnliche Radionuklidkonzentration wie der Erdboden in der Umgebung der Gebäude (was für den Beton annähernd der Fall sein dürfte).

Daraus ergibt sich die folgende physikalische Aussage für die Dosis im Hausinnern:

- die kosmische Strahlung wird auf ca. 65 % geschwächt (was mit Simulationsrechnungen übereinstimmt),
- die externe Gamma-Strahlung wird durch den grösseren Raumwinkel bezüglich der Radionuklide in den Gebäudewänden deutlich verstärkt.

Für eine genauere Verifizierung dieser Formel sind allerdings mehr Messwerte und eine bessere Statistik nötig. Unter diesem Aspekt erweist sich der «Housingfactor» als eine regional beschränkt brauchbare Grösse.

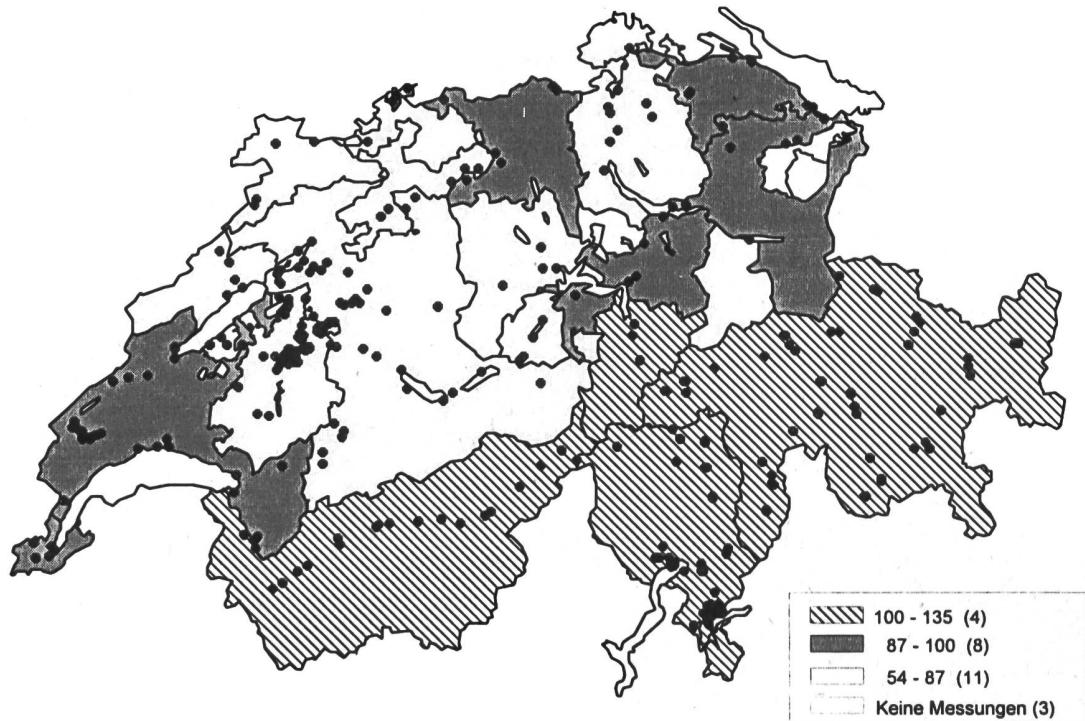


**Figur 4:**

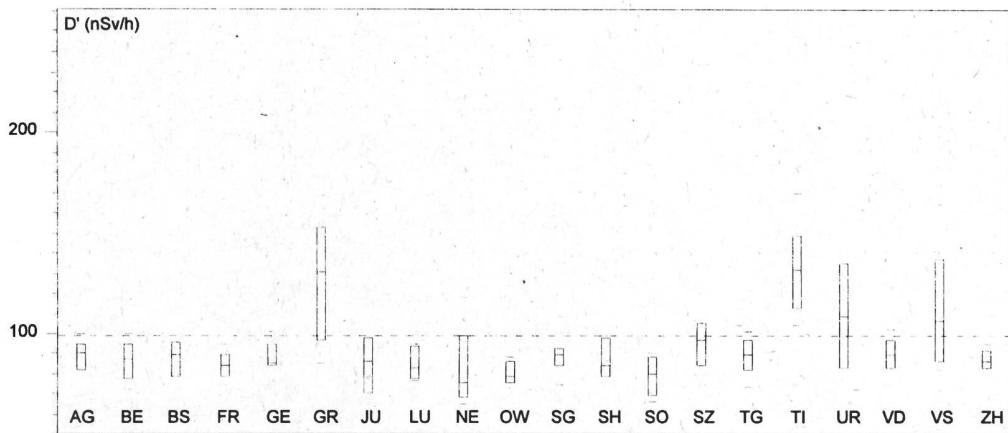
*Vergleich der gemessenen und berechneten (s. Formel) Dosisleistung (nSv/h) im Hausinnern. Der Fehler der Messwerte beträgt  $\pm 1$  nSv/h.*

### 3.5.3. Messungen im Freien

Um das weitere Vorgehen optimieren zu können, lag 1994 das Hauptgewicht auf den Übersichtsmessungen im Freien im ganzen Land. Damit sollten geographische Gebiete mit möglicherweise erhöhten Dosisbeiträgen von solchen mit mehr oder weniger tiefen und konstanten Dosisanteilen unterschieden werden können. Figur 5 zeigt eine Karte der Schweiz mit den Kantonsmittelwerten und der Verteilung der Messpunkte und Figur 6 die Verteilung der Mess- und Mittelwerte nach Kanton aufgetragen.

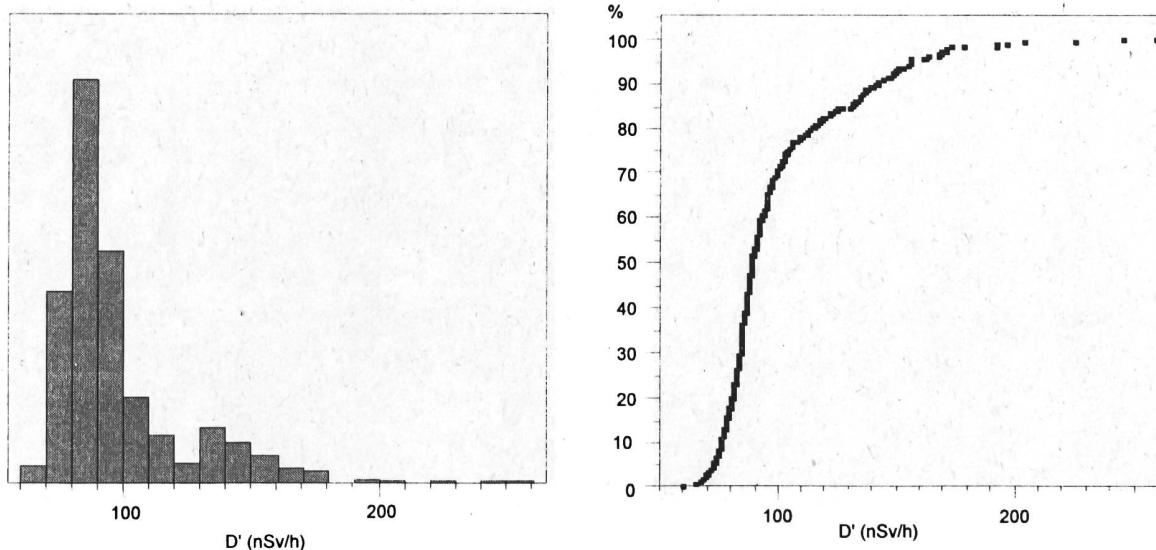


**Figur 5:** *Karte der mittleren Dosisleistung nach Kantonen: Verteilung der Messpunkte im Freien.*



**Figur 6:** Häufigkeitsverteilung der Dosismesswerte ( $nSv/h$ ) nach Kantonen.  
Der mittlere Strich entspricht dem Median, die Box 25%-75% und die äusseren Striche 10% und 90%.

Es zeigt sich, dass die Messungen in den Mittellandkantonen, dem Jura und den Voralpen ähnliche Mittelwerte und Variationsbereiche aufweisen, im Gegensatz zu den Bergkantonen, die höhere Werte zeigen. Bei den weiteren Untersuchungen soll deshalb vor allem in den letzteren gemessen werden, d.h. südlich einer Linie Bodensee-Genfersee. In Figur 7 ist die Häufigkeitsverteilung der Messwerte aufgetragen. Der Mittelwert beträgt  $99 \pm 1$   $nSv/h$ . Es sind zwei Maxima zu erkennen, entsprechend den Messwerten aus den Bergkantonen und jenen aus dem Unterland. Die diesbezügliche Einteilung der Schweiz in geologische Gebiete und die Quantifizierung des Zusammenhangs mit der Ortsdosisleistung sind noch in Bearbeitung.



**Figur 7:** Häufigkeitsverteilung und Summenkurve der Dosismesswerte ( $nSv/h$ ) im Freien aus der ganzen Schweiz.

### 3.5.4. Weiteres Vorgehen

Für das weitere Vorgehen, bis zum Abschluss des Projektes, sind folgende Schwerpunkte vorgesehen:

- a) **Weitere Messungen zur Vervollständigung der Daten:** Die Analyse der bisherigen Messungen in Häusern und im Freien erlaubt Rückschlüsse bezüglich der statistischen Sicherheit der im Rahmen dieses Projektes gewonnenen Ergebnisse sowie der für den Abschluss noch erforderlichen Anzahl Messungen. Geht man von rund 300 zusätzlichen Dosismessungen (jeweils im Hausinnern und im Freien in der Nähe des Hauses) aus, dann kann pro Kanton mit einer Genauigkeit des Mittelwertes von rund 10% ( $1\sigma$ ) gerechnet werden. Im Mittelland, dem Jura und den Voralpen soll daher noch in 2 bis 3 Bezirkshauptorten gemessen werden. In den Gebirgskantonen, südlich einer Linie Bodensee-Genfersee, sind mehr Messungen erforderlich, weshalb dort in jedem Bezirkshauptort sowie in weiteren grösseren Ortschaften der einzelnen Bezirke gemessen wird. Bei diesem Vorgehen kann für das Landesmittel eine Genauigkeit der Prognose von besser als 2.5% ( $1\sigma$ ) erreicht werden, bei einer Auflösung der Karte auf Bezirksgrossen (im Unterland auf Kantonsgrösse). Es sei hier noch angemerkt, dass die bisherigen und auch die zukünftigen Messungen in Ortschaften und deren näherer Umgebung durchgeführt wurden bzw. werden. Dies ergibt keine flächendeckende, sondern eine bevölkerungsbezogene Verteilung der Messpunkte, was auch dem Ziel dieses Projektes entspricht.
- b) **Radionuklide im Boden und in Baustoffen:** Um den Zusammenhang zwischen lokalen Radionuklidkonzentrationen des Bodens und Ortsdosisleistungen zu erstellen, werden an jedem Ort Proben von Erdboden und vom lokal verwendeten Baumaterial gamma-spektrometrisch untersucht. Einige zusätzliche Bodenprofile sollen Aufschluss über die Verteilung der Radionuklide im Boden und die Anteile der verschiedenen Komponenten an die Ortsdosisleistung ergeben.
- c) **Kalibrierung und Traceability der Dosismessung:** Eine standardisierte Kalibration der Messgeräte soll die Rückführbarkeit der Ortsdosismesswerte und den Bezug auf die entsprechenden ICRU- bzw. ICRP-Definitionen dieser Grösse sowie den Anschluß an internationale Standards gewährleisten.
- d) **Simulationsrechnungen:** Weitere Simulationsrechnungen werden schliesslich den Einfluss der **Baumaterialien** auf die Ortsdosisleistung im Hausinnern, die Absorption der terrestrischen und kosmischen Strahlung durch die **Gebäudewände** und die Anteile durch die verschiedenen Radionuklide erhellen.

## 3.6. AERORADIOMETRISCHE AUFNAHMEN IN DER UMGEBUNG DER SCHWEIZERISCHEN KERNANLAGEN

**G. Schwarz<sup>1</sup>, L. Rybach<sup>2</sup>, E. Klingelé<sup>2</sup>**

<sup>1)</sup> Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen (HSK), 5232 VILLIGEN-HSK

<sup>2)</sup> Forschungsgruppe Geothermik und Radiometrie, Institut für Geophysik der ETH  
Hönggerberg, 8093 ZÜRICH

### 3.6.1. Zusammenfassung

*Seit 1989 wurde die Umgebung der schweizerischen Kernanlagen jährlich vermessen. Die Messungen dienen zur Erweiterung der Beweissicherung sowie als Vergleichsbasis bei allfälligen Verstrahlungsfällen. Eigens für diese Messungen wurde eine spezielle Methodik für die Datenakquisition, Datenverarbeitung und Kartierung entwickelt.*

*Zusätzlich zu den jährlichen Berichten zuhanden der Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen (HSK), wurden zwei abschliessende Publikationen über die Methodik, die Resultate der Messungen sowie über das im Rahmen des Projektes vollständig erneuerte Messsystem erstellt.*

*Seit 1994 ist die Aeroradiometrie in die Einsatzorganisation Radioaktivität des Bundes integriert. Für die Notfalleinsätze wurde das Messgerät in Zusammenarbeit mit dem EMD in einen Super-Puma-Helikopter der Armee eingebaut.*

*Während der Messungen im Rahmen einer Ausbildungsübung hat das Messsystem einwandfrei funktioniert. Vermessen wurden die Gebiete um das KKL, das KKB und das PSI. Die Datenqualität war sehr gut.*

*Um die Quellensuche zu trainieren, wurden in einem weiteren Messgebiet im Zürcher Oberland verschiedene Quellen ausgelegt. Mit Ausnahme einer K-40 Quelle (Lastwagen voller Kalidünger) konnten alle ausgelegten Quellen detektiert werden. Sogar eine Cs-137 Quelle im offenen Abschirmbehälter konnte trotz der starken seitlichen Kollimierung erkannt werden.*

*Anhand der bestehenden radiometrischen Daten (Aerogammaspektrometrie, in situ-Gammaspektrometrie, Labormessungen an Gesteins- und Bodenproben), wurden radiometrische Karten der Schweiz erstellt (K-40, Bi-214, Tl-208, Cs-137; terrestrische Dosisleistung und kosmische Dosisleistung). Diese Karten können als Referenz bei Verstrahlungsfällen herangezogen werden.*

### **3.6.2. Abschliessende Publikationen**

Die zwei abschliessenden Publikationen über die Methodik, die Resultate der Messungen 1989-1993 und das im Rahmen des Projektes vollständig erneuerte Messsystem, wurden erstellt und der Zeitschrift "Geophysics" zur Publikation eingereicht.

### **3.6.3. Notfalleinsätze**

Als mögliche Einsatzfälle kommen Transport- und Industrieunfälle mit radioaktivem Material, KKW-Störfälle und Satellitenabstürze in Betracht. Die Notfallmessungen erfolgen unter der Regie der Nationalen Alarmzentrale (NAZ). Unterhalt und die Bereitstellung des Messsystems werden weiterhin vom Institut für Geophysik der ETHZ durchgeführt.

Der Einsatz des Super Puma bei Notfällen bietet, gegenüber den bisher verwendeten Alouette-III- und Ecureuil-Helikoptern wesentliche Vorteile, hauptsächlich in Bezug auf Navigation, Schlechtwetter- und Nachtflugtauglichkeit. Der Einbau erfolgte in enger Zusammenarbeit mit dem EMD und dem Flugzeugwerk Emmen. Am Helikopter mussten Anpassungen wie Einbau der Antenne für das Satellitennavigationssystem GPS, Abgriff von Radaraltimeter und Barometer durchgeführt werden. Für das Messgerät wurde ein Einbau-Kit konstruiert, das den sicheren Einbau von Detektor und Geräte-Rack erlaubt. Mit einem aufwendigen Prüfverfahren wurde die Flugtauglichkeit des Umbaus abgeklärt (elektromagnetische Verträglichkeit, mechanische Festigkeit usw). Ein Helikopter konnte 1994 ausgerüstet werden, weitere folgen in den nächsten Jahren.

### **3.6.4. Flugaufnahmen 1994**

Nach der Abnahme des Einbaus im Mai 1994, fand vom 22. bis zum 26. August eine Einsatzübung statt. Die Flüge des Jahres 1994 dienten hauptsächlich der Ausbildung, dem Test der Einbauvorrichtung und der Kalibration des Messsystems.

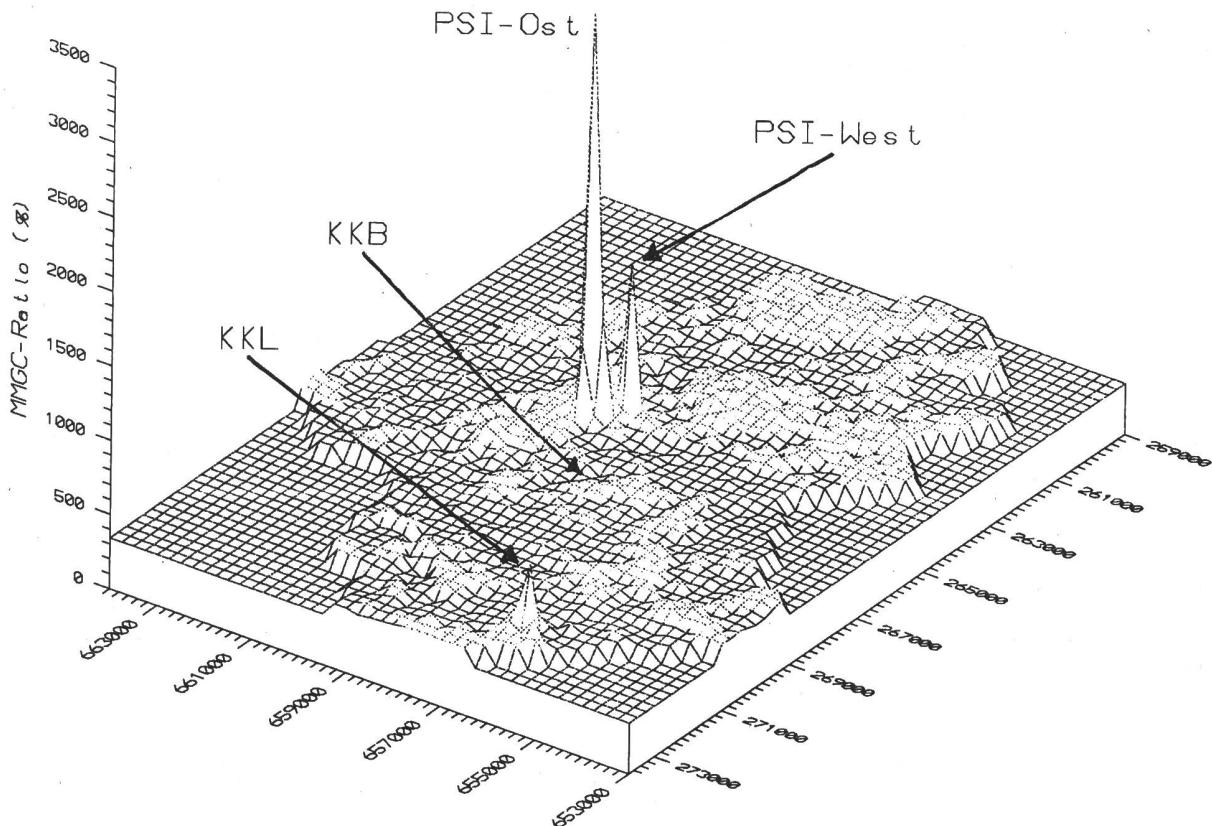
Insgesamt wurden vier Messgebiete beflogen. Die beiden Messgebiete KKL und KKB/PSI wurden bereits im Auftrag der HSK mehrmals vermessen. Auch 1994 wurden für die Messungen dieselben Flugparametern verwendet. Zusätzlich wurden zwei Testgebiete im Zürcher-Oberland definiert und beflogen. Diese Testgebiete wurden im Auftrag der NAZ auch in situ-gammaspektrometrisch vermessen und können für die dynamische Kalibration herangezogen werden. Während der Übung wurde ein Informationsvideo erstellt.

In Figur 1 ist der "MMGC-Ratio" der Messgebiete KKL und KKB/PSI dargestellt. Der "MMGC-Ratio": das Verhältnis von tiefenergetischer zu hochenergetischer Gammastrahlung, reagiert sehr empfindlich auf künstliche Radioaktivität, weil künstliche Radioisotope fast ausschliesslich nur im niedrigenergetischen Bereich (kleiner als 1400 keV) des Spektrums strahlen.

Sowohl das KKL als auch das PSI konnten mit den diesjährigen Messungen anhand ihrer Direktstrahlung nachgewiesen werden. Beim Paul Scherrer Institut wird die Direktstrahlung

der Lagerstätten für radioaktive Komponenten (PSI-West) resp. Abfälle (PSI-Ost) erfasst. Das KKB weist eine sehr geringe Gesamtstrahlung auf. Es war auch in früheren Jahren nur im MMGC-Ratio schwach erkennbar. Bei den diesjährigen Messungen konnte das KKB aeroradiometrisch nicht nachgewiesen werden.

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 sechs Jahre etwa konstant geblieben.



**Figur 1 : 3D-Darstellung des MMGC-Ratios (%) Messgebiete KKL und KKB/PSI**

Die Karte stellt den Blick nach Südosten dar. Drei Maxima sind ersichtlich: PSI-Ost (links), PSI-West (rechts) und KKL (vorne). Dargestellt ist die Direktstrahlung nach oben.

In einem weiteren Messgebiet wurde im Zürcher Oberland die Quellensuche geübt. Insgesamt wurden vier Quellen ausgelegt: Eine starke Cs-137 Quelle mit 2.24 GBq, eine schwache Cs-137 Quelle mit 249 MBq, eine Co-60 Quelle mit 212 MBq und eine K-40 Quelle (Lastwagen mit Kalidünger). Zusätzlich wurde noch ein kleineres Gebiet zwischen Hallwyler- und Greifensee vermessen.

Mit Ausnahme der K-40 Quelle konnten alle ausgelegten Quellen detektiert werden. Sogar die schwache Cs-137 Quelle im offenen Abschirmbehälter konnte trotz der starken seitlichen Kollimierung erkannt werden.

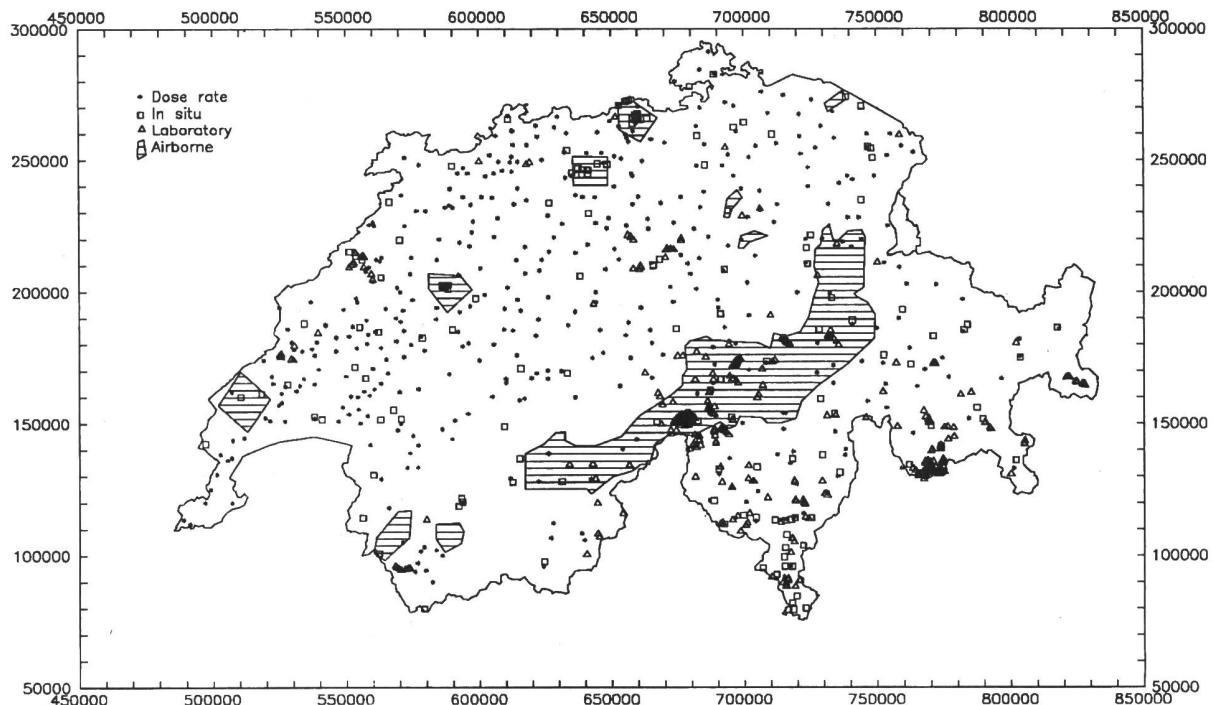
Bedingt durch den Wechsel des Helikoptertypes (von Ecureuil zu Super-Puma), musste das System neu kalibriert werden. Dabei waren vor allem die Hintergrundstrahlung und das Absorptionsverhalten des Helikopters von Interesse. Die Hintergrundstrahlung des Helikopters wurde mit einem Flug über dem Neuenburgersee, das Absorptionsverhalten wurde mit Flügen über starken Punktquellen bestimmt. Eine ausführliche Beschreibung des Kalibrationsverfahrens findet man in Schwarz et al. (1994a).

### 3.6.5. Radiometrische Karte der Schweiz

Der grösste Beitrag zum Strahlungsfeld ist natürlichen Ursprungs. Er wird durch die kosmische Strahlung, die natürliche Radioaktivität des Erdbodens sowie durch die radioaktiven Folgeprodukte des Edelgases Radon in der Luft verursacht. Die genaue Kenntnis der Variationsbreite und der regionalen Verteilung der terrestrischen und kosmischen Gammastrahlung ist auch aus strahlenbiologischer Sicht von Bedeutung, namentlich bei der Diskussion um die Wirkung kleiner Strahlendosen.

Erste flächenhafte Messungen der terrestrischen Strahlung, (mittels Ionisationskammern am Boden), wurden in der Schweiz bereits 1961 durchgeführt. Die damalige Messpunktdichte genügt jedoch modernen Anforderungen nicht mehr. Auch jetzt steht für die Schweiz kein einheitlicher flächendeckender Datensatz mit genügender Messpunktdichte zur Verfügung. Deshalb wurden zur Erstellung der radiometrischen Karte vier verschiedene Datensätze vereinigt. Die Verteilung der verwendeten Messungen ist auf Figur 2 dargestellt.

- **Aeroradiometrische Messungen:** Im Rahmen der geophysikalischen Landesaufnahme wurde vor allem in den Zentralalpen ein Gebiet von über  $2'800 \text{ km}^2$  aeroradiometrisch vermessen. Zusammen mit den Messungen in der Umgebung der Kernanlagen und verschiedenen kleineren Messgebieten in der Westschweiz wurden insgesamt  $3'500 \text{ km}^2$  der Schweiz erfasst.
- **In situ-gammaspektrometrische Messungen:** Von der SUeR wurden über 200 in situ-gammaspektrometrische Bodenmessungen mit portablen Germaniumdetektoren durchgeführt.



**Figur 2 : Räumliche Verteilung der verwendeten Datensätze. Die schraffierten Gebiete wurden aeroradiometrisch erfasst (Schweizer Landeskoordinaten in [m])**

- **Dosisleistungsmessungen:** Parallel zu den in situ-Messungen wurde immer auch eine Dosisleistungsmessung mit einer Reuter-Stokes-Ionisationskammer durchgeführt. Daneben stehen noch 400 Dosisleistungsmessungen mit Geiger-Müllerzählern aus der NARACH-Übung zur Verfügung.
- **Labormessungen an Gesteinsproben:** In den letzten 30 Jahren wurden mehr als 600 Gesteins- und Bodenproben am Institut für Geophysik der ETHZ gammaspektrometrisch vermessen und in einer Datenbank zusammengestellt.

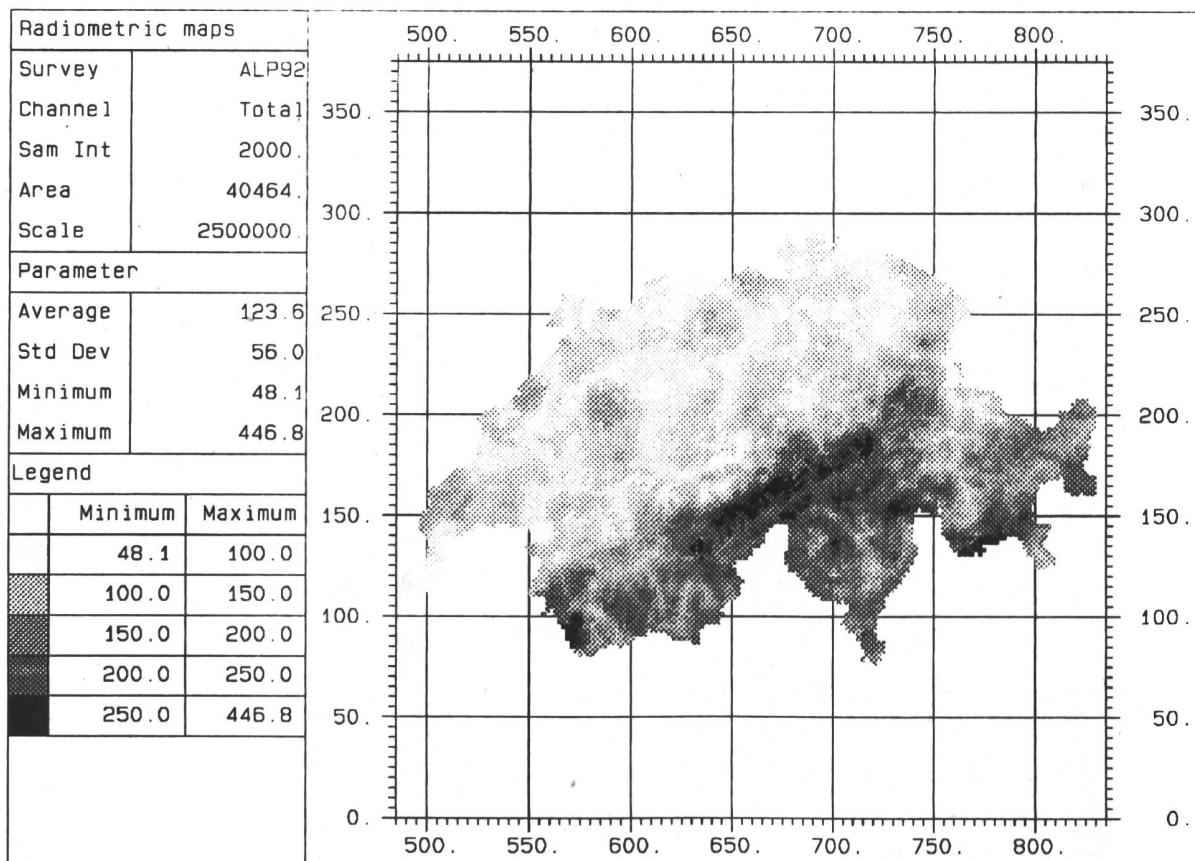
Bei der Kombination von Datensätzen, die mit verschiedenen Messmethoden erhoben wurden, kommt der Kalibration eine wichtige Rolle zu. Dabei ist zu beachten, dass die verschiedenen Methoden eine unterschiedliche räumliche Auflösung besitzen. Eine aeroradiometrische Messung erfasst die Strahlung der obersten 50 cm Boden einer Fläche von 300 m x 300 m. Eine in situ-gammaspektrometrische Messung erfasst ein viel kleineres Gebiet von 10 m x 10 m. Das kleinste Volumen wird bei einer Labormessung abgedeckt, rund 500 g pro Probe.

Die in situ-gammaspektrometrischen Messungen wurden anhand von fünf bis zehn Bodenproben kalibriert. Die anschliessende Kalibration der aeroradiometrischen Messungen erfolgte mit Hilfe von Bodenproben und der in situ-Messungen. Wegen des grösseren Einflussbereichs aeroradiometrischer Messungen werden in diesem Fall rund 50 Bodenproben bzw. 10 in situ-Messungen benötigt.

Für die Kartenerstellung wurde in drei Schritten vorgegangen:

- **Bestimmung der kosmische Strahlung:** Die Karte der kosmischen Strahlung wurde anhand des digitalen Höhenmodells RIMINI mit Hilfe der Formel  $D_{cosmic}[\text{nSv/h}] = 37 \cdot \exp(0.38 \cdot \text{Höhe}[\text{km}])$  erstellt.
- **Bestimmung der terrestrischen Strahlung:** Die Karten der Konzentration der natürlichen Radioisotopen K-40, Bi-214 und Tl-208 sowie der künstlichen Cs-137 Konzentration in [Bq/kg], wurde anhand der Aeroradiometrie, in situ-Gammaspektrometrie und den Labormessungen an Bodenproben erstellt. Mit Hilfe dieser Radioisotopkonzentrationen wurde die terrestrische Dosisleistung abgeleitet.
- **-Kombination mit den gemessenen Dosisleistungswerten:** Die Summe aus kosmischer und terrestrischer Dosisleistung wurde mit den tatsächlich gemessenen Dosisleistungswerten kombiniert und daraus die Karte der Gesamtdosisleistung am Boden berechnet.

Für die Interpolation der Karten wurde die "inverse distance"-Methode mit einem Suchradius von 10 km und einer Zellengröße von 2 km x 2 km verwendet. In Figur 3 ist die resultierende Karte abgebildet. Die Werte bewegen sich im Bereich zwischen 50 und 450 nSv/h, wobei Werte zwischen 70 nSv/h und 110 nSv/h dominieren. Die höchsten Werte wurden in den Alpen gefunden. Die Gründe hierfür sind die Geologie (die kristallinen Gesteine der Zentral Alpen weisen relativ hohe natürlichen Radioisotopkonzentrationen auf) und erhöhte kosmische Strahlung in hohen Lagen.



Figur 3: Karte der Dosisleistung am Boden in nSv/h (Schweizer Landeskoordinaten in [km]).

### **3.6.6. Perspektiven**

Ab 1995 wird die Aeroradiometrie schwerpunktsmässig im Rahmen der Notfallorganisation eingesetzt. Während der jährlichen Übungen ist eine Befliegung der Umgebung der einzelnen schweizerischen Kernanlagen nur alle zwei Jahre vorgesehen. Für 1995 ist eine grenzüberschreitende Übung mit dem französischen Aeroradiometrie-Team HELINUC der CEA geplant. Außerdem wird im Auftrag der NAZ ein zweites Messsystem am Institut für Geophysik der ETHZ gebaut.

### **3.6.7. Publikationen 1994**

Schwarz, G.F., Rybach L., Klingelé, E.E., 1994a: Data Processing and Mapping in Airborne Radiometric Surveys; ITC Journal 1994-1, p.34-39, ITC, Enschede, Netherlands.

Schwarz, G.F., Rybach L., Klingelé, E.E., 1994b: Data Processing and Mapping in Airborne Radiometric Surveys; Sciences de la Terre, 32, 577-588.

Rybäch, L., Schwarz, G.F., 1995: Ground Gamma Radiation Maps: Processing of Airborne, Laboratory and In Situ Spectrometry Data, FIRST BREAK, 13/3, 1-8

Schwarz, G.F., Rybach L., 1995: Airborne Radioactivity Surveys for Routine and Emergency Applications; Proceedings of the Second International Symposium on Spectral Sensing Research, July 10-15 1994, San Diego, USA, p.123-132.

Schwarz, G.F., Rybach L., Bärlocher Chr.K., Klingelé, E.E., 1995: Development and Calibration of an Airborne Radiometric Measurement System; eingereicht bei Geophysics.

Schwarz, G.F., Rybach L., Klingelé, E.E., 1995: Data Processing and Mapping in Airborne Radioactivity Surveys; eingereicht bei Geophysics.

## 3.7. RADIOAKTIVITÄT IN AQUATISCHEN SYSTEMEN

**J. Beer, A. Lück und Y. Weidmann**

Abteilung Umweltphysik, EAWAG, Dübendorf

### 3.7.1. Zusammenfassung

*In aquatischen Systemen wurden nur in einigen wenigen Proben künstliche Radionuklide nachgewiesen. In Flussedimenten (Aare und Rhein) wurden Spuren (einige Bq/kg) von  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$  festgestellt, die grösstenteils aus Kernanlagen stammen. In einigen Wasserpflanzen wurde  $^{60}\text{Co}$  (bis zu 85 Bq/kg) gefunden. Künstliche Radionuklide konnten in 2 Fischen nachgewiesen werden:  $^{65}\text{Zn}$  ( $1.2 \pm 1.0$  Bq/kg) in einem Felchen aus dem Bielersee vor Ligerz und  $^{137}\text{Cs}$  ( $1.2 \pm 0.7$  Bq/kg) in einer Barbe aus dem Rhein 14 km unterhalb des Kernkraftwerks Leibstadt.*

*Die grössten an die Umwelt abgegebenen Aktivitäten stammen weiterhin aus der Tritium-verarbeitenden Industrie. Die mittlere Tritiumaktivität im Abwasser der ARA von La Chaux-de-Fonds ist gegenüber dem Vorjahr leicht gesunken und liegt mit 3.2 kBq/l unterhalb dem Immissionsgrenzwert für öffentlich zugängliche Gewässer von 12 kBq/l. Nach dem starken Anstieg der Tritium-Konzentration im Niederschlag von La Chaux-de-Fonds gegen Ende 1992 zeichnet sich eine langsam sinkende Tendenz ab. Trotzdem liegen die Werte weiterhin deutlich über denjenigen der Jahre 1990-92. Auffällig ist die starke Saisonalität mit Maxima im Winter und Minima im Sommer. Die Tritiumaktivität auf dem Areal der RC-TRITEC (früher Radiumchemie) in Teufen zeigt ebenfalls einen Jahresgang mit Maxima kurz nach Jahresbeginn. Die Gesamt- $\alpha$ -Aktivität im Rheinwasser zeigt Spitzenwerte bis 0.15 Bq/l, die mit erhöhten Schwebstoffgehalt des Rheinwassers zusammenhängen dürften.*

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

### 3.7.2. 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, Änderungen 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 RC TRITEC AG (*früher 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 (Diepoldsau/SG) monatliche Sammelproben erhoben, die im Rahmen der Rheinkommission zusätzlich auf verschiedene Schadstoffe untersucht werden.

Im Rahmen eines gemeinsamen Projektes mit der HSK wird das Verhalten von Radionukliden, die von Kernkraftwerken an Flüsse abgegeben werden, genauer untersucht. Insbesondere interessiert, wie schnell diese Radionuklide sedimentieren und welche Prozesse dabei eine Rolle spielen. Die Resultate werden zur Zeit ausgewertet und publiziert.

### **3.7.3. 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 a-Strahlen untersucht. <sup>90</sup>Sr wird nur im Abwasser von Abfalldeponien gemessen. Alle Angaben von spezifischen Aktivitäten beziehen sich auf Trockengewichte.

### **3.7.4. Zusammenfassung der Ergebnisse**

#### **3.7.4.1. Kernanlagen**

Wasserproben aus den Flüssen Aare und Rhein sowie Grundwasserproben im Bereich von Kernanlagen zeigen keine Tritiumkonzentrationen, die über der Nachweisgrenze von 10 Bq/l liegen. Die Konzentrationen der künstlichen g-aktiven Radionuklide im Wasser lagen alle an oder unter der Nachweisgrenze.

In den Sedimentproben aus der Umgebung von Kernanlagen wurden jedoch weiterhin künstliche Radionuklide gemessen: <sup>137</sup>Cs, <sup>134</sup>Cs, <sup>54</sup>Mn, <sup>60</sup>Co, <sup>65</sup>Zn. Die Konzentrationen sind jedoch im allgemeinen tief im Bereich von einigen Bq/kg. Die höchsten Werte wurden im Sediment des Stausee's Niederried unterhalb KKW Mühleberg gefunden ( $68 \pm 3$  Bq/kg <sup>60</sup>Co).

Wasserpflanzen zeigen vereinzelt Konzentration, die mit denjenigen der Sedimente vergleichbar sind. Bis zu 85 Bq/kg  $^{60}\text{Co}$  wurden beobachtet.

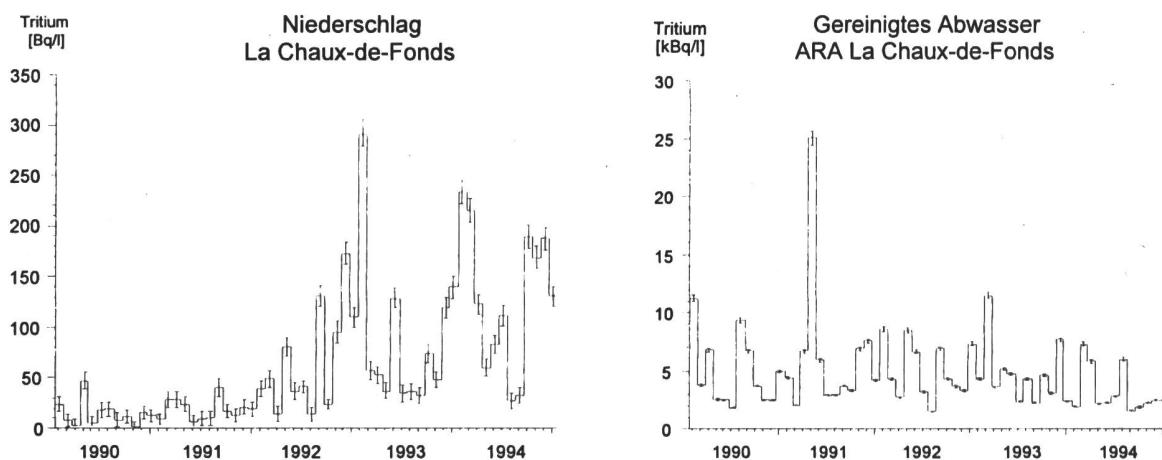
Von den insgesamt elf untersuchten Fischen aus Aare und Rhein zeigten nur zwei Spuren von künstlichen Radionukliden. Eine Barbe aus dem Rhein 14 km unterhalb des Kernkraftwerks Leibstadt enthielt  $1.2 \pm 0.7$  Bq/kg Frischgewicht  $^{137}\text{Cs}$ , ein Felchen aus dem Bielersee vor Ligerz  $1.2 \pm 1.0$  Bq/kg Frischgewicht  $^{65}\text{Zn}$ .

### 3.7.4.2. 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. Nach dem auffälligen Anstieg im Jahr 1992 zeigt die Tritium-Aktivität im Niederschlag ein deutliches saisonales Signal mit Maxima im Winter und Minima im Sommer.

**Figure 1: Tritium-Messungen im Niederschlag und in der ARA La Chaux-de-Fonds**

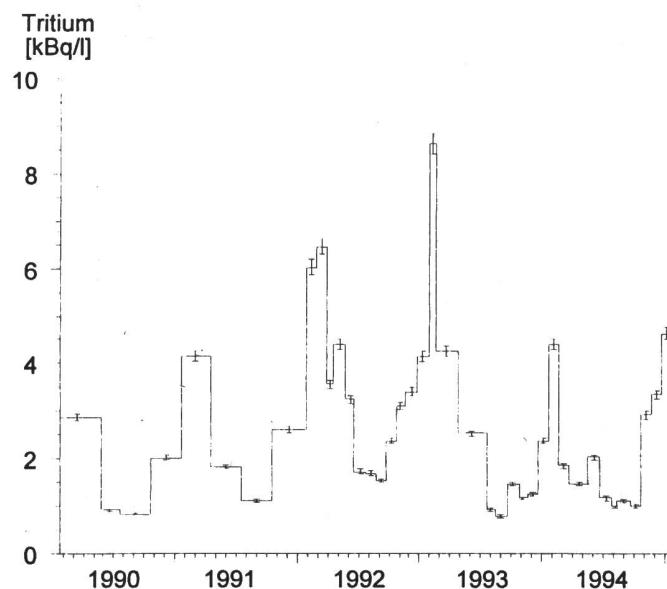


Der wesentliche Teil der Abgabe erfolgt weiterhin über die Abwässer der ARA. Dort setzt sich der abnehmende Trend fort. Im Jahr 1994 hat die Kläranlage 25 TBq Tritium abgegeben, was einer Abnahme von 6 TBq gegenüber 1993 entspricht. Insgesamt wurden laut SUVA 250 TBq Tritium in La Chaux-de-Fonds verarbeitet.

### RC-TRITEC AG (*früher Radiumchemie*) Teufen/AG

Die Tritiummessungen im Regenwasser, das 65 m östlich des Kamins der Radiumchemie in Teufen gesammelt wird, sind in Figur 2 dargestellt. Auch hier ist ein deutlicher Jahresgang mit Spitzen kurz nach Jahresbeginn festzustellen.

**Figure 2: Tritium im Niederschlag bei Radiumchemie Teufen /AR  
65 m östlich des Kamins**



#### 3.7.4.3. Deponien

Die ehemalige Abfalldeponie Teufen sowie die Deponie von Stein/AR zeigen in ihrem Sickerwasser  $\alpha$ -Strahler ( $<1.0$  Bq/l), Tritium (bis zu 7 kBq/l) sowie  $^{90}\text{Sr}$  (1 Bq/l).  $\gamma$ -aktive Radionuklide konnten keine festgestellt werden.

#### 3.7.4.4. Kläranlagen

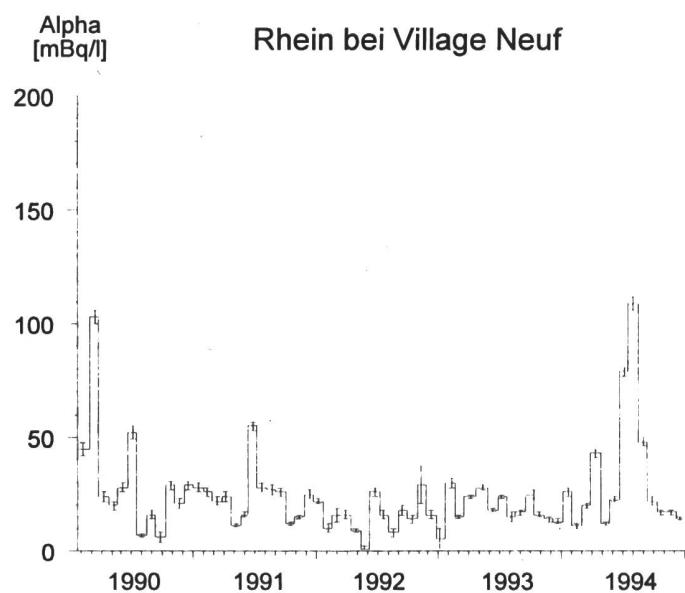
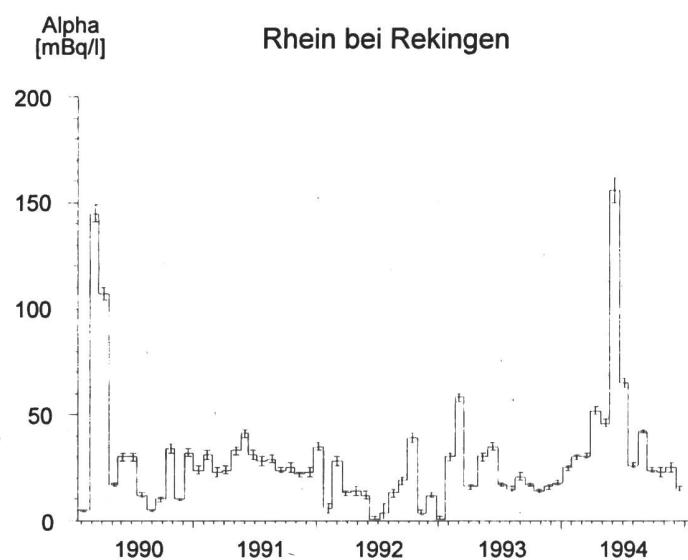
Messungen am gereinigten Abwasser der ARA Zürich zeigen keine Tritiumwerte oberhalb der Nachweisgrenze von 10 Bq/l.

Nur in zwei Proben konnten Spuren von  $^{137}\text{Cs}$  nachgewiesen werden. Die Konzentrationen aller übrigen  $\gamma$ -aktiven Radionuklide lagen durchwegs unter der Nachweisgrenze. Dies gilt insbesondere auch für das in Spitäler verwendete  $^{131}\text{I}$  (Nachweisgrenze: 0.2 Bq/l).

### 3.7.4.5. Oberflächengewässer

Im Rhein wurden an den Stationen Rekingen, Village Neuf und Diepoldsau abflussgewichtete Monatsproben erhoben. Der Verlauf der Gesamt- $\alpha$ -Aktivität von Rekingen und Village Neuf ist in Figur 3 dargestellt. Beide Stationen zeigen ausgesprochene Spitzenwerte im Sommer, die deutlich über 100 mBq/l liegen. Diese sind vermutlich auf erhöhte Schwebstoffgehalte nach Gewittern zurück zu führen. Künstliche  $\gamma$ -aktiven Radionuklide konnten keine festgestellt werden.

**Figure 3:** Alpha-Aktivität im Rhein



## 3.8. NATÜRLICHE RADIONUKLIDE IM WASSER

**H. Surbeck** Sektion Überwachung der Radioaktivität  
Bundesamt für Gesundheitswesen  
Ch. du Musée 3, 1700 FRIBOURG

### 3.8.1. Zusammenfassung

*Eine systematische Erfassung der natürlichen Radionuklide im Wasser ist aus folgenden Gründen von Interesse:*

- 1) *In der neuen Strahlenschutzverordnung (StSV) werden Grenzwerte für Alpha-Strahler aus der Uran- und Thoriumreihe im Trinkwasser festgelegt. Der Vollzug der StSV im Bereich der Lebensmittel liegt zwar bei den Kantonen, aber die Kantonalen Laboratorien brauchen dazu die Unterstützung des BAG. Dessen Aufgaben ist es, die bestehenden, sehr aufwendigen Analysenmethoden zu vereinfachen bzw. zu zeigen, wo Probleme mit Trinkwässern auftreten könnten und welche Radionuklide wirklich gemessen werden müssen.*
- 2) *Bei der Suche nach Radon-Risikogebieten kann die Radonkonzentration in Grund- und Quellwasser einen Hinweis auf solche Gebiete liefern.*

### 3.8.2. Alphastrahler aus der Uran- und Thoriumreihe im Trinkwasser

Uran und Thorium sind **natürlicherweise** in allen Gesteinen und Böden und damit auch im Grundwasser vorhanden. Dass die Radionuklide der Uran- und Thorium-Zerfallreihen natürlicher Herkunft sind, macht sie **nicht harmloser als die künstlichen Radionuklide**.

Die Figuren 1 und 2 zeigen die  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Reihen. Aufgrund der Halbwertszeiten können die Reihen etwas willkürlich in Gruppen (umrahmt) mit jeweils einem Hauptnuklid (fett gedruckt) eingeteilt werden. Das Hauptnuklid besitzt eine genügend lange Halbwertszeit um die Zeit zwischen der Entnahme aus dem Untergrund oder an der Quelle und der Konsumation zu überleben. Die kurzlebigen Nuklide bilden sich während der Lagerung aus den Hauptnukliden nach.

Die Löslichkeit des Thoriums im Wasser ist sehr schlecht. Langlebige **Th-Nuklide sind daher im Wasser nur selten nachweisbar** und können im allgemeinen vernachlässigt werden. In einigen Mineralwässern wurden aber erhöhte  $^{228}\text{Th}$  Aktivitäten gefunden. Deshalb, und wegen seiner hohen Radiotoxizität sollte  $^{228}\text{Th}$  vorsichtshalber mitberücksichtigt werden. Dagegen klar **zu vernachlässigen sind die Nuklide der  $^{235}\text{U}$ -Reihe**, da das  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Aktivitätsverhältnis für Proben natürlicher Herkunft nur 0.046 beträgt.

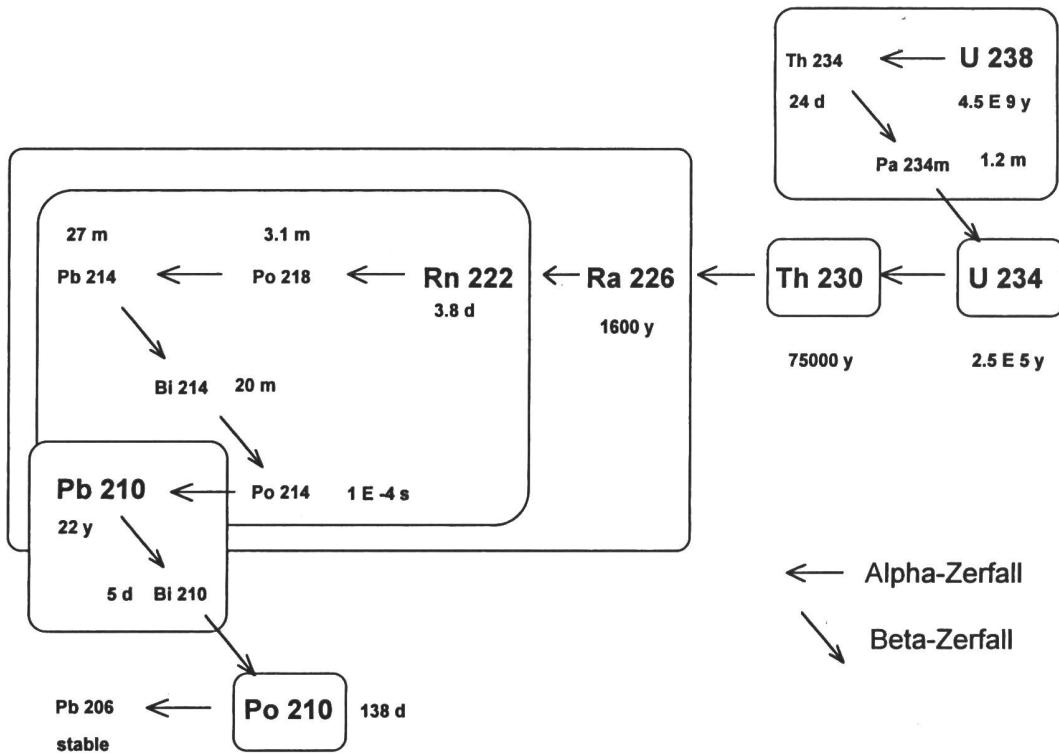


Fig. 1:  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe

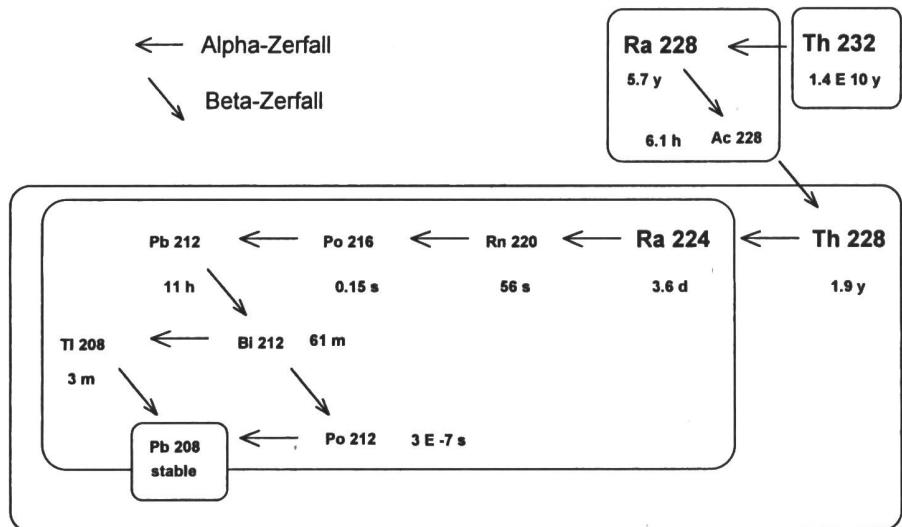


Fig. 2:  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe

Da sich die StSV nur auf **Alphastrahler aus diesen Zerfallsreihen** bezieht und das  $^{222}\text{Rn}$  ausdrücklich ausgenommen ist, bleiben als zu bestimmende Radionuklide noch:

$^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{228}\text{Th}$  und  $^{224}\text{Ra}$ .

Nach der StSV darf die **Summe der Alphastrahler aus den Uran- und Thorium-Reihen** (ohne Radon) 1 Bq/Liter nicht überschreiten. Eine Nachweisgrenze von 100 mBq/Liter für jedes der aufgeführten Nuklide scheint daher sinnvoll. Sie garantiert noch eine gewisse Sicherheitsmarge.

Um diese Nachweisgrenzen zu erreichen, setzen wir **drei verschiedene Methoden** ein, die von uns zum Teil neu entwickelt, verbessert, oder erheblich vereinfacht wurden.

### 3.8.3. Gammaspektrometrie

$^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Th}$  und  $^{224}\text{Ra}$  können über die **Tochternuklide** durch Gammaspektrometrie bestimmt werden. Mit einem low-level Ge-Detektor ist es möglich, mit eingedampften 1 Liter-Proben diese Nachweisgrenze zu erreichen. Unbefriedigend ist dabei einzig, dass der **Aufbau der gamma-strahlenden Tochternuklide abgewartet** werden muss. Aus einer Messung direkt nach dem Eindampfen und einer zweiten Messung nach einigen Tagen können das  $^{224}\text{Ra}$  und das  $^{228}\text{Ra}$  bestimmt werden. Die zweite Messung liefert auch eine grobe Abschätzung für  $^{238}\text{U}$ ,  $^{228}\text{Th}$  und  $^{226}\text{Ra}$ . Nach einer **Wartezeit von 20 Tagen** lässt sich  $^{228}\text{Th}$  zuverlässig bestimmen. Gut 2 Monate muss gewartet werden, bis das  $^{234}\text{Th}$  aus dem  $^{238}\text{U}$  genügend aufgebaut ist. Für eine gammaspektrometrische Bestimmung des  $^{226}\text{Ra}$  muss die Probe entweder **radon-dicht verschlossen und 20 Tage gelagert** werden, oder der  $^{235}\text{U}$ -Beitrag zur einzigen bedeutenden  $^{226}\text{Ra}$ -Gamma-Linie muss bekannt sein. Dieser Beitrag kann aus dem  $^{238}\text{U}$  berechnet werden. Ein zuverlässiger Wert für das  $^{238}\text{U}$  ist aber **erst nach 2 Monaten Lagerzeit** zu erhalten.

$^{234}\text{U}$  lässt sich **gammaspektrometrisch nicht bestimmen**. Da in Wasserproben  $^{238}\text{U}$  und  $^{234}\text{U}$  **selten im Gleichgewicht** sind, kann die  $^{234}\text{U}$ -Aktivität nicht einfach gleich der  $^{238}\text{U}$ -Aktivität gesetzt werden. Aufgrund früherer Messungen am PSI (vgl. BAG-Bericht zur Umweltradioaktivität 1991, Seiten 3.5.10.ff) führt die Annahme eines  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -**Verhältnis von 3** zumindest bei hohen Aktivitäten zu einer **konservativen Abschätzung** der Gesamt-Uranaktivität.

### 3.8.4. Radium adsorbierende Schichten

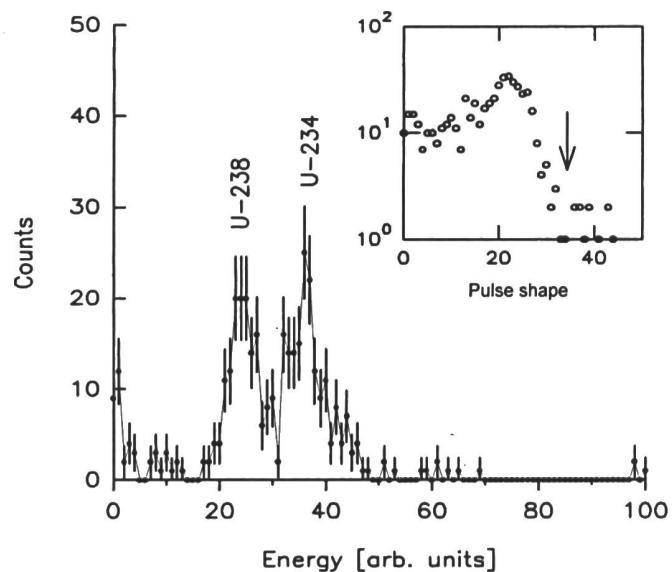
Vor allem die Probleme mit einer **raschen Bestimmung des  $^{226}\text{Ra}$** , einem der vom Strahlenschutz her wichtigen Nuklid, haben uns nach neuen Methoden suchen lassen. Die von uns entwickelten Radium adsorbierenden Schichten haben das Problem gelöst. Die Methode wurde bereits im Jahresbericht 1993 beschrieben. Sie erlaubt die **Bestimmung von  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Po}$  und  $^{224}\text{Ra}$**  mit sehr wenig Aufwand für die Präparation. Die Messung erfolgt mit einem Halbleiter-Alpha-Detektor. Die Nachweisgrenze für die drei Nuklide liegt bei einer Messzeit von einem Tag bei **20 mBq/Liter**. Neu seit dem 1993er-Bericht ist, dass **die adsorbierenden Schichten auch an Metalloberflächen** gebildet werden können.

Erste Versuche am Fraunhofer-Institut für Mikroelektronik in Dresden zeigen, dass **modifizierte Versionen unserer Schichten auch Uran adsorbieren**. Sollten sich diese Schichten als so zuverlässig erweisen wie die Radium-adsorbierenden Schichten, wäre das Problem einer raschen  $^{238}\text{U}$ - und auch der  $^{234}\text{U}$ -Bestimmung gelöst.

### 3.8.5. Flüssig-Szintillation-Messung

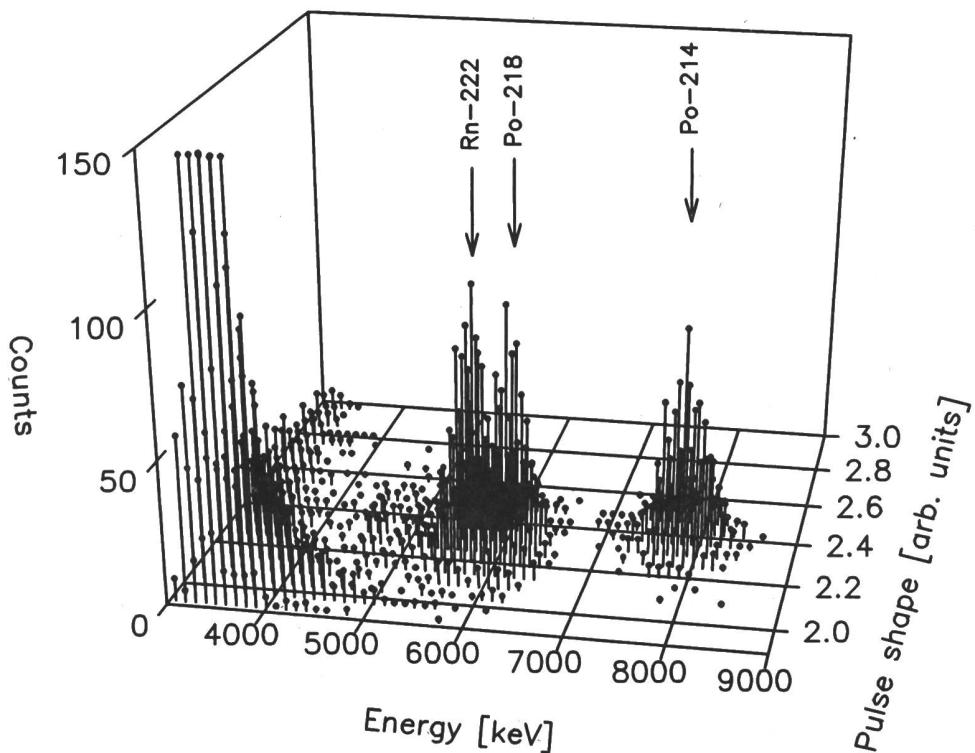
Bis zuverlässige Uran-adsorbierende Schichten vorliegen, bleibt für die **rasche  $^{238}\text{U}$ - und die  $^{234}\text{U}$ -Bestimmung** noch der Nachweis mit Flüssigszintillation. **Selektiv extrahierende Szintillatoren** erleichtern die Probenpräparation und Spektrometer mit einer **Alpha/Beta-Diskriminierung**, die in den letzten Jahren von mehreren Firmen entwickelt wurden, liefern Alphaspektren mit einer für die Trennung von  $^{238}\text{U}$  und  $^{234}\text{U}$  genügenden Energieauflösung.

Die von uns stark vereinfachten Methode reduziert den Zeitaufwand für die Probenpräparation auf 30 min. Mit einer Messzeit von 2 Tagen lassen sich  $^{238}\text{U}$  und  $^{234}\text{U}$  mit der gewünschten Nachweisgrenze von **100 mBq/Liter** bestimmen. Ein typisches Alpha-Spektrum einer Wasserprobe zeigt Fig. 3.



**Fig. 3 :** Alpha-Spektrum (mit Flüssig-Szintillator) einer stark mineralisierten Wasserprobe aus dem Wallis. In der eingefügten Figur ist die Diskriminatorschwelle für dieses Spektrum mit einem Pfeil markiert. Die Probe enthält je etwa 300 mBq/Liter  $^{234}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$ . Messzeit 2 Tage.

Die Alpha/Beta Diskriminierung beruht darauf, dass Lichtblitze, die im Szintillator von Alpha-Teilchen erzeugt werden, etwas länger dauern, als diejenigen, die durch Beta-Teilchen ausgelöst werden. In den Figuren 3 und 4 ist die Pulsbreite des Lichtblitzes als "Pulse shape" bezeichnet. Um jeden Lichtblitz auswerten zu können, ist es von Vorteil, **Pulshöhe (Energie) und Pulsbreite simultan zu speichern** (Fig. 4).



**Fig. 4:** Alpha-Spektrum einer  $^{222}\text{Rn}$  haltigen Wasserprobe (mit Flüssig-Szintillator). Für jeden Lichtpuls wurden Pulshöhe (Energie) und Pulsbreite (Pulse shape) simultan registriert.

### 3.8.6. Resultate für eine erste Serie von Trinkwässern aus der Schweiz

**12 Trinkwasser-Proben** (aus Wasserversorgungen oder von öffentlichen Brunnen) aus der Schweiz, **12 stark mineralisierte Schweizer Grund- oder Quellwässer**, die z.T. als Mineralwasser im Handel sind und **5 ausländische Mineralwässer** wurden gammaspektrometrisch, mit den Ra-adsorbierenden Schichten und z.T. mit Flüssigszintillation untersucht.

Die Auswahl der Trinkwasserproben erfolgte zum Teil aufgrund der 1985 von der Abteilung Lebensmittel des BAG gemessenen Uran-Konzentrationen in Trinkwässern der Schweiz (unveröffentlicht). So wurden im Kanton Graubünden Proben in den 7 Gemeinden erhoben, in denen in der erwähnten Untersuchung Urankonzentrationen  $> 5 \mu\text{g}/\text{Liter}$  festgestellt wurden.

Folgende Wertebereiche wurden gefunden (alle Werte in mBq/Liter):

	Trinkwasser, einheimisch	Stark mineralisierte Wässer, einheimisch	Mineralwässer importiert
<b><math>^{238}\text{U}</math></b>	< 30 - 210	< 30 - 390	< 150
<b><math>^{226}\text{Ra}</math></b>	< 70	< 70	< 50 - 1300
<b><math>^{210}\text{Po}</math></b>	< 50	< 50	< 50
<b><math>^{228}\text{Th}</math></b>	< 50	< 50	< 50
<b><math>^{224}\text{Ra}</math></b>	< 50	< 50	< 50 - 200

Für die Proben mit einer  $^{238}\text{U}$  Aktivität  $> 100$  mBq/Liter, bei denen auch  $^{234}\text{U}$  bestimmt wurde, ergaben sich  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  Verhältnisse von ca. 1, in jedem Fall **kleiner 2**.

Eine **eindeutige Überschreitung der Limite** nach der neuen StSV ergab sich für ein aus Portugal **importiertes Mineralwasser**. Ein grösseres Messprogramm für importierte Mineralwässer ist daher für 1995 vorgesehen. Dabei sollen insbesondere Mineralwässer untersucht werden, die wie das erwähnte portugiesische Mineralwasser nicht von der PSI Studie erfasst wurden.

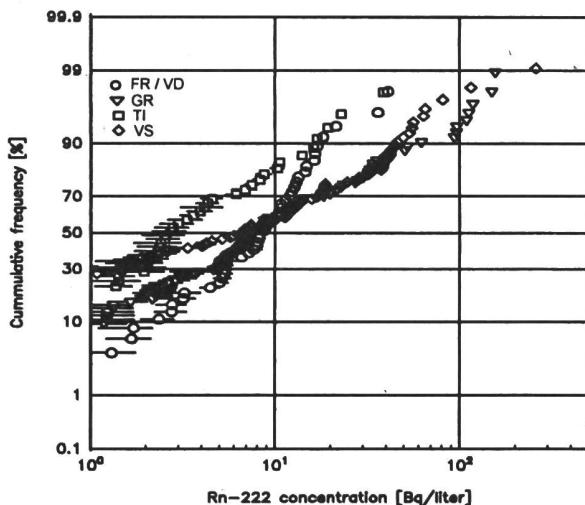
Der **Abstand zur Limite** ist aber auch **für einige einheimische Wässer nicht sehr komfortabel**. Zeitliche Schwankungen der Zusammensetzung könnten leicht zu einer Überschreitung der Limite führen. Die Untersuchung einheimischer Wässer wird daher 1995 fortgesetzt.

Zum Vergleich der Messmethode wurden auch einige der Mineralwässer analysiert, die bereits früher am PSI gemessen wurden. Innerhalb der Fehlergrenzen wurden die gleichen Werte gefunden.

### 3.8.7. Radonkonzentration in Grund- und Quellwasser

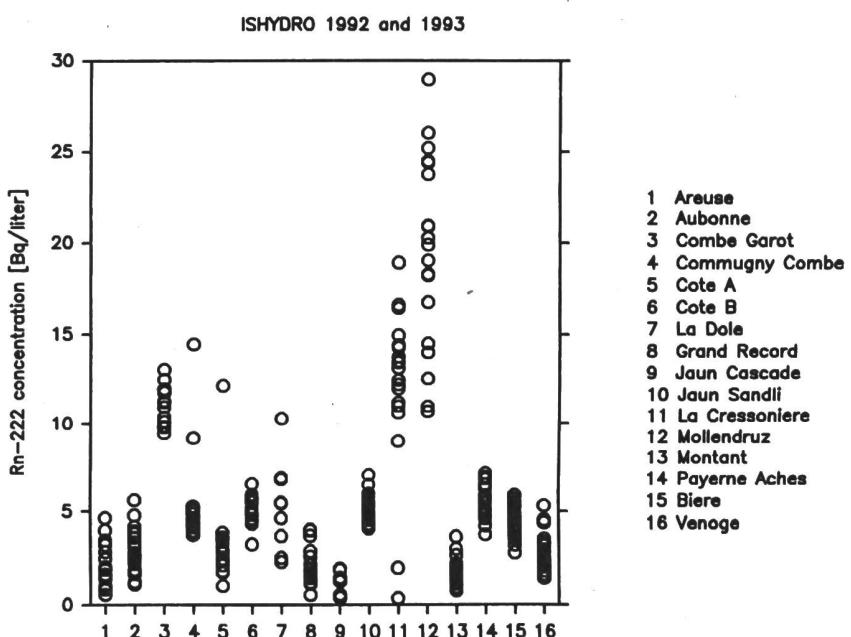
Seit einigen Jahren bestimmen wir insbesondere in Zusammenarbeit mit dem Centre d'Hydrogéologie de l'Université de Neuchâtel (CHYN)  $^{222}\text{Rn}$ -Konzentrationen in Grund- und Quellwässern. Ziel dieser Untersuchungen ist es, **Herkunft und Transport des Radons im Wasser** besser zu verstehen. Eine **erhöhte Radon-Konzentration im Grundwasser** ist ein Indikator für erhöhte Radonkonzentrationen im Boden und daher möglicherweise ein **Hinweis auf erhöhte Radonkonzentrationen in Wohnräumen** (Radongebiete im Sinne der neuen StSV). Das Interesse der **Hydrogeologie** am Radon besteht darin, dieses allgegenwärtige Edelgas als natürlichen und leicht zu messenden **Tracer** einzusetzen.

Figur 5 zeigt die von uns bisher gemessene Verteilung der Radonkonzentrationen in Grund- und Quellwässern in der Schweiz. Werte  $> 50$  Bq/Liter müssen danach für Schweizer Verhältnisse als deutlich erhöht betrachtet werden und könnten ein **Hinweis auf Radongebiete** sein. Der Zusammenhang zwischen der Radonkonzentration im Wasser und dem Risiko für erhöhte Innenluft-Radonkonzentration ist allerdings bisher noch nicht genügend bekannt, um Gebiet mit  $> 50$  Bq/Liter klar als Radongebiete auszuscheiden.



**Fig. 5:** Häufigkeitsverteilung der  $^{222}\text{Rn}$ -Konzentrationen in Grund- und Quellwässern.

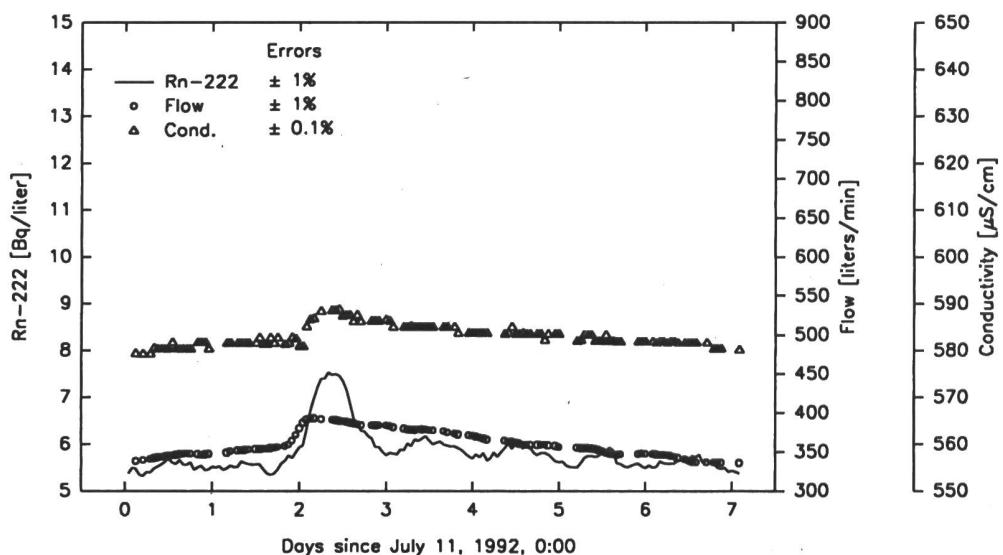
Eines der wesentlichen Resultate unserer Untersuchungen ist, dass die **Radonkonzentration in Quellwässern zeitlich nicht konstant** ist. Dies zeigt deutlich das folgende Beispiel von 16 Quellen im Gebiet zwischen den Freiburger Alpen und dem Jura. Die Quellen wurden während 2 Jahren monatlich beprobt. Die **Radonkonzentration hängt stark von den Schüttung ab**, sie nimmt im allgemeinen mit der Schüttung zu. Proben sollten daher zumindest je einmal bei Niedrigwasser und einmal bei Hochwasser genommen werden.



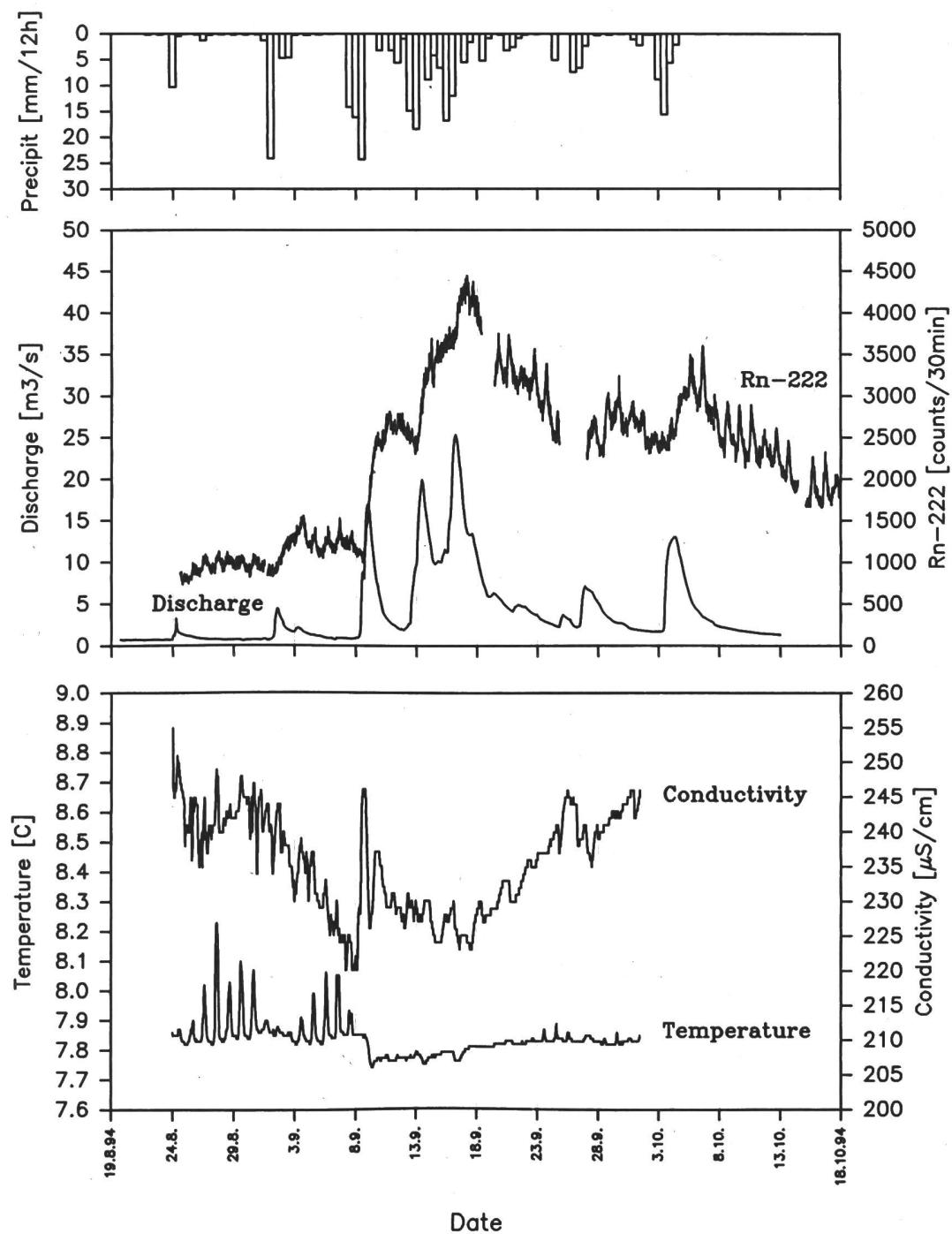
**Fig. 6:**  $^{222}\text{Rn}$ -Konzentrationen in Quellwässern, die im Rahmen des ISHYDRO-Programmes des CHYN monatlich erhoben wurden. Der 1-sigma Fehler der Radon-Konzentrationen ist bei Werten über 5 Bq/Liter  $< \pm 10\%$ . Nachweisgrenze: 0.5 Bq/Liter

Um die **Transportvorgänge** besser untersuchen zu können, haben wir an zwei Quellen **kontinuierlich messende Radon-Detektoren** installiert. Bei beiden Quellen wurden auch die Schüttung, die Leitfähigkeit und die Temperatur des Wasser mitregistriert. Bei einer Radonkonzentration von 1 Bq/Liter ist es mit der von uns entwickelten Apparatur möglich, bei einem 1-sigma Zählfehler von 5% eine **Zeitauflösung von 15 min** zu erreichen.

Figur 7 zeigt den zeitlichen Verlauf von Schüttung und Radon für die Quelle "Les Haches" bei **Grandsivaz** (Nähe Payerne), Fig. 8 den Verlauf für die **Areuse-Quelle bei St. Sulpice** im Val-de-Travers. **Radon aus dem Boden**, das durch einsickerndes Regenwasser ins Grundwasser transportiert wird, ist **wesentlich für die Radonkonzentration im Quellwasser** verantwortlich.



**Fig. 7:** Zeitlicher Verlauf von  $^{222}\text{Rn}$ , Schüttung, und Leitfähigkeit für die Quelle "Les Haches" in Grandsivaz.



**Fig. 8:** Zeitlicher Verlauf der  $^{222}\text{Rn}$ -Konzentration, der Schüttung, der Temperatur und der Leitfähigkeit für die Areuse-Quelle in St. Sulpice. 1000 counts/30 min entsprechen etwa 1 Bq/Liter  $^{222}\text{Rn}$ . 1-sigma Fehler: Radon  $< \pm 5\%$ , Leitfähigkeit, Temperatur und Schüttung ca.  $\pm 1\%$ .

Ebenfalls angegeben sind die Niederschlagsmengen in La Brévine. Das Vallée de la Brévine ist das Haupt-Einzugsgebiet für die Areuse-Quelle. Unsicherheit für die Niederschlagsmenge ca.  $\pm 0.5$  mm.

## 3.9. ANTHROPOGENE RADIONUKLIDE IM BIELERSEE; WISSENSCHAFTLICHE BETRACHTUNGEN UND KONTROLLASPEKTE

**A. Albrecht, M. Gloor, J. Beer und A. Lück**

Eidgenössische Anstalt für Wasserversorgung,  
Abwasserreinigung und Gewässerschutz (EAWAG)  
8600 Dübendorf

### 3.9.1. Zusammenfassung

*Die durch das Kernkraftwerk Mühleberg an die Aare abgegebenen Radionuklide erlauben es, das Verhalten von Co, Zn, Mn und Cs im aquatischen Milieu zu studieren. Unter Zuhilfenahme der im See transportierten Radionuklide und seephysikalischen Messungen kann die Einmischung der Aare und damit die Verteilung der Radionuklide untersucht werden.*

*Im Sommer mischt sich die Aare in der oberen Seeschicht (Epilimnion) ein und kann bereits nach 6-7 Tagen den See wieder verlassen. Während des Winters sinkt das Aarewasser auf den Seeboden ab. Aufenthaltszeiten können dann bis zu 3 Monate erreichen. Durch die Messung der Radioaktivitäten in Sedimentkernen kann (1) das Adsorptionsverhalten in der Wassersäule nachvollzogen, (2) die räumliche Verteilung in Sedimenten evaluiert und (3) die zeitliche Abgabe durch das KKW nachgezeichnet werden.*

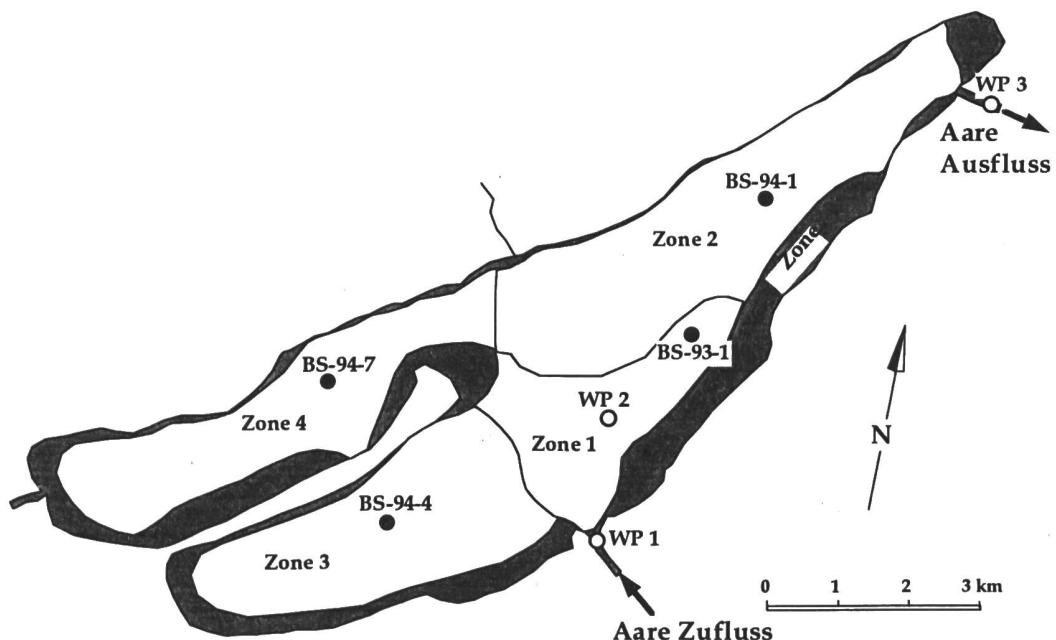
*Von der Gesamtabgabe an  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$  werden jeweils 43, 47, und 27% in Sedimenten abgelagert. Die daraus resultierenden hohen Durchflussraten können mit Hilfe eines seephysikalisch-geochemischen Modells erklärt werden. Im Sommer, wenn der Partikelfluss ein Maximum erreicht, ist die Aufenthaltszeit des Aarewassers im Bielersee kurz, von daher existiert nur wenig Zeit für Adsorptions- bzw. Sedimentationsprozesse. Während der Kaltperiode andererseits nimmt zwar die Aufenthaltszeit signifikant zu, der Partikelfluss erreicht jedoch ein Minimum, demzufolge fehlt das Transportmedium.*

*Der  $^{137}\text{Cs}$  Eintrag des Kernkraftwerkes wird sehr stark durch Tschernobylradiozesium aus dem Aareeinzugsgebiet überlagert, was die Studie des Verhaltens von Reaktor- $^{137}\text{Cs}$  erschwert.*

### 3.9.2. Einführung

Die Präsenz radioaktiver Stoffe hat in Sedimentarchiven eine besondere Bedeutung, da die  $^{137}\text{Cs}$  Maxima von 1963 (atmosphärische Atombombenversuche) und 1986 (Tschernobyl Unfall) zur Datierung von Sedimentkernen herangezogen werden können und es somit gestatten, den zeitlichen Verlauf des Eintrags anthropogener Substanzen zu bestimmen. Neben der chronologischen Betrachtung interessieren die seeinternen Prozesse, die die Stoffablagerung in Seesedimenten kontrollieren. In diesem Bericht soll die zeitliche Variation der Radionu-

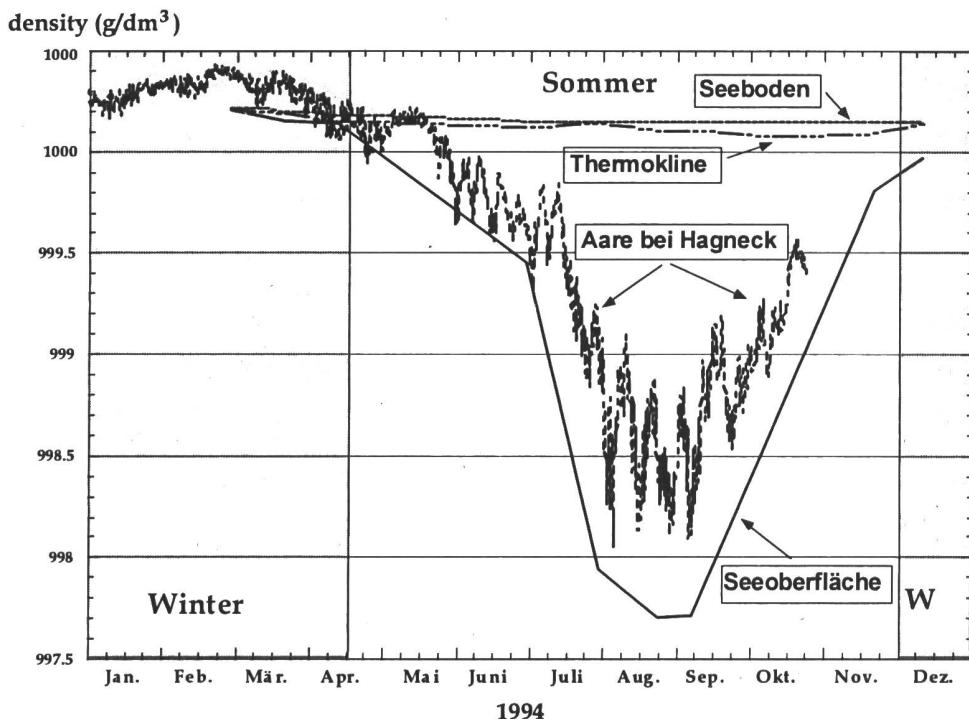
klidablagerung im Bielersee mit der Fragestellung nach den Transfermechanismen gekoppelt werden. Das Augenmerk gilt dabei den Radionukliden  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$ , welche vom Kernkraftwerk Mühleberg in gelöster Form an die Aare abgegeben werden und welche in Bielerseesedimenten nachgewiesen werden können. Dieser Radionuklidanteil verteilt sich auf 4 Zonen (Aare Input; Fig. 1). Zone 1 bildet den Einflussbereich des Aaredeltas, Zone 2, 3 und 4 jeweils das NE, SE und SW Becken (Weiss, 1977). In der Zone 0 kommt es nicht zu einer bleibenden Radionukliddeposition, da sich Sedimentation und Erosion die Waage halten. Aufgrund detaillierter Studien ist bekannt, dass mehr als 90% des vom KKM abgegebenen  $^{60}\text{Co}$  den Bielersee erreicht, wovon bis zu 80% in gelöster Form vorliegen (Albrecht et al, 1994b; Albrecht et al., 1995b). Es gibt Hinweise darauf, dass diese Situation für die übrigen Radionuklide ähnlich ist, obwohl eine Detailstudie wegen der hohen Hintergrundbelastung ( $^{137}\text{Cs}$ ) bzw. wegen geringer Konzentrationen ( $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ) nicht möglich ist. Das Auftreten von  $^{60}\text{Co}$  in Sedimenten zeigt die Bedeutung des Radionuklidtransfers von der Wassersäule in die Sedimente.



**Fig. 1:** Karte des Bielersees mit Zoneneinteilung und Angabe aller Probenlokalitäten (gefüllte Kreise = Sedimentkerne, offene Kreise = Wasserprobenahme - WP)

### 3.9.3. Radionuklidtransport im Bielersee

Da mit Ausnahme von  $^{137}\text{Cs}$  alle Radionuklide ausschliesslich durch die Aare in den See transportiert werden, ist ein Verständnis der Einmischung des Aarewassers in den See essentiell (Fig. 2). Während der Warmperiode (etwa Mitte April bis Mitte Oktober) erreicht die oberste Seeschicht (Epilimnion)  $15\text{--}25^\circ\text{C}$  und liegt über dem  $\sim 5^\circ\text{C}$  kalten und somit dichteren



**Fig. 2:** Zeitlicher Verlauf für 1994 der Dichte des Aarewassers (gestrichelte Linie) und des Wassers des Bielersees an der Oberfläche (durchgezogen), der Sprungsschicht in 15 m Tiefe (Thermokline, strichpunktiert) und am Seeboden auf 70 m Tiefe (punktiert). Die Einschichtungstiefe der Aare im Bielersee ist durch deren Dichte relativ zum See bestimmt. Diese Tiefe wiederum ist direkt mit der Aufenthaltszeit der Aare im Bielersee verbunden. Es existieren zwei verschiedene Situationen:

- (1) Im Winter ist das Aarewasser schwerer als das gesamte Bielerseewasser und schichtet sich dementsprechend am Seeboden ein.
- (2) Im Sommer ist das Aarewasser fast so leicht wie das Seewasser an der Seeoberfläche und schichtet sich somit zwischen Seeoberfläche und Sprungsschicht ein.

Hypolimnion. Da die Aaretemperatur (und damit die Dichte) im Sommer ähnlich der Temperatur des Epilimnions ist, mischt sich die Aare in der obersten Seeschicht ein und verbleibt verhältnismässig kurz im Bielerseebecken, da es zwischen der Mündung bei Hagneck und dem Ausfluss bei Biel zu einem Kurzschluss kommt (Fig.1). Die Minimalaufenthaltszeit des Aarewassers berechnet sich aufgrund des geschätzten Durchflussvolumens von  $1.4 \times 10^8 \text{ m}^3$  (9km lang, 1km breit, 15m tief) und eines durchschnittlichen Aarefrühjahrsommerabflusses von  $235 \text{ m}^3/\text{s}$  auf 6-7 Tage. Basierend auf dieser Abschätzung wurde koordiniert mit dem KKW Mühleberg am 9.9.93 eine Abgabe radioaktiver Substanzen ausgenutzt, um den Aare-durchfluss durch den Bielersee zu verfolgen. Die Radionuklide erreichten den Bielersee in der Nacht vom 9.9 auf den 10.9.93. Eine Radionuklidmessung in der Aare bei Hagneck (Wasserprobenahme - WP1 - Fig. 1) ergab eine  $^{60}\text{Co}$  Aktivität von  $11.2 \text{ Bq}/\text{m}^3$ . Am 10.9. wurden im See nördlich der Aaremündung (WP2) Messungen auf unterschiedlicher Tiefe durchgeführt und ein Maximalwert von  $1.7 \text{ Bq}/\text{m}^3$  auf einer Tiefe von 15 m festgestellt. Zur gleichen Zeit wurde beim Aareausfluss bei Biel (Aare Output -WP3) eine Hintergrundaktivität von  $0.09 \text{ Bq}/\text{m}^3$  gemessen. An der gleichen Stelle stieg die  $^{60}\text{Co}$  Aktivität am 15.9.93 auf 3.9

Bq/m<sup>3</sup> an. Diese Feldmessungen untermauern die seophysikalischen Messergebnisse. Ein beträchtlicher Teil der Aare verlässt während der Periode stabiler Schichtung nach einer Aufenthaltszeit von nur 6-7 Tagen den Bielersee.

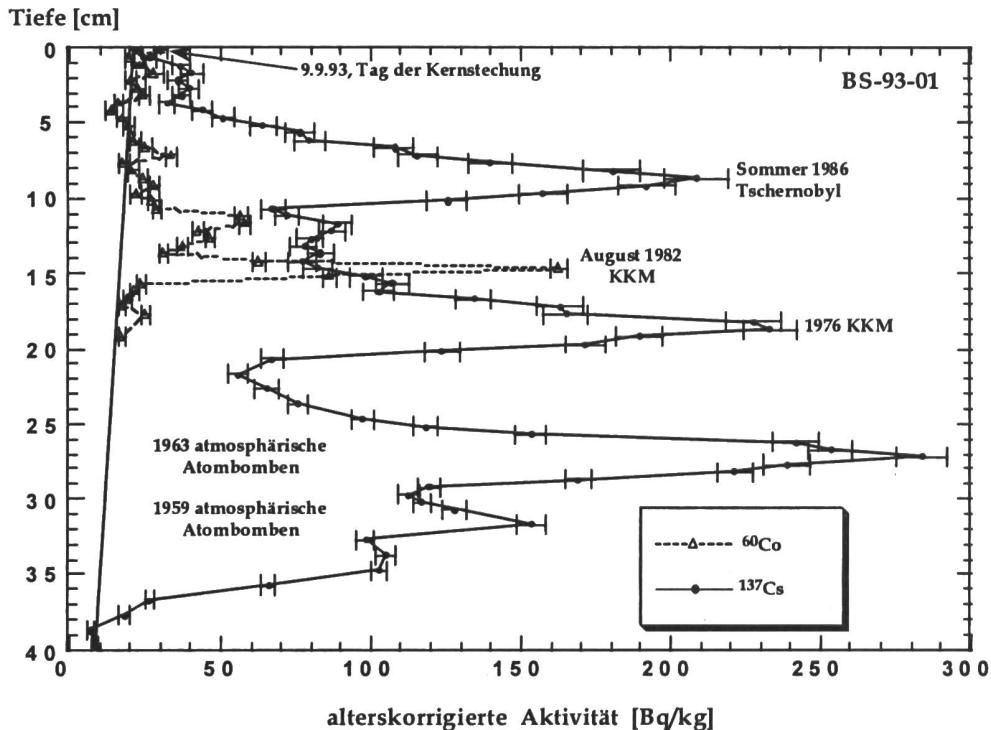
Die stabile Seenschichtung bricht im Laufe des Spätherbst zusammen und es kommt zur Totaldurchmischung des Sees. Die Seewassertemperatur sinkt in der gesammten Wassersäule auf 4-5°C ab und liegt nahe der Aaretemperatur. Die Wasserdichte wird in dieser Periode markant von der Ionenkonzentration beeinflusst (Fig. 2). Da das Aarewasser besonders in dieser Periode eine deutlich höhere Ionenkonzentration als das Seewasser aufweist, ist es schwerer als dieses und schichtet sich am Seegrund ein. Die Residenzzeit des Aarewassers im Bielersee erhöht sich demzufolge im Vergleich zum Sommer drastisch. Der gesamte See wird vom Beginn dieser Periode an mit schwererem Aarewasser gefüllt, während das darüberliegenden leichtere Seewasser in Biel abläuft. Unter Benutzung des Seegesamtvolumens von 1.2 km<sup>3</sup> und einer durchschnittlichen Winterabflussrate von 110 m<sup>3</sup>/s berechnet sich die Aufenthaltszeit im Winter auf 125 Tage.

### 3.9.4. Radionuklide in Sedimentkernen, chronologische Betrachtungen

#### (a) 1940 - 1993

Die Bedeutung von Sedimentkernen zur Rekonstruktion von Radionuklidflüssen und damit zur Kontrolle der Abgaben nuklearer Einrichtungen macht der Kern BS-93-01 aus dem Bereich des Aaredeltas deutlich (Fig. 3). Dargestellt ist die massenbezogene Tiefenverteilung von <sup>137</sup>Cs und <sup>60</sup>Co. Die angegebenen Aktivitäten sind auf den Zeitpunkt der Sedimentablage rung zerfallskorrigiert. Die Konstruktion der Altersskala beruht hauptsächlich auf den <sup>137</sup>Cs Maxima von 1963 und 1986, welche in allen Schweizer Seen auftreten. Das Auftreten eines dritten Peaks ist charakteristisch für den Bielersee und ist auf die erhöhten Abgaben durch das KKW Mühleberg in der Mitte der 70er Jahre (mit einem Maximum um 1976, verursacht durch Brennstabhüllen niedriger Qualität) zurückzuführen. Die Abgaben von <sup>137</sup>Cs durch das KKW gingen nach 1976 deutlich zurück.

Das erste Auftreten von <sup>60</sup>Co in Bielerseesedimenten fällt mit der Inbetriebnahme des Kernkraftwerkes 1971 in etwa zusammen, obwohl aufgrund der Halbwertszeit von 5.3 Jahren die <sup>60</sup>Co Aktivität der ersten Jahre nahe der Nachweisgrenze liegt. Das Maximum der <sup>60</sup>Co Aktivitäten von 160 Bq/kg hängt mit der Entleerung eines Torus im KKW Mühleberg im August 1982 zusammen. Die vorhandene Schärfe aller Ablagerungsmaxima zeigt deutlich, dass Umlagerungs- und Rücklösungsprozess in tieferen Bereichen des Bielersees nicht von grosser Bedeutung sind, was die Verwendung von Radionukliden zu chronologischen Zwecken erst ermöglicht.



**Fig. 3:** Alterskorrigierte Tiefenverteilung der Radionuklide  $^{60}\text{Co}$  und  $^{137}\text{Cs}$  in einem Sedimentkern des Aaredeltas (Zone 1). Zu erkennen sind  $^{137}\text{Cs}$  Maxima, die mit den atmosphärischen Atombombenversuchen (Maximum 1963), dem KKW Mühleberg (1976) und dem Tschernobylunfall (1986) in Zusammenhang stehen. Die Maxima für  $^{60}\text{Co}$  archivieren höhere Abgaben des Kernkraftwerks.

#### (b) 1991-1994

Neben dem im Aaredelta gezogenen Kern wurden am 31. Mai 1994 weitere Kerne an den tiefsten Stellen der drei Hauptbecken gezogen (Fig. 1). Diese 4 Kerne stellen aufgrund des hohen Tonmineralanteils (Albrecht et al., 1995a) die Maximalablagerungen in den vier Zonen dar (Fig 4). Tonminerale gelten aufgrund ihrer Kristallstruktur und Korngrösse als effiziente Adsorber, und damit als wichtiges Radionuklidtransportmedium. Um einen Vergleich zwischen Radionuklidabgaben durch das KKW Mühleberg und dem Transfer in das Sediment zu ermöglichen, sind die Inputfunktion aufgrund der Abgaben des KKW's und die Outputfunktion in das Sediment jeweils als Flüsse dargestellt. Diese beziehen sich auf den Zeitschnitt, der von der jeweiligen Probe archiviert ist. Die angegebene Datierung basiert auf der  $^{137}\text{Cs}$  Tiefenverteilung. Zur Umrechnung der Radionuklidabgaben des Kernkraftwerks (Bq) in Flüsse (Bq/m<sup>2</sup>/Tag) werden diese durch die Sedimentationsfläche (Zonen 1-4) und die Zeitperiode, welche die jeweiligen Proben abdecken, dividiert. Die Radionuklidflüsse in die Sedimente berechnen sich mit Hilfe der folgenden Gleichung:

$$F = \frac{A \rho \Delta d}{1000 \Delta t}$$

$A$  ist die massenbezogenen Aktivität des Sediments in vorgegebener Tiefe (Bq/kg),  $\rho$  die Trockendichte des Sedimentmaterials ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ),  $\Delta d$  die Dicke der beprobten Sedimentschicht und  $\Delta t$  das Zeitintervall, welches in der jeweiligen Sedimentschicht archiviert ist.  $\Delta t$  wurde aus den Sedimentationsraten in den obersten Zentimetern bestimmt, wobei eine jahreszeitliche Korrektur notwendig ist, da 80% der Gesamtsedimentation während der Warmperiode (April, 15 - October 15) stattfindet. (Wright et al., 1980). Da jeder Sedimentkern eine geringfügig unterschiedliche Sedimentationsrate aufweist (Albrecht et al., 1995a), ist  $\Delta t$  von Probe zu Probe unterschiedlich.

In Figur 4 sind die Inputfunktion und die Sedimentoutputfunktion von  $^{60}\text{Co}$  für die Periode vom Frühjahr 1991 bis zum Frühjahr 1994 dargestellt. Der Kern aus Zone 1 wurde im September 1993 gezogen, deshalb fehlt die Periode von September 1993 bis zum Mai 1994. Die Inputflüsse zeigen eine gewisse jährliche Periodizität mit Maxima während des Spätsommers. Dieser Anstieg der Radionuklidabgaben hängt mit der Revision des KKW Mühleberg zusammen. Das Abgabenmaximum während der Herbstmonate 1993 erklärt sich durch eine Torusabgabe. Diese war wegen einer Torusreinigung zwecks Siebwechsel erforderlich (Auflage HSK). Die Korrelation zwischen den Input- und Sedimentoutputflüssen bestärkt die bereits diskutierte Sedimentdatierung.

Zudem informiert sie über den raschen Transfer eines Teils des  $^{60}\text{Co}$  von der Wassersäule ins Sediment. Eine genauere Analyse dieser Daten ermöglicht eine saisonale Differenzierung. Die Maximalabgaben der drei Sommerperioden spiegeln sich direkt in Form erhöhter  $^{60}\text{Co}$  Flüsse in den Sommerablagerungen wider. Ein Vergleich der Ablagerungen vom Sommer 1992 zeigt deutlich deren räumliche Verteilung. Maximalflüsse von  $1.8 \text{ Bq}/\text{m}^2/\text{Tag}$  liegen im Deltabereich vor (Zone 1). Sie nehmen dann kontinuierlich ab und erreichen im SW Becken (Zone 4) einen Wert von  $0.5 \text{ Bq}/\text{m}^2/\text{Tag}$ . Dies macht deutlich, dass ein Teil des Aarewassers auch in den Sommermonaten bis in das entfernteste Becken des Bielersees eine Auswirkung hat. Der rasche Transfer eines Teils des  $^{60}\text{Co}$  von der Wassersäule in das Sediment während der Sommerperiode hängt mit dem 4 mal höheren Partikelfluss zusammen, der zum einen durch den bedeutenderen Partikeltransport durch die Aare, wie auch mit der viel höheren Sommerprimärproduktion im See zusammenhängt.

Der erhöhte Radionuklidinput während der Herbstmonate 1993 erlaubt es, das Verhalten der Radionuklide im Winter genauer zu analysieren. Trotz des merklich angestiegenen Inputs nimmt der Radionuklidfluss während der Wintermonate ab. Dies kann wiederum mit dem Partikelfluss im See erklärt werden, der im Winter stark abnimmt. Gelöste Radionuklide adsorbieren an diese Partikel, die dann als Radionuklidtransportmedium in die Sedimente dienen. Von besonderem Interesse ist die oberste Probe der Kerne aus Zone 2 und Zone 3. Diese Probe repräsentiert den Zeitraum von April-Mai 1994, eine Periode mit minimalem  $^{60}\text{Co}$  Eintrag mit der Aare. Der Anstieg im  $^{60}\text{Co}$  Sedimentoutputfluss während der Frühjahrssperiode muss ein 'memory-effect' sein. Die Radionuklide, die hier zur Ablagerung gelangten, verweilten während der Wintermonate im See und kamen erst mit dem Beginn des ansteigenden Partikelfluxes im Frühjahr zur Ablagerung. Eine Verweildauer von drei Monaten kann mit Hilfe der Kerndaten ermittelt werden. Diese lange Residenzzeit ist in Einklang mit den seenphysikalischen Überlegungen, nach welchen die Aare während der Kaltperiode sich im Bereich des Seegrundes einmischt und den See von unten her auffüllt. Da der durchschnittliche Aareabfluss im Winter bei  $110 \text{ m}^3/\text{s}$  liegt, beträgt die Winteraufenthaltszeit etwa 125 Tage.

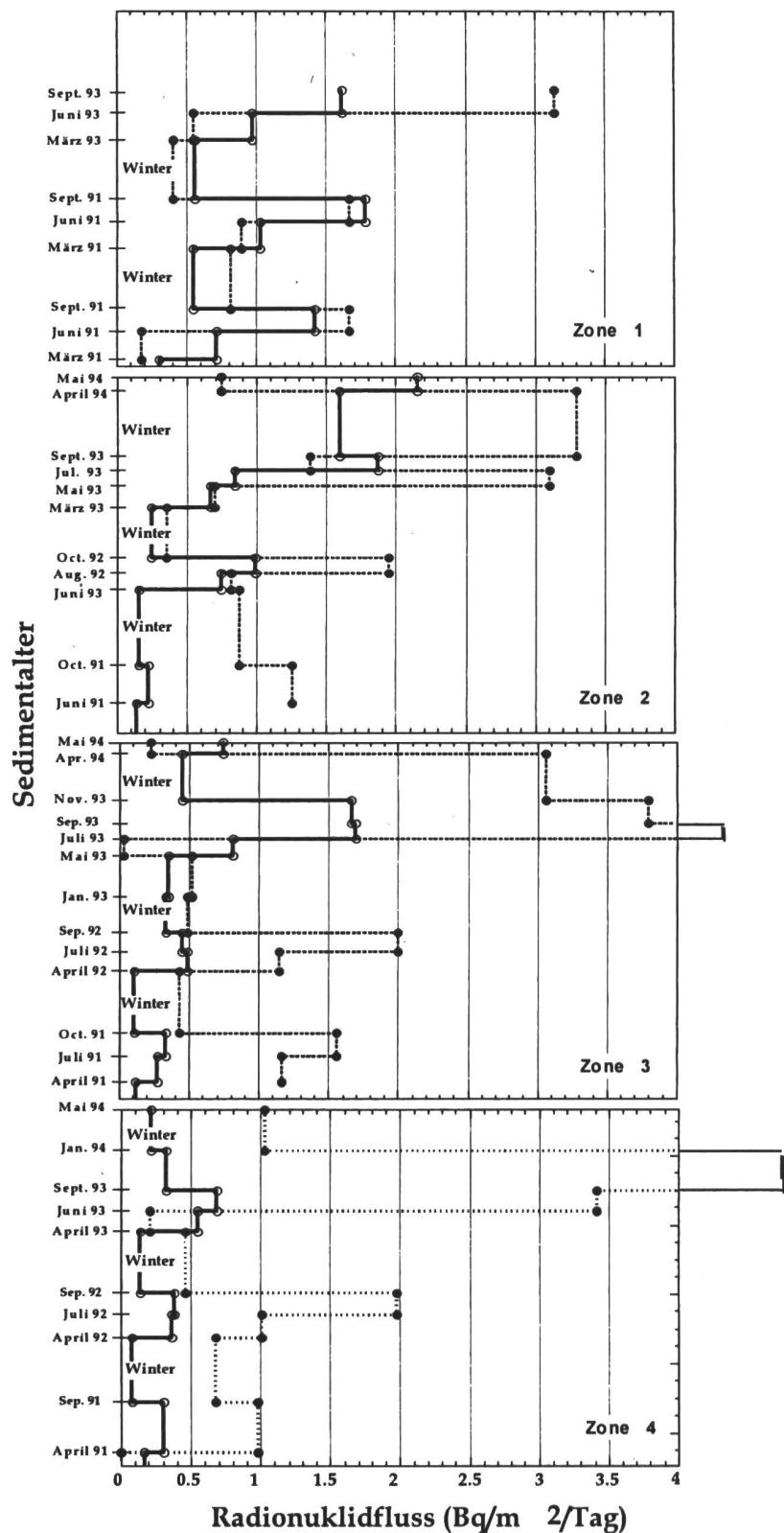


Fig. 4: Vergleich zwischen  $^{60}\text{Co}$ -Radionuklideintrag (gestrichelte Linie, gefüllte Kreise, mit Punktsignatur verdeutlicht, basierend auf Abgaben des KKM) und Sedimentoutputfluss (durchgezogene Linie, offene Kreise, berechnet aufgrund von Sedimentkerndaten) in den 4 Zonen des Bielersees.

Zusammenfassend kann folgendes Radionuklidtransfermodell erstellt werden. Während der Periode von Mitte April bis Mitte Oktober mischt sich die Aare im Epilimnion ein, und die Residenzzeit beträgt ungefähr 6-7 Tage. Während dieser Periode herrschen andererseits maximale Partikelflüsse, die den Abtransport von Radionukliden aus der Aare und in das Hypolimnion ermöglichen. Während der Winterperiode andererseits füllt das Aarewasser den See quasi wie ein leerer Becken auf. Deshalb ist die Residenzzeit von zugeführten Radionukliden im See zwar erhöht, es kann jedoch nicht zu einem effizienten Transfer in das Sediment kommen, da die Partikelflüsse im Vergleich zum Sommer um den Faktor 4 reduziert sind. Der See wird im Winter sozusagen mit gelösten Radionukliden "geladen". Erst die im Frühjahr einsetzenden Partikelflüsse bewirken eine Reduktion der in der Wassersäule befindlichen Radionuklidkonzentrationen. Inwieweit diese transfer-hemmenden Faktoren die Passage der Radionuklide durch den See ermöglichen, kann anhand einer Seegesamtbudgetierung überprüft werden.

Die hier für  $^{60}\text{Co}$  angeführten Ergebnisse werden durch die Radionuklide  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{137}\text{Cs}$  bestätigt (Albrecht et al., 1995a).

### 3.9.5. Radionuklidgesamtbudgetierung

Basierend auf der vorgenommenen Zoneneinteilung des Bielersees (Fig. 1) sollen nun aus den Radionuklidflüssen (für  $^{60}\text{Co}$ , siehe Fig. 4; für  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$ , siehe (Albrecht et al., 1995a)) Gesamtdepositionen berechnet werden (Tab. 1). Um die Validität der Budgetierung abschätzen zu können, wurde ein Drei- und ein Einjahresbudget erstellt. Das Dreijahresbudget (A) beschränkt sich auf die Radionuklide  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{60}\text{Co}$ , da  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$  mit jeweils 312 und 244 Tagen zu diesem Zweck zu kurze Halbwertszeiten aufweisen. Im Einjahresbudget (B) wurden die Zonen 1 und 2 zusammengefasst, was mit der Probenahmedifferenz in Zusammenhang gebracht werden kann. In beiden Budgets (Tab. 1) sind die Zeiträume angegeben, die von den obersten Sedimentproben archiviert werden.

Die Gesamtablagerung für jede Probe errechnet sich durch Multiplikation der Radionuklidflussdaten mit der Fläche der Zone und der Zeitperiode der jeweiligen Ablagerung. Die Abgaben des KKW's wurden den Monatsberichten entnommen, die in der Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen (HSK) erhältlich sind. Da die Zeitintervalle der verschiedenen Kerne nicht exakt die Ein- bzw. Dreijahresperiode abdecken, wurde ein Mittelwert bestimmt. In der letzten Spalte findet sich der Radionuklidanteil, der in den vier Zonen im Verhältnis zur Gesamtabgabe abgelagert wird. Die Ablagerungsanteile für  $^{60}\text{Co}$  von 47% und 43%, die für eine Drei- bzw. Einjahresperiode berechnet wurden, liegen im gleichen Rahmen, was die Glaubwürdigkeit unserer Berechnungen bekräftigt. Für  $^{54}\text{Mn}$  liegt der im Sediment abgelagerte Anteil bei 48 %, also im gleichen Rahmen wie für  $^{60}\text{Co}$ . Für  $^{65}\text{Zn}$  ist dieser Anteil mit 27 % deutlich geringer. Diese Berechnung basiert auf der Annahme, dass die Sediment- und damit Radionuklidverteilung in den Zonen homogen ist. Die Sedimentwahl wurde so getroffen, dass Inhomogenitäten zur Verringerung der berechneten Radionuklidablagerungen führen. Diese niedrigen Sedimentanteile können mittels seophysikalischer Gegebenheiten erklärt werden. Im Sommer, wenn der Seepartikelfluss am höchsten ist, sinkt die Aufenthaltszeit eines Grossteils der vom Aarewasser transportierten Radionuklide auf wenige Tage. Als Zusatzinformation sei erwähnt, dass in der 3-Jahresperiode  $2.5 \times 10^{11}$  Bq des natürlich vorkommenden  $^{40}\text{K}$  im See abgelagert wurde.

**Tabelle 1: Gesamtbudgetierung der Hauptradionuklide im Bielersee**

(A) 3-Jahres-Budget		<b><math>^{60}\text{Co}</math></b>		<b><math>^{137}\text{Cs}</math></b>	
Zone	Probenalter	abgelagert	im Sediment	abgelagert	im Sediment
1	von - bis 10.Sep.93 - 22.Mär.91	[Bq] $3.7 \times 10^9$	[%] 14.0	[Bq] $5.4 \times 10^9$	[%] 131
2	31.Mai.94 - 10.Jun.91	$9.1 \times 10^9$	19.0	$5.6 \times 10^9$	97
3	31.Mai.94 - 28.Apr.91	$4.4 \times 10^9$	9	$4.4 \times 10^9$	72
4	31.Mai.94 - 12.Apr.91	$2.2 \times 10^9$	5	$4.7 \times 10^9$	78
	Gesamt	$1.9 \times 10^{10}$	47	$2.0 \times 10^{10}$	379

(B) 1-Jahr-Budget		<b><math>^{60}\text{Co}</math></b>		<b><math>^{54}\text{Mn}</math></b>		<b><math>^{65}\text{Zn}</math></b>	
	Probenalter	abgelagert	im Sediment	abgelagert	im Sediment	abgelagert	im Sediment
1+2	von - bis 31.Mai.94 - 31.Mai.93	[Bq] $9.0 \times 10^9$	[%] 30	[Bq] $4.7 \times 10^8$	[%] 23	[Bq] $1.5 \times 10^9$	[%] 21
3	31.Mai.94 - 18.Mai.93	$2.7 \times 10^9$	9	$2.9 \times 10^8$	15	$1.6 \times 10^8$	2
4	31.Mai.94 - 20.Apr.93	$1.1 \times 10^9$	4	$1.8 \times 10^8$	9	$2.6 \times 10^8$	4
	Gesamt	$1.3 \times 10^{10}$	43	$9.5 \times 10^8$	47	$1.9 \times 10^9$	27

Labortests haben gezeigt, dass unter Verwendung natürlicher polyminalischer Sedimente auch nach 25 Tagen noch kein Gleichgewicht zwischen gelöster und adsorbiert Form erreicht ist. (Santschi et al., 1982; Santschi et al., 1986). In den kalten Monaten, wenn die Aarewasser-aufenthaltszeit und damit auch die Radionuklidverweilzeit bis auf 3 Monate erhöht wird, ist das Transportmedium (Tonmineralien) reduziert. Zum anderen spielen chemische Faktoren eine Rolle. So wird z.B. bis zu 50% des  $^{60}\text{Co}$  nach der Abgabe durch das KKW Mühleberg, wo der gelöste Anteil kationisch vorliegt, in der Aare negativ komplexiert (Albrecht et al., 1994a). Diese Komplexierung, welche wahrscheinlich auf einer Verbindung mit organischen Substanzen wie Fulvin- oder Huminsäuren beruht, erklärt die Passivität eines beachtlichen  $^{60}\text{Co}$  Anteils während der im aquatischen Milieu ablaufenden Adsorptionsprozesse. Es ist noch nicht klar, inwieweit diese Erklärung auch für Zn und Mn herangezogen werden kann.

Für  $^{137}\text{Cs}$  zeigt das Budget deutlich, dass das KKW Mühleberg im Vergleich zum Tschernobylunfall nur eine sekundäre Rolle spielt. In Sedimenten wurde etwa 3.5 mal soviel  $^{137}\text{Cs}$  gefunden, wie durch das KKW abgegeben wurde. Dieser Überhang von Tschernobyl und wohl auch Bombencaesium macht deutlich, dass durch Partikelerosion im Einzugsgebiet der Aare weiterhin beachtliche Aktivitäten von Radiocaesium in den See transportiert werden. Daher kann  $^{137}\text{Cs}$  nicht in gleicher Weise wie  $^{60}\text{Co}$  studiert werden.

## Verdankung

Unser besonderer Dank gilt den Herren M. Haller, C. Perotto und R. Schuh (Kernkraftwerk Mühleberg) und Herrn Schwab (Regionale Leitstelle Wasserkraftwerk Aarberg) für die geleistete Unterstützung. Seophysikalische Daten wurden uns von Herrn Dr. M. Zeh (Gewässer- und Bodenschutzlabor Kanton Bern) freundlicherweise zur Verfügung gestellt. Diese Studie wurde von der Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen (HSK) finanziell unterstützt.

## Literatur

- Albrecht, A., Beer, J., Gloor, M., Fischer, A., & Mattle, N. (1994a). Aquatic transport behavior of cobalt deduced from nuclear reactor derived  $^{60}\text{Co}$ . *Mineralogical magazine*, **58A**, 13.
- Albrecht, A., Beer, J., Reichert, P., & Lück, A. (1994b). Verhalten von Radionukliden aus dem Kernkraftwerk Mühleberg in Aare und Bielersee, in: 1993, Environmental Radioactivity and Radiation Exposure in Switzerland, Bundesamt für Gesundheitswesen, Abteilung Strahlenschutz, SUeR, Chemin du Musée, CH-1700 Fribourg, B 3.10.1-7.
- Albrecht, A., Gloor, M., Beer, J., & Zeh, M. (1995a). Anthropogenic radionuclides as tracers of riverine input to lake systems. *Limnology and Oceanography*, *in prep*.
- Albrecht, A., Reichert, P., Beer, J., & Lück, A. (1995b). Evaluation of the importance of reservoir sediments as sinks for reactor-derived radionuclides in riverine systems. *Journal of Environmental Radioactivity*, *in press*.
- Santschi, P. H., Carson, S., & Li, Y.-H. (1982). Natural radionuclides as tracers for geochemical processes in MERL mesocosms and Narragansett Bay. In G. D. Grice & M. R. Reeve (Eds.), *Marine mesocosms* (pp. 97-109). New York: Springer.
- Santschi, P. H., Nyffeler, U. P., Anderson, R. F., Schiff, S. L., & O'Hara, P. (1986). Response of radioactive trace metals to acid-base titrations in controlled experimental ecosystems: Evaluation of transport parameters for application to whole-lake radiotracer experiments. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, **43**, 60-77.
- Weiss, H.-P. (1977) Sedimentologische und Isotopengeochemische Untersuchung der Lockergesteine im Bieler See. Diplomarbeit, Bern.
- Wright, R. F., Matter, A., Schweingruber, M., & Siegenthaler, U. (1980). Sedimentation in Lake Biel, an eutrophic lake in northwestern Switzerland. *Schweiz. Z. Hydrol.*, **42**(2), 101-126.

### **3.10. EINSCHWEMMUNG VON RADIONUKLIDEN IN DEN LUGANER SEE UND VERGLEICH MIT DEM BODENSEE**

**T. Klenk<sup>1)</sup>, E. Klemt<sup>1)</sup>, R. Miller<sup>1)</sup>, G. Zibold<sup>1)</sup>, M. Burger<sup>2)</sup>, A. Jakob<sup>2)</sup>**

<sup>1)</sup> Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, IAF Radiometrie, Postfach 1261, 88241 Weingarten, Deutschland

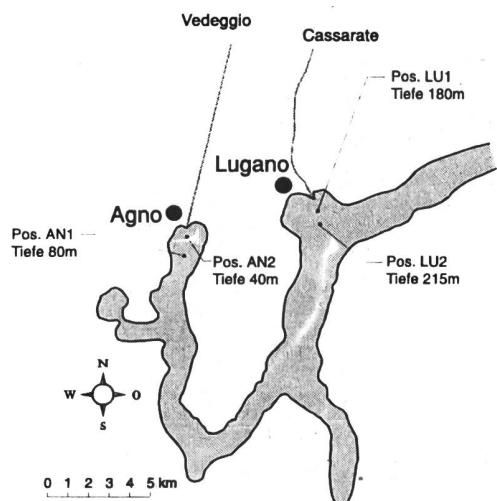
<sup>2)</sup> GRD, AC-Laboratorium Spiez, Sektion Sicherheitsfragen, Zentrale Analytik und Radiochemie, CH-3700 Spiez, Schweiz

#### **3.10.1. Einleitung**

Luganer See und Bodensee wurden im Jahr 1986 durch den Eintrag von Fallout aus dem Tschernobyl-Unfall in ähnlicher Höhe mit Cäsium-Radionukliden kontaminiert (Inventar ca. 20 kBq/m<sup>2</sup>). Im Luganer See nimmt das Cäsium-Inventar in der Wassersäule langsamer ab als im Bodensee. 1988 zeigte das Nordbecken des Luganersees ein Cäsium-Inventar von ca. 10 kBq/m<sup>2</sup>, das Südbecken ca. 4 kBq/m<sup>2</sup>. Der Bodensee wies 1988 ein Cäsium-Inventar von 0,4 kBq/m<sup>2</sup> auf /2/. Um die Unterschiede im Luganer See zu erklären, sind die Zuflüsse der verschiedenen Becken entscheidend. Das Nordbecken hat zwei Zuflüsse, Cassarate und Cuccio, das Becken vor Agno hat nur einen Zufluß, den Vedeggio. Nord- und Südbecken und das Becken vor Agno sind durch Moränen, d.h. Schwellen unter Wasser abgetrennt. Wir vermuten, daß die anhaltend hohe Kontamination des Luganer Sees durch fortwährenden Eintrag von Cäsium-Radionukliden über die Zuflüsse und durch Rücklösung von Cäsium aus dem Sediment verursacht wird.

Die in den Bodensee eingetragenen Radionuklide wurden durch Anlagerung an Schwebstoffe (Tonminerale) und anschließende Sedimentation rasch und effektiv aus der Wassersäule entfernt und gelangten so ins Sediment. So wurde bereits in den ersten Monaten nach dem Eintrag der größte Teil der Cäsium-Radionuklide aus der Wassersäule entfernt /3/. 1990 lag die <sup>137</sup>Cs-Konzentration im Bodenseewasser unter 1 mBq/l, das heißt ähnlich niedrig wie vor dem Tschernobyl-Unfall.

Das Ziel dieser Untersuchung ist, den Cäsium-Eintrag über die Zuflüsse, die Tiefenverteilung von Cäsium im Sediment sowie die Rücklösung von Cäsium aus dem Sediment in das Freiwasser zu messen. In einem ersten Untersuchungsabschnitt werden Sedimente aus dem Mündungsgebiet der Zuflüsse Vedeggio und Cassarate vorgestellt.

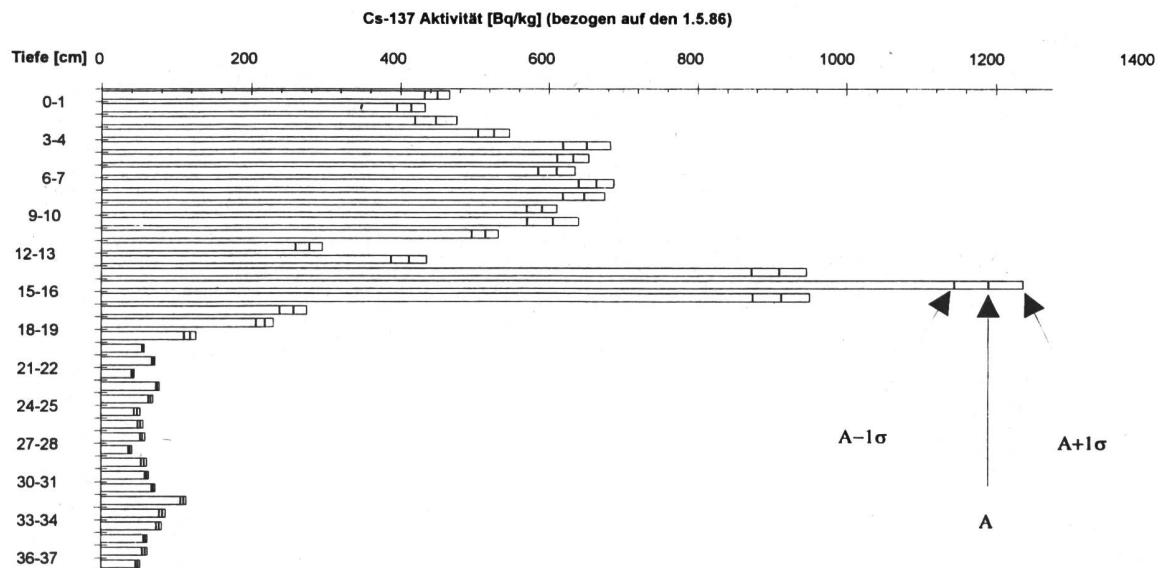


An 4 Sedimentkernen aus den Mündungsgebieten der Zuflüsse Cassarate und Vedeggio wurde die Tiefenverteilung der Radionuklide  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{137}\text{Cs}$  untersucht.

*Abb. 1 Darstellung der 4 Beprobungspositionen.*

### 3.10.2. Tiefenverteilung des Radiocäsiums im Sediment

#### Tiefenprofile aus dem Nordbecken



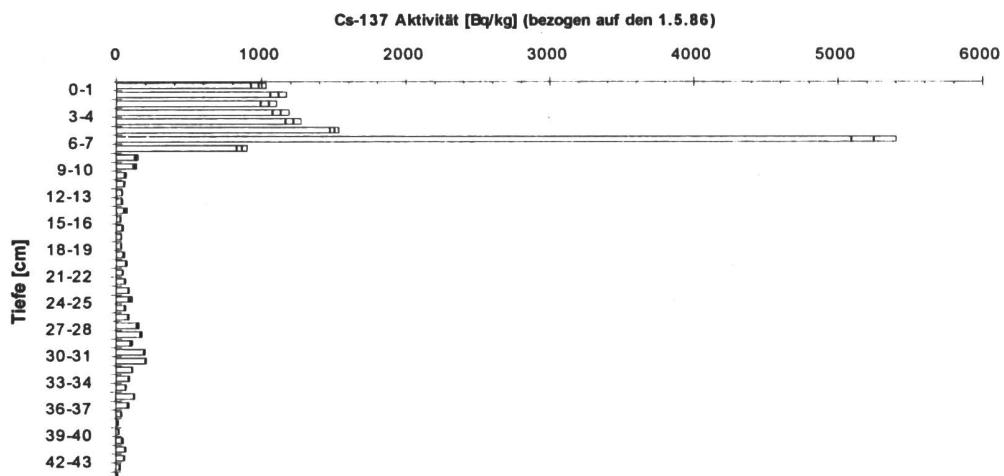
*Abb. 2  $^{137}\text{Cs}$ -Tiefenverteilung der Position LU1 (vor Mündung Cassarate). Tiefe 180 m.*

Die Position LU1 stellt die der Mündung des Cassarate am nächsten liegende Position dar, an der eine Beprobung möglich war. Bei der Bergung des Kerns fiel ein starker Methan-Geruch auf. Starke Gasbildung führte dazu, daß mehrere Kerne von den aufsteigenden Gasblasen im PVC-Rohr auseinandergerissen wurden und somit nicht untersucht werden konnten. Der hohe Methan-Gehalt in Sedimenten aus dem Lugarner See wurde auch von Niessen beobachtet /6/.

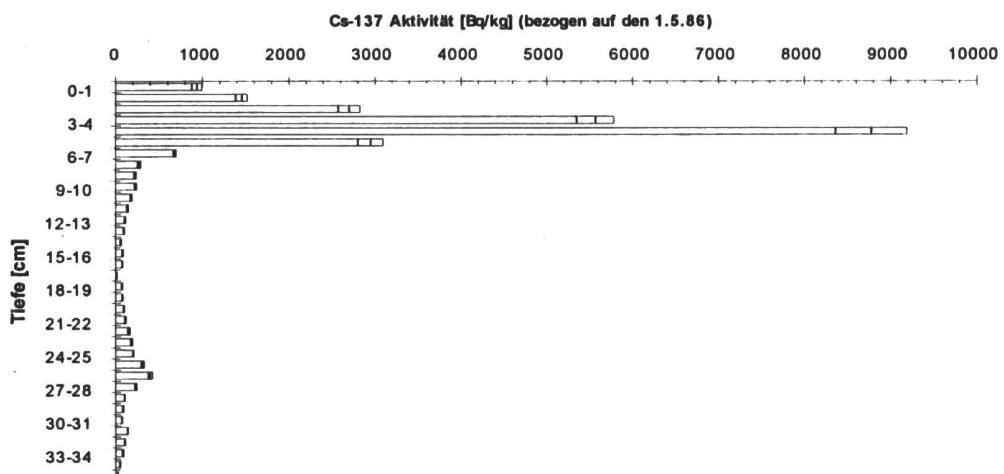
Die obersten etwa 30 cm des Sedimentkerns bestanden zu einem Großteil aus Laub und Zweigen, vermengt mit Sand und stark glimmerhaltigem Material. Eine Laminierung war über die gesamte Länge des Kerns nicht erkennbar. Die spezifische Aktivität des abgelagerten Materials zeigt einen schwankenden Verlauf bis in ca. 13 cm Sedimenttiefe, gefolgt von einem

abgegrenzten Maximum in 16 cm Tiefe und einem weiteren Maximum in 33 cm Sedimenttiefe. In den Horizonten im Bereich beider Maxima konnte  $^{134}\text{Cs}$  nachgewiesen werden. Das  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  Konzentrations-Verhältnis (zurückgerechnet auf Mai 86) liegt bei etwa 0,6. Dieser Wert entspricht etwa dem für den Tschernobylfallout in dieser Region gemessenen Verhältnis /1/. Das Maximum in 33 cm Sedimenttiefe ist somit dem Tschernobyl-Fallout zuzuordnen.

Der Sedimentkern an der Position LU2 (vor Mündung Cassarate, Tiefe 215m) wies bei der Längsaufteilung eine deutlich sichtbare Laminierung auf. Der Methangeruch war etwas weniger stark als bei Position LU1. Vor allem in den dunklen Schichten war viel Glimmer erkennbar, besonders ausgeprägt in der Schicht 49 bis 50 cm. Der  $^{137}\text{Cs}$ -Tiefenverlauf zeigt zwei deutlich voneinander getrennte Maxima, die dem Tschernobyl-Fallout (enthält  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{134}\text{Cs}$ ) beziehungsweise dem Kernwaffentest-Fallout (enthält nur  $^{137}\text{Cs}$ ) zugeordnet werden können. Der stark unsymmetrische Tschernobyl-Peak ist nach unten scharf abgegrenzt. Oberhalb des Maximums verringert sich die spezifische Aktivität nach einer zunächst steilen Abnahme immer langsamer und weist an der Sedimentoberfläche noch rund 1000 Bq/kg auf.



**Abb. 3**  $^{137}\text{Cs}$ -Tiefenverteilung der Position LU2 (vor Mündung Cassarate). Tiefe 215 m.  
Tiefenprofile aus dem Becken vor Agno



**Abb. 4**  $^{137}\text{Cs}$ -Tiefenverteilung der Position AN1 (vor Mündung Vedeggio). Tiefe 80 m.

Das Material des Sedimentkerns AN1, entnommen vor der Mündung des Vedeggio, war bis in ca. 30 cm Tiefe sehr wässrig und wies eine dunkle, fast schwarze Färbung mit kaum erkennbarer Laminierung auf. Eine Dehnung bzw. Stauchung des Kerns beim Ausstoßen aus dem PVC-Rohr ist nicht auszuschließen. Das Tiefenprofil der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität weist zwei voneinander abgegrenzte Maxima aus Tschernobyl- und Kernwaffentest-Fallout auf. Das Maximum des unsymmetrischen Tschernobyl-Peaks besitzt eine sehr hohe spezifische Aktivität von ca. 9000 Bq/kg. Zur Sedimentoberfläche hin weist der Peak einen "Nachlauf" auf und hat in der obersten Schicht noch eine Aktivität von 880 Bq/kg.

Die  $^{137}\text{Cs}$ -Tiefenverteilung wird wesentlich durch die Entfernung zur Mündung des Flusses und durch den Schwebstoffeintrag durch den Fluß bestimmt. Da bei der Probennahme die Position nur mit Kompaß und Karte bestimmt werden konnte, wird im folgenden der Parameter „Entfernung zur Mündung des Flusses“ nur quantitativ behandelt.

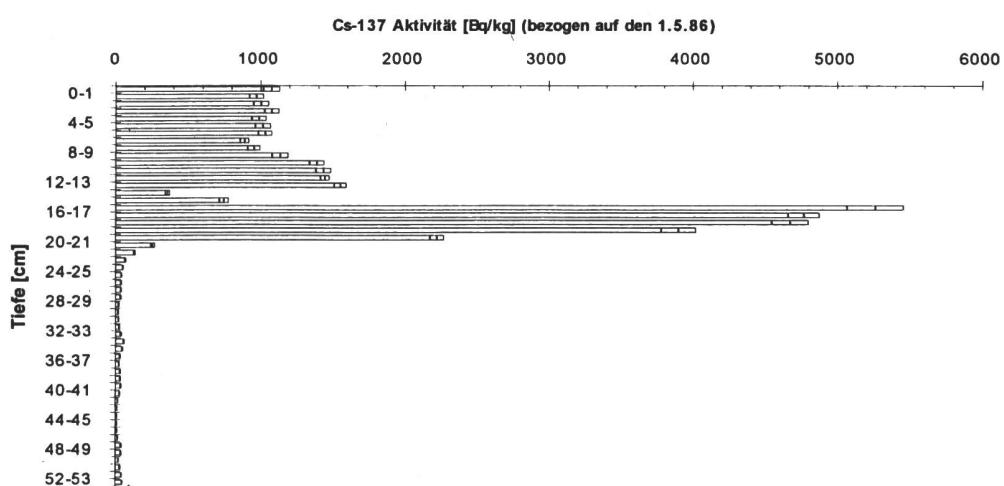


Abb. 5  $^{137}\text{Cs}$ -Tiefenverteilung der Position AN2(vor Mündung Vedeggio). Tiefe 40 m.

Die Beprobungsposition AN2 vor der Mündung des Vedeggio liegt in nur 40 m Wassertiefe. Bei einem vorausgegangen Fehlstich an dieser Position verfingen sich mehrere ca. 2 bis 3 cm lange weiß-rosafarbene Röhrenwürmer in den Stabilisierungsflossen des Sedimentstechers. Im Sediment befanden sich außerdem Reste von Papier. Auch an der Oberfläche des untersuchten Kernes waren Röhrenwürmer zu sehen. Auf einer Fläche von 28cm<sup>2</sup> konnten 20 bis 30 dieser Würmer gezählt werden. In etwa 1 bis 2 cm Tiefe befand sich ein Stück Kunststoff. Beim Aufteilen des Kerns fiel wiederum die Schwarzfärbung der oberen Schichten bis in etwa 10 cm Tiefe sowie die wässrige Konsistenz dieses Materials auf. In diesem Bereich war nur eine schwache Laminierung erkennbar. Die  $^{137}\text{Cs}$ -Verteilung ist hier weitgehend homogen. Der Tschernobylpeak im  $^{137}\text{Cs}$ -Tiefenverlauf ist nach unten weniger scharf abgegrenzt als nach oben. Zur Sedimentoberfläche hin folgt dem Tschernobyl-maximum ein Minimum in 14 bis 15 cm Tiefe, das einer hellen Lage im Sediment entspricht, in die starke Gasblasen eingebaut waren. Der Verlauf der Tiefenverteilung ähnelt der des Kernes LU1. Ein Kernwaffentest-Peak ist bis in eine Tiefe von 54 cm nicht erkennbar.

Die 4 Tiefenverteilungen lassen sich in 2 Typen einteilen: ufernah und uferfern. Die ufernahen Sedimente an den Positionen LU1 und AN2 zeigen qualitativ einen ähnlichen Verlauf, mit einem Maximum bei etwa 16 cm Tiefe und beträchtlicher Aktivität an der Sedimentoberfläche.

che. Die spezifische Aktivität dieser 2 Tiefenverteilungen unterscheidet sich um einen Faktor ca. 4. Die eingetragenen Inventare von ca 110 kBq/m<sup>2</sup> bzw. 60 kBq/m<sup>2</sup> liegen deutlich über dem im Mai 1986 über die Wasseroberfläche eingetragenen Inventar von ca. 22 kBq/m<sup>2</sup> /1/. Durch die Zuflüsse gelangte also zusätzliches Radiocäsium in den See.

Die in den Sedimenten bei Agno gefundenen Grobstoffe wie Plastikteile, Holz u.a. sowie die gefundenen Röhrenwürmer lassen vermuten, daß Umlagerungen im Sediment durch Hochwasser und/oder Bioturbation stattgefunden haben. Die ufernahen Sedimente sind deshalb nicht repräsentativ für eine ungestörte Sedimentation.

Die uferfernen Sedimente an den Positionen LU2 und AN1 zeigen deutlich ausgeprägte Maxima, die Cäsium aus dem Tschernobyl-Fallout in 8 cm bzw. in 6 cm Tiefe enthalten sowie Cäsium aus dem Fallout der atmosphärischen Kernwaffentests in 31 cm bzw. 26 cm Tiefe. Zudem ist die Aktivität an den Sedimentoberflächen beträchtlich. Die errechneten Inventare für das Cäsium aus Tschernobyl liegen mit ca. 30 und 24 kBq/m<sup>2</sup> nahe dem Wert des im Mai 1986 eingetragenen Inventars /1/. Die Sediment-Depositionsraten, die mit Hilfe des Maximums der Cs-Tiefenverteilung aus den Kernwaffentests berechnet wurden, sind deutlich höher als die Depositionsraten, die unter Verwendung des Tschernobyl-Maximums berechnet wurden. Es ist also nicht auszuschließen, daß bei der Probennahme die obersten Sedimentschichten verlorengingen.

Für die Positionen AN1 vor Agno und LU2 vor Lugano können Inventare und Depositionsraten aus den gemessenen Tiefenprofilen abgeschätzt werden. Die Werte sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Für die Positionen AN2 und LU1 können nur die Inventare für das Tschernobylcäsium bestimmt werden. Sie sind ebenfalls in Tabelle 1 aufgeführt. Depositionsraten wurden für diese beiden Positionen nicht berechnet, da die gezeigten Maxima möglicherweise nicht den Maxima der Einträge aus dem Tschernobyl-Fallout entsprechen.

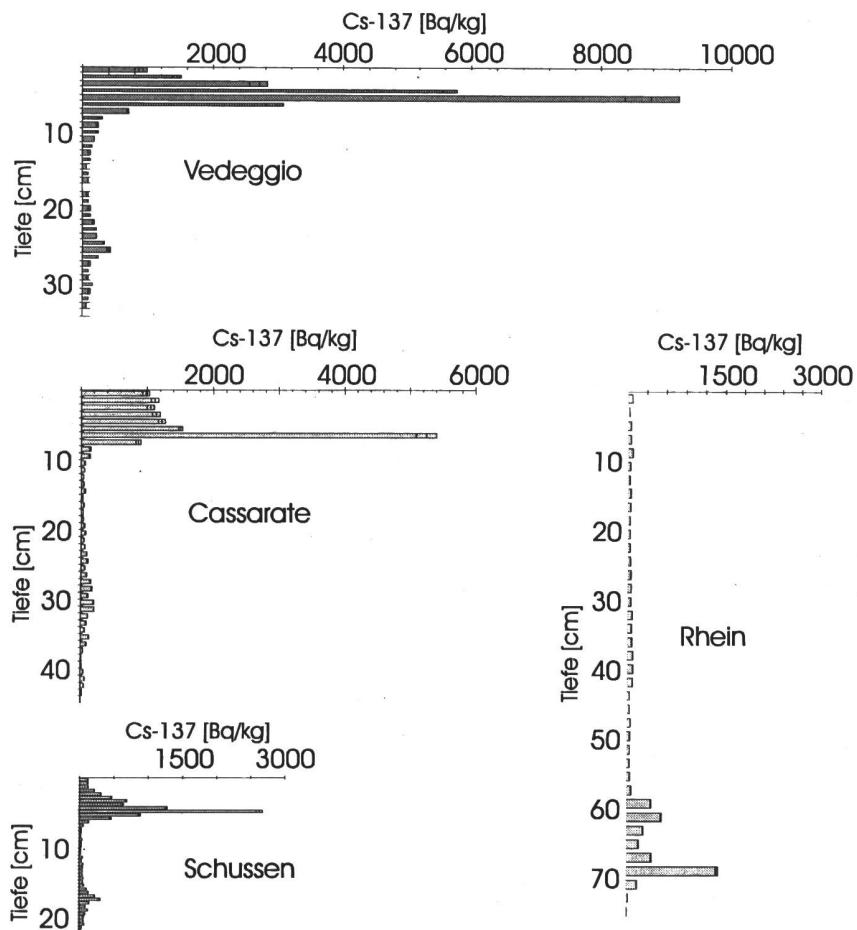
**Tab. 1 Inventare und Depositionsraten am Lusaner See**

Position		AN1	AN2	LU2	LU1
Tschernobylcäsium	[Bq/m <sup>2</sup> ]	24283	109558	30401	59506
Kernwaffencäsium	[Bq/m <sup>2</sup> ]	10757	-	17894	-
Dep.-Rate 1986-94	[g/(cm <sup>2</sup> a)]	0,08	-	0,24	-
Dep.-Rate 1963-86	[g/(cm <sup>2</sup> a)]	0,14	-	0,41	-

### Vergleich mit Bodensee-Sedimenten

Für einen Vergleich der Cs-Tiefenverteilungen mit Bodensee-Sedimenten werden Sedimente der uferfernen Positionen LU2 und AN1 herangezogen. Sie werden mit zwei Tiefenprofilen aus den Mündungsgebieten der Bodenseezuflüsse Rhein und Schussen verglichen (Abb. 6). Die Positionen im Bodensee liegen in etwa 1 km Entfernung von den Mündungen. Deutlich erkennbar ist, daß die spezifische Aktivität in den Schichten des Tschernobylmaximums in den Sedimentproben aus dem Lusaner See höher liegt als in den Sedimenten aus dem Bodensee. Ein weiteres typisches Unterscheidungsmerkmal zu den Bodenseekernen ist die vom Tschernobylmaximum zur Sedimentoberfläche hin langsamer abnehmende Aktivität. Zwar weisen auch die untersuchten Kerne aus dem Bodensee diesen "Nachlauf" auf, mit ca. 1000 Bq/kg liegt jedoch die spezifische Aktivität an der Sedimentoberfläche im Lusaner See um

einen Faktor 10 höher als bei Sedimenten aus dem Bodensee. Zusammen mit der Tatsache, daß die  $^{137}\text{Cs}$ -Inventare im Sediment höher sind als die direkt über die Wasseroberfläche eingetragen Inventare, ist dies ein Hinweis darauf, daß immer noch mit Cäsium beladene Partikel mit einer hohen spezifischen Aktivität durch die Zuflüsse Cassarate und Vedeggio eingetragen werden.



**Abb. 6** Tiefenverteilungen von  $^{137}\text{Cs}$  im Sediment der Mündungsgebiete der Zuflüsse Cassarate und Vedeggio (Luganer See) bzw. Rhein und Schussen (Bodensee). Die Aktivitäten sind auf den 1. Mai 1986 zurückgerechnet.

### 3.10.3. Bindung des Radiocäsiums an das Sediment

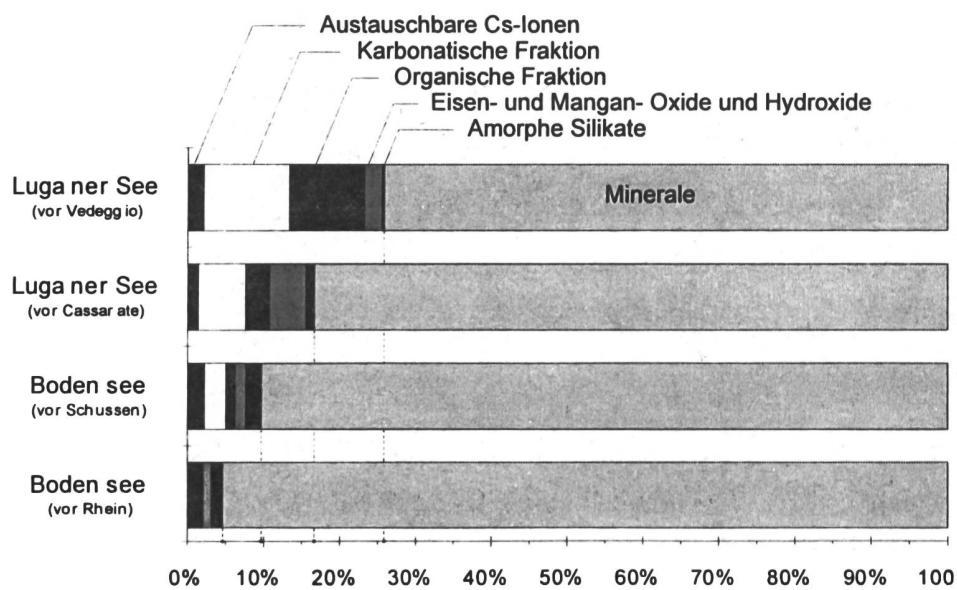
Die Bindungsstärke des Radiocäsiums an Feststoffe des Sediments wird mit einem 5-stufigen Extraktionsverfahren nach Robbins /4/ abgeschätzt. Die bereits aufgenommenen  $^{137}\text{Cs}$ -Tiefenverteilungen der Vergleichskerne dienen zur Ermittlung der Schichten, in denen die maximale Konzentration des aus dem Tschernobyl-Fallout stammenden Cäsiums eingebunden ist. An diesen Stellen wird jeweils eine 2 cm dicke Schicht entnommen. Es wird das von Kaminski /5/ vorgestellte, fünfstufige sequentielle Extraktionsschema für je 100 g Feuchtsediment angewandt, mit folgenden Ergebnissen:

- 1) Im Mündungsgebiet des Vedeggio sind 26% des Radiocäsiums aus dem Tschernobyl-Unfall nicht an die mineralische Fraktion des Sediments gebunden.
- 2) Im Sediment des Mündungsgebiets des Cassarate sind 17% des Radiocäsiums nicht an die mineralische Fraktion des Sediments gebunden.

### Vergleich mit Extraktionsversuchen an Bodensee-Sediment

Zwei Proben aus dem Mündungsgebiet der Bodenseezuflüsse Rhein und Schussen wurden demselben fünfstufigen Extraktionsverfahren unterzogen /7/. Im folgenden Schaubild werden die in den einzelnen Fraktionen gebundenen prozentualen Anteile der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität für alle vier Positionen vor Flußmündungen dargestellt.

Im Sediment der Mündungsgebiete des Cassarate und vor allem des Vedeggio ist ein höherer Anteil von Radiocäsium an die karbonatischen und organischen Fraktionen gebunden als in den untersuchten Proben aus dem Bodensee. Im Lugarer See sind 17% beziehungsweise 26 % des Radiocäsiums aus dem Tschernobyl-Fallout nicht an die mineralische Fraktion des Sediments und somit auch nicht quasi-irreversibel in Tonmineralschichten eingelagert. Zum Vergleich: Im Bodensee wird davon ausgegangen, daß der Hauptanteil der an die mineralische Fraktion angelagerten Radiocäsium-Ionen (90% bzw. 94%) fest an Tonminerale gebunden ist und mit zunehmender Zeit nahezu irreversible Bindungsplätze zwischen den Tonmineralschichten einnimmt. Für den Lugarer See bedeutet dies, daß ein gegenüber dem Bodensee erhöhtes Rücklösepotential von Cäsium-Radionukliden aus dem Sediment vorhanden ist, das unter Umständen eine Rücklösung in das Seewasser begünstigen kann.



**Abb. 7 Bindung von  $^{137}\text{Cs}$ -Radionukliden aus dem Tschernobylfallout in den verschiedenen Fraktionen des Sediments für mehrere Beprobungsorte.**

### **3.10.4. Zusammenfassung**

An 4 Sedimentkernen aus den Mündungsgebieten der Zuflüsse Cassarate und Vedeggio wurde die Tiefenverteilung der Radionuklide  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{137}\text{Cs}$  untersucht. An den 2 uferferneren Sedimenten können 2 Maxima der spezifischen Cäsiumaktivität den Einträgen aus dem Tschernobyl-Fallout ( $^{134}\text{Cs}$  und  $^{137}\text{Cs}$  in 6 bis 8 cm Tiefe) und aus dem Fallout aus atmosphärischen Kernwaffentests (nur  $^{137}\text{Cs}$  in 26 bis 31 cm Tiefe) zugeordnet werden. Ein relativer Anteil von 17% bis 26% des Cäsiums aus dem Tschernobyl-Fallout ist nicht an die mineralische Sedimentfraktion gebunden. Damit besteht die Möglichkeit der Rücklösung dieser nicht irreversibel festgelegten Radionuklide. Die aktuellen  $^{137}\text{Cs}$ -Inventare aus dem Tschernobyl-Fallout liegen um mehr als Faktor 3 über den Inventaren des direkten Eintrags über die Wasseroberfläche im Mai 1986. Dies bedeutet, daß über die Zuflüsse ständig Radiocäsium eingetragen wird.

Im Vergleich zu Sedimenten aus dem Bodensee ist die spezifische  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität in den obersten Sedimentschichten des Lugarer Sees um Faktor 10 erhöht. Das heißt, daß in den Lugarer See Material von im Vergleich zum Bodensee relativ hoher Aktivität über die Zuflüsse eingetragen wird. Auch die spezifische Aktivität des Maximums der Tiefenverteilung der Sedimente des Lugarer Sees, das Cäsium aus dem Tschernobyl-Fallout enthält, ist um Faktor 3 bis 5 höher als bei Sedimenten aus dem Bodensee.

### **3.10.5. Ausblick auf die Fortführung des Projekts**

Um genauere Kenntnisse über die Einschwemmung von Radionukliden in den See und über die darin stattfindenden Transportvorgänge zu erhalten, ist eine größere Anzahl von ufernahen und uferfernen Beprobungspositionen notwendig. Es müssen längere Bohrkerne genommen werden, damit das Kernwaffenmaximum an allen Positionen erfasst wird und damit die Bestimmung des Gesamtinventars und der Sedimentationsraten möglich wird.

Zum Verständnis des  $^{137}\text{Cs}$  Austausches zwischen Wasser, Schwebstoffen und Sediment, sollen in Wasserproben die spezifische Aktivität des  $^{137}\text{Cs}$  und die Konzentration der konkurrierenden Ionen gemessen werden.

Weiterhin sollen neben den See-Sedimenten auch Fluß-Sedimente gemessen werden, die Aufschluß über den Transport des  $^{137}\text{Cs}$  geben.

Die Methodik und die Auswahl der Messungen hat das Ziel, Ergebnisse mit Modellierungen verschiedener Autoren vergleichen zu können.

Das Projekt wird 1995 fortgeführt.

### **3.10.6. Danksagung**

Unser Dank gilt dem Laboratorio Studi Ambientali, Sezione Protezione Aria e Acque und Dr. Alberto Barbieri, die uns die Sedimentkernentnahme mit dem Forschungsschiff "Cyclope" ermöglichen, sowie dem Institut für Seenforschung und Fischereiwesen der Landesanstalt für Umweltschutz in Langenargen, Deutschland, für die Unterstützung.

Die vorliegende Arbeit wurde mit Mitteln aus dem Forschungsvertrag 108685 der GRD, AC-Laboratorium Spiez teilfinanziert. Es handelt sich um eine Zusammenfassung aus dem entsprechenden Jahresbericht /8/.

### **3.10.7. Literaturverzeichnis**

- /1/ Czarnecki, J., Cartier, F., Honegger, P., Zurkinden, A.: Bodenverstrahlung in der Schweiz aufgrund des Reaktorunfalls in Chernobyl, in: Radioaktivitätsmessungen in der Schweiz nach Tschernobyl und ihre Wissenschaftliche Interpretation, Band I, Universität Bern, 1986.
- /2/ Santschi, P.: The Self-Cleaning Capacity of Surface Waters after Radioactive Fallout, Environ. Sci. Technol. 1990, 24, 519-527.
- /3/ Kaminski, S.: Radiocäsium aus dem Tschernobyl-Fallout im Bodensee, gwf Wasser Abwasser, 132 (1991) Nr. 12.
- /4/ Robbins, J.A., G. Lindner, W. Pfeiffer, J. Kleiner, H. H. Stabel, P. Frenzel: Epilimnetic scavenging and fate of Chernobyl radionuclides in Lake Constance, Geochim. Cosmochim. Acta 56, p. 2339-2361, 1992.
- /5/ Kaminski, S.: Verteilung von Radionukliden aus dem Tschernobyl-Fallout in Wasser und Sedimenten des Bodensees, Diplomarbeit, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, 1990.
- /6/ Niessen F.: Sedimentologische, geophysikalische und geochemische Untersuchungen zur Entstehung und Ablagerungsgeschichte des Lugarer Sees, Zürich, 1987.
- /7/ Klenk, Th.: Horizontale und vertikale Verteilung von Cäsium-Radionukliden in den Sedimenten des Bodensee-Obersees, Diplomarbeit, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, 1993.
- /8/ Miller, R., Klenk, Th., Zibold, G., Klemt, E.:
  - I) Tiefenverteilung und Transfer Boden-Pflanze von Cäsium-Radionukliden in Waldgebieten im südlichen Voralpengebiet und Vergleich zum nördlichen Voralpengebiet.  
und
  - II) Einschwemmung von Cäsium-Radionukliden in den Lugarer See und Vergleich zum Bodensee.  
Weingarten, 1994.  
Abschlußbericht Vertrag 108685, GRD, AC-Laboratorium Spiez, 3700 Spiez

## 3.11. RADIOAKTIVITÄT IN DEN LEBENSMITTELN

H. Völkle <sup>1)</sup>, C. Bajo <sup>2)</sup> und U. Vögeli <sup>3)</sup>

<sup>1)</sup> Sektion Überwachung der Radioaktivität, Ch. du Musée 3, 1700 FRIBOURG

<sup>2)</sup> Kantonales Laboratorium Aargau, Kunsthausweg 24, 5000 AARAU

<sup>3)</sup> Kantonales Laboratorium Bern, Muesmattstr. 19, 3000 BERN 9

### 3.11.1. Zusammenfassung

An der Radioaktivitätsüberwachung der Lebensmittel sind die kantonalen Laboratorien sowie Messstellen des Bundes beteiligt. In den Hauptnahrungsmitteln war 1994 künstliche Radioaktivität, ausser Spuren von Caesium-137 und Strontium-90 (siehe Kapitel 3.12.) sowie Tritium, keine andern künstlichen Radionuklide nachweisbar. Lediglich Wildfleisch und gewissen Pilze zeigen als Folge des Reaktorunfalles von Tschernobyl und des Bombenfallout immer noch teilweise erhöhte Caesium-Werte, zum Teil mit abnehmender Tendenz. Infolge der geringen Konsumraten führen diese Aktivitäten nicht zu nennenswerten Strahlendosen. Die künstliche Radioaktivität in Lebensmitteln verursachte 1994 im Landesdurchschnitt Strahlendosen von einigen Tausendsteln mSv.

### 3.11.2. Messprogramm <sup>1)</sup>

Die Radioaktivität der Lebensmittel wird in Zusammenarbeit zwischen Kantonalen Laboratorien und Bundesstellen (BVET, IRA, PSI, AC-Lab, BAG etc.) mit dem Ziel überwacht, 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, Wildpilze, und Fische (z.B. Luganersee) sowie gezielt bestimmte importierte Lebensmittel (z.B. Wildfleisch).

In der Nahumgebung der Kernanlagen erfolgen die Messungen gemäss den jeweiligen, mit der HSK abgesprochenen Überwachungsprogrammen (siehe Kap. 4).

### 3.11.3. Ergebnisse der Überwachung

Aus der folgenden Zusammenfassung geht hervor, dass an künstlicher Radioaktivität in Lebensmitteln, nebst Strontium-90 und Tritium, lediglich noch die Nuklide Caesium-134 und Caesium-137 nachweisbar sind.

---

<sup>1)</sup> Zur neuen Strahlenschutzverordnung (StSV) insbesondere was die Überwachung der Radioaktivität der Lebensmittel betrifft und die neuen Toleranz- und Grenzwerte für Radionuklide in Lebensmitteln sei auf Kap. 1.1 verwiesen.

Fig. 1: Cs-137 IN DER KUHMILCH ALPENNORDSEITE

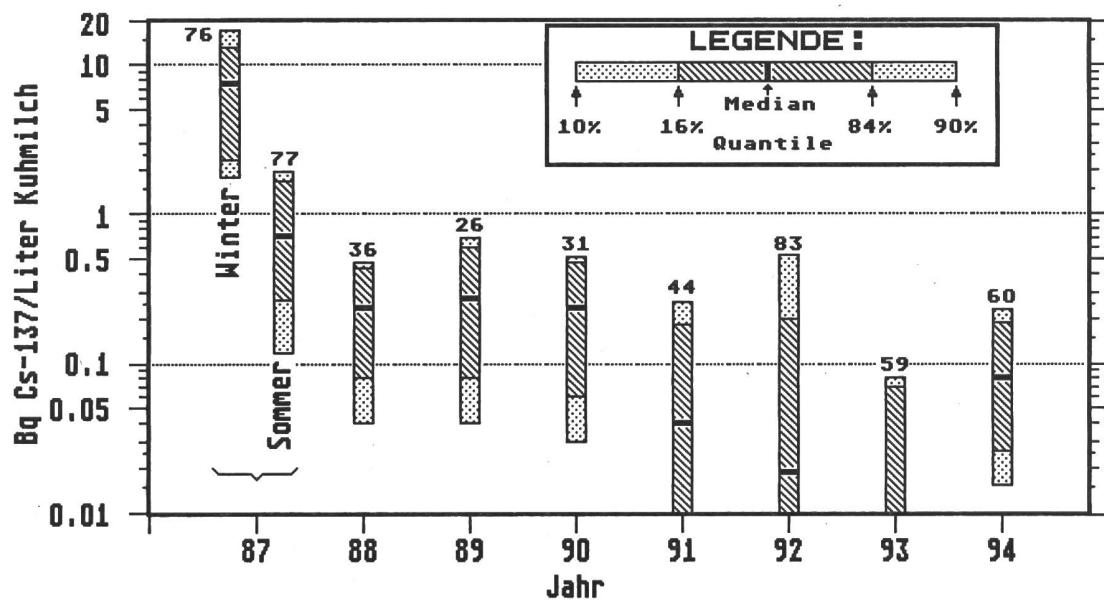
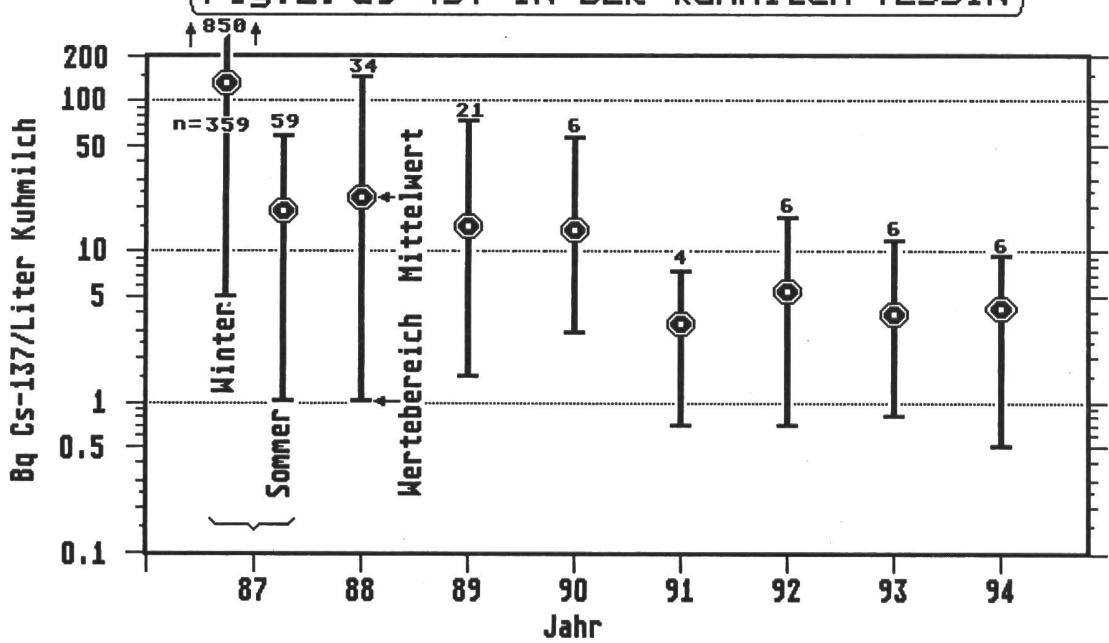


Fig. 2: Cs-137 IN DER KUHMILCH TESSIN



Seit Oktober 1994 gelten gemäss StSV und FIV in der Schweiz Toleranz- und Grenzwerte für Radionuklide in Lebensmitteln (siehe Kap. B.1.1). Dabei ist zu beachten, dass nur der Grenzwert als Strahlenschutz-Limite zu betrachten ist, während der Toleranzwert ein reines Qualitätskriterium darstellt. Der Konsum eines Lebensmittels, das über dem Toleranzwert liegt, ist somit vom radiologischen Standpunkt aus unbedenklich.

**a) Hauptnahrungsmittel: Milch, Getreide und Fleisch**

Meist werden die Milchproben als Milchpulver gemessen und die Resultate durch Multiplikation mit einem Faktor 8.1 auf Frischmilch umgerechnet, entsprechend einem durchschnittlichen Trockensubstanzgehalt der Milch von 12.3 Gew.-%. Gesamthaft war die künstliche Radioaktivität 1994 in der Milch tief wie aus dem Überblick in Tab. 1 zu entnehmen ist, auch wenn eine Probe knapp über dem seit Oktober 1994 gültigen Toleranzwert liegt. Von den Bündner Südtälern (siehe Fig. 3) sind nur die Proben aus dem Misox und dem Bergell ähnlich erhöht wie jene aus dem Tessin. Das Puschlav und das Calancatal weichen dagegen nicht von den Werten der Alpennordseite ab. Der zeitliche Verlauf der Messwerte der Alpennordseite, des Tessins, des Misox und Bergell sind in Fig. 1, 2 und 3 dargestellt. Bezuglich Strontium-90, siehe auch Kap. 3.12.

Die mittlere Kalium-40-Aktivität (natürlich) der Milch von rund 50 Bq/Liter entspricht einem gesamten Kalium-Gehalt von etwa 1.6 g/Liter.

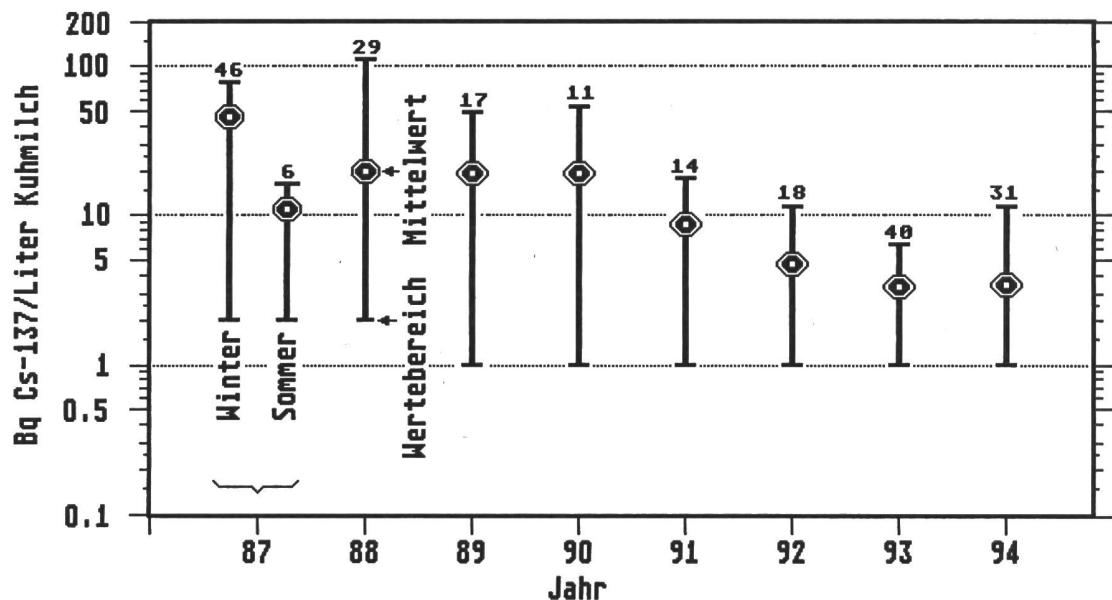
**Tab. 1: Radionuklide in Milch, 1994**

Region	Bq/Liter Cs-137				Bq/Liter Sr-90			
	n	Min	Mittelwert	Max	n	Min	Mittelwert	Max
Alpennordseite	60	0.016 <sup>1)</sup>	0.08 <sup>2)</sup>	0.23 <sup>3)</sup>	29	0.03	0.075	0.16
Mürren/BE	1	--	--	< 0.09	1	--	0.06	--
Tessin	6	0.5	4.1	9.5	6	0.24	0.35	0.48
Misox, Bergell	31	1	3.8	12	--	--	--	--
Davos/GR <sup>4)</sup>	2	0.7	--	1.2	2	0.41	--	0.60

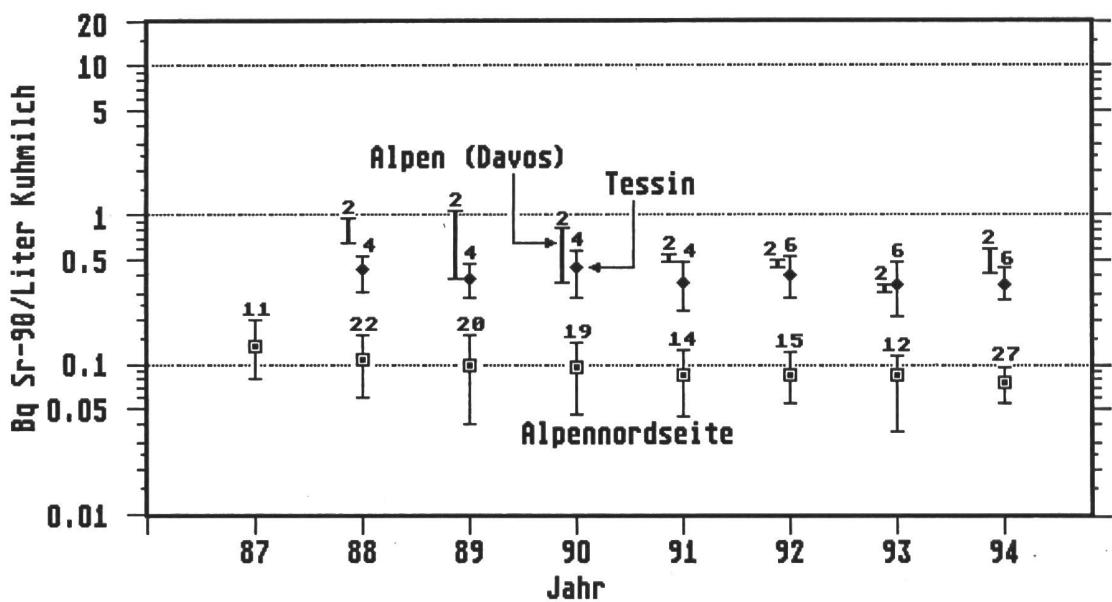
1) 10% Quantil      2) Median      3) 90% Quantil      4) nur Proben aus dem Berggebiet (Davos-Stillberg)

Getreidemischproben wurden durch die Eidg. Getreideverwaltung in den folgenden Regionen erhoben: 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. Die dreizehn 1994 untersuchten Proben ergaben alle weniger als 0.8 Bq Caesium-137/kg bzw. Bq Caesium-134/kg sowie zwischen 0.33 und 0.54 Bq Strontium-90/kg (siehe auch Kap. 3.12.), wobei keine signifikanten Unterschiede zwischen den Regionen erkennbar sind.

**Fig. 3: Cs-137 IN DER KUHMILCH MISOX UND BERGELL/GR**



**Fig. 4: Sr-90 IN DER KUHMILCH**



Die Konzentration des natürlichen Kalium-40 im Getreide lag im Durchschnitt bei  $124 \pm 12$  Bq/kg, entsprechend einem gesamten Kaliumgehalt von 4 g/kg.

23 Proben von verschiedenen einheimischen und importierten Getreidearten bzw. Getreideprodukten, ebenfalls untersucht durch das Kantonale Laboratorium Zürich, ergaben durchwegs Caesium-137-Werte unter 2.5 Bq/kg.

39 durch die Kantonale Laboratorien BS, TI und GR untersuchte Proben von Kuh- und Schweinefleisch, sowie Schinken-, Speck-, Coppa-, Salami-, und Bündnerfleisch ergaben sowohl für Caesium-137 wie auch für Caesium-134 durchwegs weniger als 2 Bq/kg.

**b) Wild**

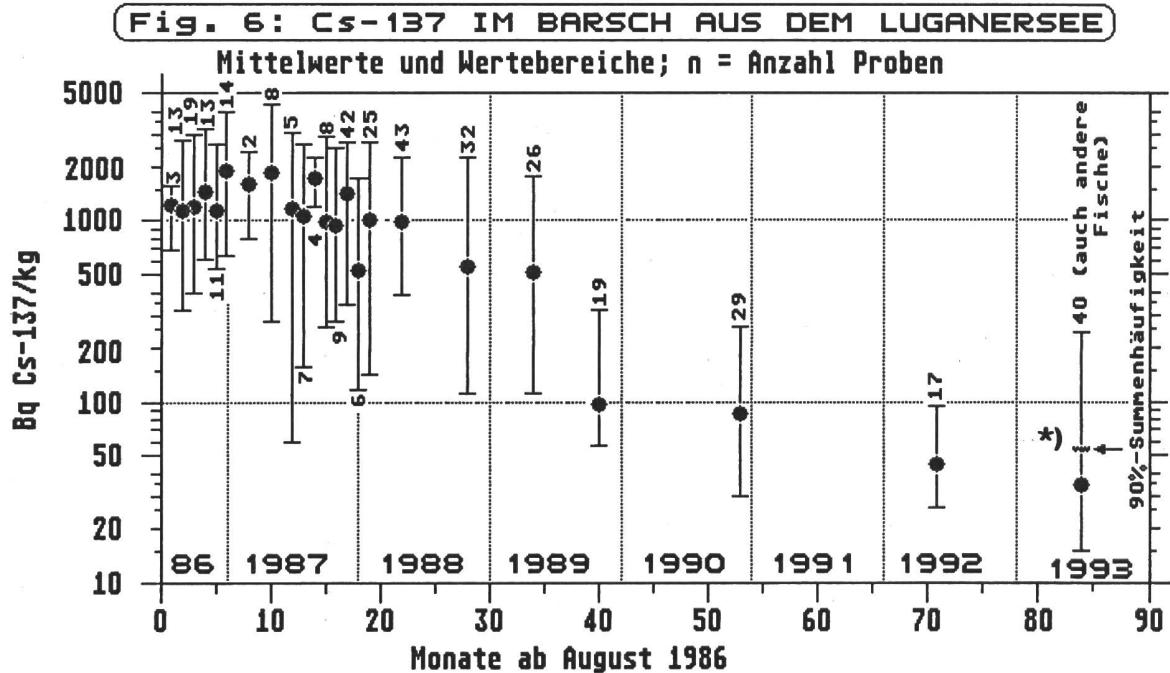
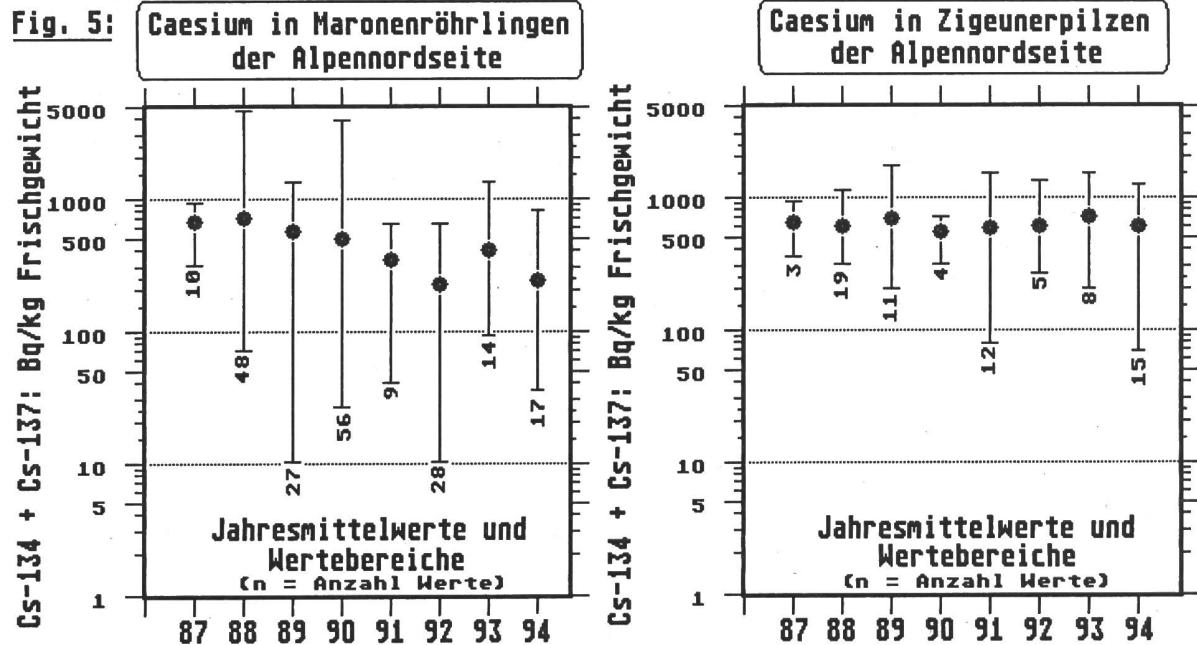
1994 wurden von den Grenztierärzten im Auftrag des Bundesamtes für Veterinärwesen (BVET) an der Grenze 43 Proben von importiertem Wild für die Radioaktivitätsmessung erhoben und durch die kantonalen Labors ZH, BS und der Urkantone untersucht. Sie ergaben die Häufigkeitsverteilung gemäss Tabelle 2.

Gemäss StSV und FIV gilt seit dem 1. Oktober 1994 für Caesium-134 und -137 in Wildfleisch und Wildpilzen ein Grenzwert von 1250 Bq/kg, sowie ein Toleranzwert von 100 Bq/kg; auf den 1. Juli 1995 wurde der Toleranzwert für Wildfleisch und Wildpilze, in Anlehnung an die entsprechenden EU-Vorschriften, neu auf 600 Bq/kg festgelegt.

**Tab: 2: Caesium-137 in importiertem Wildfleisch in Bq/kg, 1994**

Bq Cs-137/kg:	< 10	10-50	50-100	100-200	200-500
Tierart	Anzahl	Anzahl	Anzahl	Anzahl	Anzahl
Reh	7	7	3	2	2
Hirsch	2	5	0	0	0
Gemse	0	1	2	1	0
Wildschwein	2	0	0	0	0
Hase	1	1	0	0	0
Ren	0	0	0	1	1
Elch	1	0	0	0	2
Total	13	14	5	4	5

81 % (1993: 80 %; 1992: 70 %; 1991: 60 %) der Caesium-137-Werte lagen unter 100 Bq/kg. Es wurden keine Werte über 500 Bq/kg festgestellt. Bei einer durchschnittlichen Konsumrate von Wildfleisch in der Schweiz von höchstens 1 kg/Jahr ist der Dosisbeitrag durch Wildkonsum unbedeutend.



**(\*) Bemerkung:**

Für die Messungen von 1993 wurde für die Berechnung des Mittelwertes ein Ausreißer von 249 Bq/kg (Barsch) nicht mitberücksichtigt. In dieser Stichprobe ( $n = 40$ ) sind nebst Barsch ( $n = 6$ ) auch andere Fischarten enthalten. Im Mittel unterscheiden sich die Barsche im Caesium-137-Gehalt nicht von den andern Fischarten.

Gemäss Angaben des Bundesamtes für Veterinärwesen (BVET) werden in unserem Lande pro Jahr (1992) rund 5180 Tonnen Wildfleisch verzehrt, davon wird rund 70 % importiert, d.h. rund 27 % aus Neuseeland, 26 % aus Österreich, 15 % aus Italien, 10 % aus Deutschland, je 6 % aus Frankreich und Argentinien und der Rest aus verschiedenen andern Ländern. Das Herkunftsland ist dabei nicht immer identisch mit dem Ursprungsland. Vom Importwild sind je rund 38 % Hirsch- bzw. Rehfleisch, 2.7 % Gems-, 6.8 % Hasen-, 1.4 % Wildschwein-, 7.6 % Straussen- und 0.3 % Antilopenfleisch.

Einheimisches Wild wird meist von den Jägern und ihren Bekannten oder Angehörigen selbst verzehrt bzw. direkt weiterverkauft und gelangt nur zur einem kleinen Teil in den Handel. 1992 wurden gemäss BVET in unserem Lande 5993 Hirsche, 17'840 Gemsen, 40'434 Rehe, 1287 Wildschweine, 5286 Hasen, 7129 Murmeltiere und 64'722 Stück Federwild geschossen.

c) *Wildpilze*

**Tab. 3: Caesium-137 in einheimischen Wildpilzen, 1994**  
(bezogen auf Frischgewicht)

Pilzart	Region	Anzahl	Mittel Bq/kg	Minimum Bq/kg	Maximum Bq/kg
Maronenröhrlinge	Tessin	3	1320	810	1720
Maronenröhrlinge	übrige Schweiz	17	240	33	810
andere Röhrlinge	Tessin	5	440	100	760
andere Röhrlinge	übrige Schweiz	9	72	< 2	270
Zigeunerpilze	übrige Schweiz	15	490	70	1230
Pfifferlinge	übrige Schweiz	6	220	1	660
Steinpilze	übrige Schweiz	12	27	1.3	70
übrige Pilze	Tessin	14	410	6	2770
übrige Pilze	übrige Schweiz	48	23	< 0.2	270

Viele einheimische Wildpilze zeigen immer noch erhöhte Caesium-137-Werte, die zum Teil den neuen, seit Oktober 1994 gültigen, Toleranzwert<sup>2)</sup> von 100 Bq/kg Frischgewicht massiv überschreiten und sogar höher liegen als der Grenzwert von 1'250 Bq/kg. In der Tabelle 3 sind die Messungen zusammengestellt. Die Caesium-Aufnahmefähigkeit der Pilze ist stark von der Art abhängig. Innerhalb einer Art gibt es grosse regionale Unterschiede (bis Faktor 10), wobei die höchsten Werte in den Proben aus dem von Tschernobyl-Fallout stärker getroffenen Tessin zu finden sein. Im Kanton Bern stammt immer noch ein bis zwei Drittel des Caesium-137-Gehaltes der Pilze vom Kernwaffenausfall der 50er- bis 70er Jahre. Im Kanton Tessin und im Aargau besteht der Caesium-137-Anteil praktisch nur noch aus Tschernobyl-Fallout. Wie

2) Seit dem 1. Juli 95 gilt für Caesium-134 und -137 in Wildpilzen, in Anlehnung an die Vorschriften der EU, ein Toleranzwert von 600 Bq/kg.

Fig. 5 zeigt nimmt der Caesium-137-Gehalt in den stark belasteten Maronenröhrlingen und Zigeunerpilzen nur sehr langsam ab. Es ist deshalb bei diesen Pilzsorten auch in den nächsten Jahren nicht mit einem starken Rückgang der Caesium-137-Aktivität zu rechnen.

Berücksichtigt man die geringen Konsumraten von frischen Wildpilzen, dann sind die Strahlendosen durch Pilzkonsum unbedeutend.

Von den Kantonalen Laboratorien Genf, Waadt und Zürich wurden 11 Proben von importierten Pilzen untersucht; sie ergaben - mit Ausnahme der Maronenröhrlinge - durchwegs Werte unter 50 Bq/kg Frischgewicht; bei den drei Proben von Maronenröhrlingen lagen die Werte zwischen 170 und 270 Bq Caesium-137/kg Frischgewicht.

**d) *Fische aus dem Lugarnersee***

1993/94 wurden, in Zusammenarbeit mit dem Kantonsveterinär und dem Kantonalen Laboratorium des Tessins, 40 weitere Proben von verschiedenen Fischen aus dem Lugarnersee, dem nach Tschernobyl meistbelasteten See der Schweiz, auf Radioaktivität untersucht. Gegenüber 1992 zeigen diese Proben einen weiteren Rückgang mit einem Medianwert von 31 Bq Caesium-137/kg und den 10 - 90 % Quantilen von 15 resp. 53 Bq Caesium-137/kg. Der Verlauf der Caesium-137-Werte in den Fischen aus dem Lugarnersee ist auf Fig. 6 graphisch dargestellt. Da auch das Caesium-134 miterfasst wurde, lässt sich bestätigen, dass das Caesium-137 der Fische praktisch ausschliesslich vom Reaktorunfall in Tschernobyl stammt.

15 weitere Proben aus dem Langensee ergaben Caesium-137-Werte von durchschnittlich 10 Bq/kg.

**e) *Weitere Lebensmittel und diverse Proben***

21 Proben von importierten Haselnüssen und 3 Proben von importierten Pistazienkernen, gemessen durch das Kantonale Laboratorium der Urkantone, sowie jenes des Kantons Thurgau ergaben durchwegs Caesium-137-Werte unter 20 Bq/kg. 40 Proben von importierten aromatischen Kräutern, gemessen durch das Kantonale Laboratorium Genf ergaben Caesium-137-Werte zwischen < 1 und 42 Bq/kg; im Mittel 4.6 Bq/kg, die 10-90 % Quantile lagen bei 0.7 bzw. 23 Bq/kg. Vom Kantonalen Labor Zürich wurde 11 Proben von Säuglingsnahrung untersucht; sie zeigten durchwegs weniger als 0.8 Bq Caesium-137/kg.

In Milchproben und im Wasseranteil von Gemüseproben aus Niederwangen/BE wurden auch 1994 Tritiumbestimmungen durchgeführt (Siehe Kap. 5.4). Sie ergaben für die Milch Werte zwischen 12 und 184 Bq/l, für das Gemüse solche zwischen 21 und 200 Bq/l.

Im Berichtsjahr wurden auch weitere Proben von handelsüblichen Mineralwässern auf natürliche Alpha-Strahler untersucht (siehe Kap. 3.8.), um die Einhaltung der neuen Grenzwerte gemäss StSV und FIV zu überprüfen. Die Erhebungen ergaben in einem Fall Werte über der Limite. Es ist damit zu rechnen, dass weitere Mineralwässer über dem Grenzwert von 1 Bq/l für natürliche Alpha-Strahler liegen, deshalb werden 1995 weitere Solche Untersuchungen vorgenommen.

Nach dem Absturz eines Cessna-Flugzeuges in den Bodensee Anfangs Februar 1994, bei dem aufgrund von Gerüchten eine Caesium-137-Quelle an Bord vermutet wurde, untersuchte das Kantonale Laboratorium Thurgau 38 Wasserproben aus dem See (Trinkwasserfassungen); sie ergaben alle weniger als 2 Bq Caesium-137/Liter.

### **3.11.4. 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 Aktivitätssmesswerte heute meist unter der Messgrenze liegen und da die wenigen stärker belasteten Lebensmittel in der täglichen Nahrung eine untergeordnete Rolle spielen. Die Strahlendosis durch diese über die Nahrung aufgenommene künstliche Radioaktivität ist daher sehr klein: Für Personen mit durchschnittlichen Ernährungsgewohnheiten lag die Ingestionsdosis durch Caesium-137 (Caesium-134 hat praktisch keine Bedeutung mehr) 1994 bei 0.002-0.003 mSv pro Jahr. Die Strahlenexposition durch Strontium-90 in der Nahrung (siehe auch Kap. 3.12.) dürfte 1994 aufgrund der Untersuchungen von Wirbelknochen bei etwa 0.002 mSv pro Jahr liegen. Gesamthaft dürften die Dosisbeiträge durch anthropogene Radionuklide im Körper heute bei etwa 0.006 mSv/Jahr liegen.

Im Vergleich dazu liegen die jährlichen Dosen durch die über die Nahrung aufgenommenen natürlichen Radionuklide im menschlichen Körper bei durchschnittlich 0.36 mSv, wovon rund 0.18 mSv auf Kalium-40 entfällt. Der Rest stammt vom Rubidium-87 (0.006 mSv), den kosmogenen Radionukliden H-3 (Tritium), Beryllium-7, Kohlenstoff-14, Natrium-22 (0.015 mSv) sowie Uran, Radium und Thorium (0.04 mSv) bzw. Blei-210 und Polonium-210 (0.12 mSv) [Quelle: UNSCEAR-Bericht 1982]. 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 effektiven Dosis von 1.6 mSv/Jahr.

### **Quellen**

Die in diesem Bericht enthaltenen Ergebnisse sind den Berichten der kantonalen Laboratorien für 1994 sowie den internen Berichten der übrigen Laboratorien entnommen. All' diesen Stellen sei für das Überlassen der Daten und die wertvolle Mitarbeit bestens gedankt.

## 3.12. MESURES DE STRONTIUM-90 DANS LE SOL, L'HERBE, LE LAIT, LE FROMENT, LES VERTEBRES ET LES DENTS

**F. Carbone, J.-J. Geering, J.-F. Valley**

Institut de radiophysique appliquée  
Centre Universitaire, 1015 LAUSANNE

### 3.12.1. Résumé

*En 1994, les déterminations de strontium-90 effectuées dans le cadre de la surveillance de la radioactivité en Suisse ont porté sur des échantillons de sol, d'herbe, de lait, de froment, ainsi que de vertèbres humaines et de dents de lait. Les résultats restent comparables à ceux mesurés 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 du même ordre de grandeur que les années précédentes.*

### 3.12.2 Introduction

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].

Le strontium-90 présent actuellement dans l'environnement provient essentiellement des retombées des essais nucléaires atmosphériques des années soixante.

Comme les années précédentes, les déterminations de strontium-90 ont porté, en 1994, 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 et Leibstadt). De plus, des échantillons de sol, d'herbe et de lait ont été collectés sur les sites de plaine suivants, éloignés de toute source de contamination: Arenenberg (TG), Coire (GR), Grangeneuve (FR), Fahrni (BE), Diesse (BE), Lausanne (VD), Finges (VS), 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 à Rossberg (ZH), Saignelégier (JU), Beurnevésin (JU) et Vendlincourt (JU). Des échantillons de froment provenant de chacune des zones de production de Suisse ont également été analysés.

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

### 3.12.3. Résultats de la surveillance

A titre de comparaison, les résultats de la surveillance du strontium-90 en 1993 ont également été reportés.

Les déterminations de strontium-90 dans le sol, l'herbe et le lait des sites de Fahrni, Diesse et Mürren ont été effectuées par le laboratoire AC de Spiez (cf. chapitre B.3.14). Dans le lait de Mühleberg, elles ont été faites par le laboratoire cantonal de Berne. Les résultats de mesure du strontium-90 des laits de Sissach, Rasa, Rodi, Sessa, Saignelégier, Beurnevésin et Vendlincourt ont été fournis par le laboratoire cantonal de Bâle-Ville.

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 1994 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.

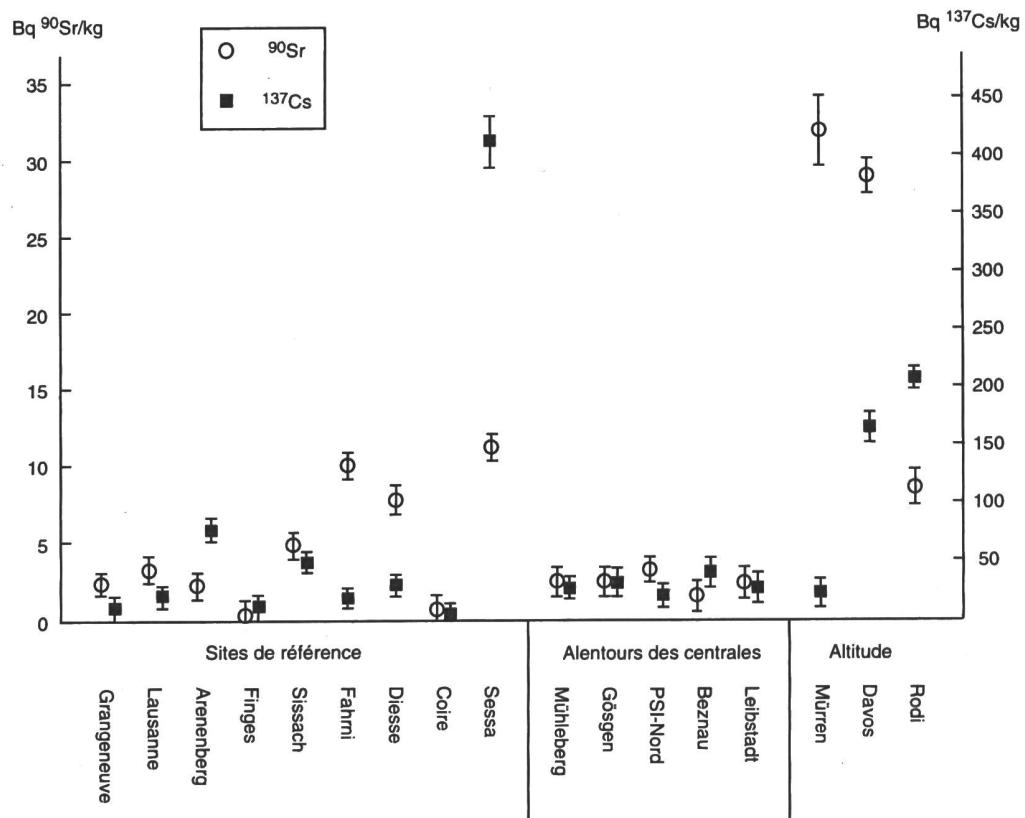
Dans l'ensemble, les résultats de mesure restent comparables à ceux des années précédentes. Les sites en altitude présentent des activités plus élevées qu'en plaine. Comme précédemment, on constate d'importantes fluctuations de l'activité du strontium-90 dans l'herbe d'une saison à l'autre, pouvant être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

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

	1993	1994
Sites proches des centrales nucléaires et du PSI	2,3 - 2,9	1,5 - 3,2
Sites de plaine	0,4 - 6,3	0,3 - 11,2
Sites en altitude		
Davos (GR)	47,1 ± 1,4	28,9 ± 0,7
Mürren (BE)	44,7 ± 1,4	31,9 ± 2,2
Rodi (TI)	5,5 ± 0,4	8,5 ± 0,4

\* matière sèche

**Figure 1. Concentration radioactive du strontium-90 et du césium-137 dans les sols en 1994**



La figure 1 présente les activités en strontium-90 et en césium-137 des sols individuels. Le rapport  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  est en général inférieur à 15 à part quelques valeurs élevées observées tant en plaine qu'en montagne. Le rapport  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  dans les retombées des années soixante est estimé à 1,6 [3], ces deux nucléides ne subissant pas de fractionnement au moment de l'explosion. Les valeurs plus élevées de ce rapport mesurées actuellement dans le sol s'expliquent par la vitesse de migration du strontium plus grande que celle du césium. Comme le montre la figure 1, l'activité en strontium-90 du sol au voisinage des sites de centrales nucléaires ne diffère pas des autres sites de plaine (cf. également 3.7.4, fig. 1).

Comme précédemment, l'activité en strontium-90, de même que celle du césium-137 de l'herbe de Sessa, situé dans le Sottoceneri particulièrement touché par l'accident de Tchernobyl, est plus élevée que dans les autres sites de plaine, où l'activité du césium-137 est en général en-dessous de la limite de détection.

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

		1993	1994
Sites proches des centrales nucléaires et du PSI		2,7 - 7,6	1,2 - 7,5
Sites de plaine		0,6 - 5,5	0,9 - 11,2
Exception: Sessa		22,3 ± 0,4	26,8 ± 0,5
Sites en altitude			
Davos (GR)	été	53,8 ± 0,3	42,4 ± 0,5
	automne	10,6 ± 0,3	15,3 ± 0,4
Mürren (BE)		11,4 ± 0,2	20,0 ± 1,4
Rodi (TI)		7,4 ± 0,2	9,1 ± 0,2

***Froment***

Les activités en strontium-90 mesurées en 1994 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 0,33 et 0,54 Bq/kg et confirment les valeurs mesurées les années précédentes.

***Lait***

Le tableau 3 présente les résultats des déterminations de strontium-90 dans le 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 des autres points de prélèvements en plaine.

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 présentent des activités en strontium-90 dans le lait plus élevées, à l'exception de Mürren, où l'activité de ce nucléide correspondait, en 1994, plutôt à un lait de plaine, alors que dans l'herbe cette activité était typique d'une région de montagne.

Remarquons que l'activité du césium-137 est légèrement plus élevée dans le lait de montagne, alors que dans les laits de plaine, elle reste, actuellement, le plus souvent en-dessous de la limite de détection.

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

		1993		1994	
		0,07	- 0,10	0,04	- 0,10
Sites proches des centrales nucléaires et du PSI	moyenne	0,08	$\pm$ 0,01	0,07	$\pm$ 0,01
Sites de plaine		0,01	- 0,20	0,03	- 0,16
	moyenne	0,08	$\pm$ 0,04	0,07	$\pm$ 0,03
Exception: Sessa (TI)		0,45	$\pm$ 0,05	0,42	$\pm$ 0,02
Canton du Jura		0,09	- 0,14	0,07	- 0,12
	moyenne	0,10	$\pm$ 0,02	0,09	$\pm$ 0,01
Sites en altitude					
Davos (GR)	été	0,46	$\pm$ 0,02	0,60	$\pm$ 0,03
	automne	0,38	$\pm$ 0,02	0,41	$\pm$ 0,02
Mürren (BE)	été	0,53	$\pm$ 0,01	0,06	$\pm$ 0,01
Rasa (TI)	été	0,21	$\pm$ 0,01	0,36	$\pm$ 0,02
	automne	0,50	$\pm$ 0,03	0,37	$\pm$ 0,02
Rodi (TI)	été	0,23	$\pm$ 0,01	0,24	$\pm$ 0,01
	automne	0,24	$\pm$ 0,01	0,30	$\pm$ 0,02

### Vertèbres

Le tableau 4 présente les résultats d'analyses de strontium-90 dans les vertèbres d'adultes décédés en 1994, ainsi qu'en 1993 à titre comparatif. 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. Il se confirme que la concentration en strontium-90 dans les squelettes d'adultes en Suisse n'a pas augmenté suite à l'accident de Tchernobyl.

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

Région	Année de décès					
	1993		1994			
Tessin	0,023	$\pm$ 0,014	[4]	0,032	$\pm$ 0,007	[10]
Lausanne	0,024	$\pm$ 0,008	[9]	0,022	$\pm$ 0,005	[11]
St. Gall	0,023	$\pm$ 0,005	[7]	0,029	$\pm$ 0,005	[7]
Valais	0,029	$\pm$ 0,014	[6]	0,027	$\pm$ 0,007	[8]
Bâle	0,021	$\pm$ 0,005	[6]	0,023	$\pm$ 0,004	[9]
Zürich	0,022	$\pm$ 0,005	[8]	0,023	$\pm$ 0,006	[8]
<b>Moyenne générale</b>	<b>0,024</b>	$\pm$ 0,002	[40]	<b>0,026</b>	$\pm$ 0,002	[53]

[ ] = nombre de déterminations

D'autre part, 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 nivelingement peut s'expliquer par l'uniformisation de la production alimentaire sur l'ensemble du territoire suisse.

#### **Dents de lait**

Le tableau 5 présente, pour chaque région, les moyennes des activités en strontium-90 des dents de lait collectées en 1994, comparées à celles de 1993. Aucun effet significatif dû à l'année de naissance, l'âge des enfants, ou la région de collection n'a été constaté. Les analyses, encore peu nombreuses, de dents d'enfants nés à partir de 1986 n'ont pas permis, pour l'instant, de mettre en évidence une augmentation significative d'activité en strontium-90 due à l'accident de Tchernobyl. Il est nécessaire de poursuivre ces déterminations ces prochaines années, afin de disposer d'un plus grand nombre de dents d'enfants nés après cet accident.

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

Ville	Année de naissance	1993	Année de naissance	1994
Coire	1980-1985	0,054 ± 0,041		
Lausanne	1981-1985	0,051 ± 0,008	1981-1986	0,050 ± 0,026
Tessin	1978-1985	0,075 ± 0,022	1980-1988	0,053 ± 0,006
St. Gall	1982-1985	0,032 ± 0,030	1980-1985	0,040 ± 0,009
Valais	1977-1985	0,061 ± 0,013	1979-1988	0,053 ± 0,012
Zürich	1981-1985	0,040 ± 0,013	1981-1986	0,042 ± 0,012
	<b>Moyenne</b>	<b>0,056 ± 0,008</b>	<b>Moyenne</b>	<b>0,049 ± 0,005</b>

#### **Eaux de rejet**

Les déterminations des strontium-89 et 90 dans les eaux de rejet, effectués en 1994 sur 2 prélèvements dans chacune des centrales de Mühleberg, Gösgen, Beznau et Leibstadt, ainsi qu'au PSI, ont montré que l'activité de ces deux nucléides y est restée très faible (< 4 Bq Sr-89/litre, et ≤ 3 Bq Sr-90/litre). Ces déterminations ont été effectuées par le laboratoire AC du Groupement de l'armement à Spiez (cf. chapitre B.3.14).

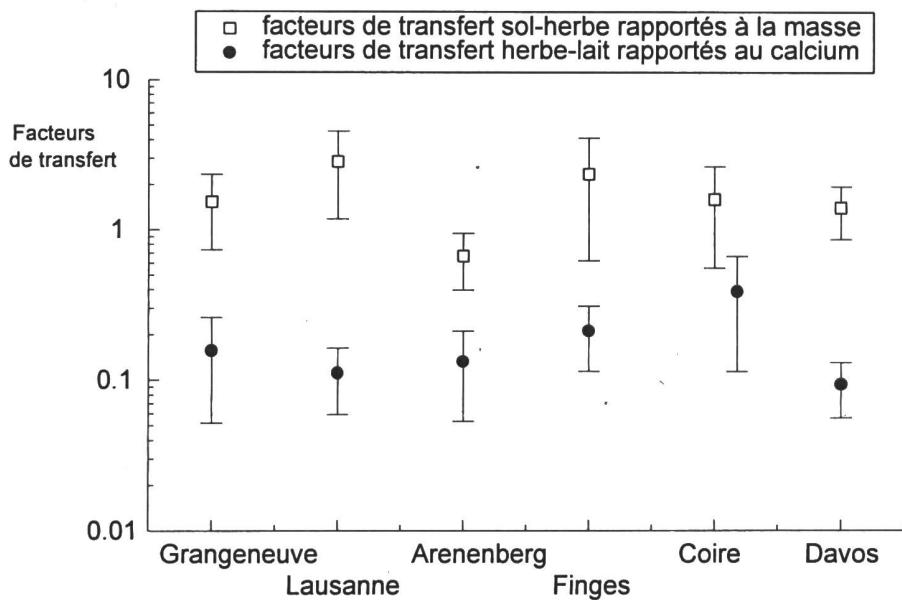
En 1994, les activités en strontium-90 mesurées dans les effluents des dépôts de Teufen et de Stein ne dépassaient pas 1,0 Bq/l et 0,30 Bq/l respectivement. Ces déterminations ont été effectuées par les laboratoires de l'EAWAG; les résultats de mesure restent comparables à ceux des années précédentes.

#### **3.12.4. Facteurs de transfert**

Les facteurs de transfert sol-herbe, rapportés à la masse, et herbe-lait, rapportés à la teneur en calcium, ont été déterminés sur les sites où des échantillons de sol, d'herbe et de lait ont été prélevés simultanément. La figure 2 présente pour chaque site les moyennes des facteurs de transfert mesurés de 1990 à 1994, ainsi que leur fluctuation statistique au niveau de confiance de 95 %. Aucune évolution en fonction du temps n'a été constatée. Les valeurs moyennes de

ces facteurs se situent vers 1,7 pour le transfert sol-herbe et vers 0,2 pour le transfert herbe-lait.

**Figure 2. Facteurs de transfert du strontium-90 dans le sol**



Les fluctuations observées entre sites de prélèvement sont imputables aux conditions météorologiques, aux types de sols, aux variétés d'herbe, à la saison de prélèvement, etc. [4].

### 3.12.5. Conclusions

Dans l'ensemble des échantillons analysés en 1994, les concentrations en strontium-90 restent comparables à celles mesurées les années précédentes. Même au Tessin, région de Suisse la plus touchée par l'accident de Tchernobyl, il n'a pas encore été possible de mettre en évidence une augmentation de la concentration de ce nucléide dans les dents d'enfants nés à partir de 1986. Dans les sols, les activités en strontium-90 sont environ 10 fois plus faibles que celles du césium-137. Comme pour le strontium-90, l'activité en césium-137 des sols de montagne est plus élevée qu'en plaine. Dans la plupart des autres échantillons (herbe, blé, etc.), le rapport  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  ne peut plus être déterminé, l'activité en césium-137 étant inférieure à la limite de détection. Les moyennes des facteurs de transfert du strontium-90 sol-herbe et herbe-lait pour 1990 à 1994 se situent respectivement vers 1,7 et 0,2. Aucune dépendance de l'année de prélèvement n'a été constatée.

## 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 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] Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects, UNSCEAR Report, United Nations Publication, New-York 1969.
- [4] 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.

### **3.13. MESURES DE PLUTONIUM DANS DES SOLS, DES SEDIMENTS, DES EAUX ET DANS L'AIR**

**T. Buchillier, J.-J. Geering, M. Kosinski, J.-F. Valley**

Institut de radiophysique appliquée  
Centre Universitaire, 1015 LAUSANNE

#### **3.13.1. Résumé**

*Les déterminations de plutonium-239/240, ainsi que celles du plutonium-238 entreprises en 1994 ont porté sur des échantillons de sols, de sédiments, d'eaux et de filtres aérosol. Les niveaux d'activité de ces nucléides sont très faibles en Suisse et du même ordre de grandeur que dans d'autres pays européens.*

#### **3.13.2. Introduction**

Les isotopes 239 et 240 du plutonium présents actuellement dans l'environnement en Suisse proviennent avant tout des essais nucléaires des années cinquante et soixante. Ces 2 nucléides ne peuvent être distingués par spectrométrie alpha; ils seront désignés dans ce texte par le terme "plutonium-239". Le plutonium-238, qui accompagne le plutonium-239, provient dans une faible mesure des retombées, mais surtout de la désintégration de plusieurs satellites au moment de leur rentrée dans l'atmosphère, à partir de 1964 [1].

La surveillance du plutonium-239 dans l'environnement est nécessaire à cause de sa radio-toxicité élevée (rayonnement alpha de haute énergie, longues périodes physique et biologique). Les déterminations de plutonium nécessitent cependant un investissement important en matériel et en temps de travail; il est donc nécessaire d'en limiter le nombre aux échantillons les plus représentatifs de l'environnement.

#### **3.13.3. Méthode de séparation chimique du plutonium**

La détermination du plutonium dans l'environnement nécessite la séparation chimique de tous les constituants de l'échantillon, ainsi que des radionuclides qui pourraient interférer dans la mesure par spectrométrie alpha du plutonium-238, 239 et 242. Ce dernier isotope est utilisé comme traceur afin de tenir compte des pertes inévitables durant la séparation chimique.

La méthode de séparation chimique sur laquelle a porté notre choix [2] comprend les étapes suivantes:

- calcination à 550° C
- adjonction d'un traceur (Pu-242)

- mise en solution des actinides dans de l'acide nitrique 8 M, suivie d'une stabilisation du degré d'oxydation du plutonium à + 4 par du nitrite de sodium, puis d'une centrifugation
- extraction du plutonium par une solution de tri-n-octylphosphine oxyde dans du cyclohexane
- extraction en retour par une solution chlorhydrique d'acide ascorbique
- coprécipitation sur du fluorure de lanthane
- dissolution dans une solution nitrique d'acide borique
- purification sur résine anionique
- électrodéposition
- comptage par spectrométrie  $\alpha$  sur des détecteurs à barrière de surface.

Cette méthode présente l'avantage de s'appliquer à tous les échantillons de l'environnement. Elle permet d'obtenir une source de plutonium très pure. La durée de la séparation chimique est d'environ 3 jours pour 4 échantillons .

#### **3.13.4. Résultats de la surveillance**

Les déterminations de plutonium effectuées à titre exploratoire dans l'environnement en 1994 ont porté sur des échantillons de sol, de sédiments, d'eaux de fleuve, ainsi que sur un filtre aérosol.

##### *Sol*

Le plutonium a été déterminé dans des sols typiques du territoire suisse prélevés en 1994 dans le cadre du plan de prélèvement pour le strontium-90. Ils représentent tant l'environnement des centrales nucléaires que des régions de plaine et d'altitude. Les résultats, rapportés au sol sec, sont présentés au tableau 1 et à la figure 1; cette dernière permet de comparer les activités en strontium-90, césium-137 et plutonium-239 des sols.

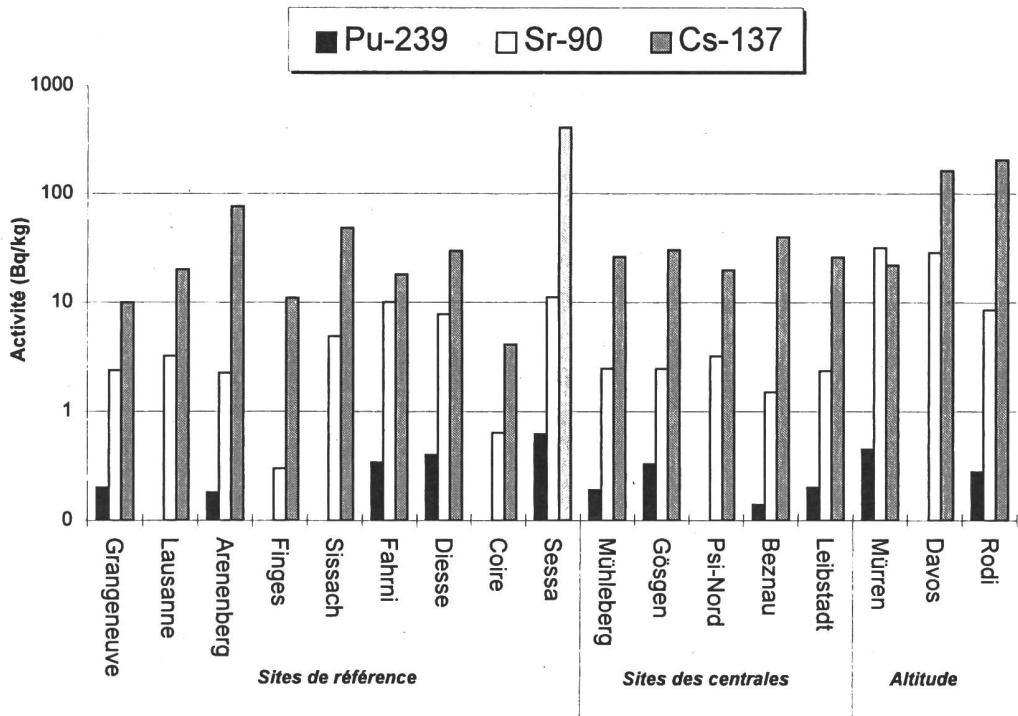
On ne constate pas de différence significative de l'activité en plutonium-239 entre les sites des centrales nucléaires et les autres points situés en plaine. A Sessa, la concentration en plutonium-239 est toutefois plus élevée, de même que celles du césium-137 et du strontium-90. L'activité du plutonium est aussi légèrement plus élevée dans les sols de montagne. Ces fluctuations de l'activité du plutonium-239 reflètent, dans la plupart des échantillons, celles du strontium-90, si bien que l'on ne peut mettre en évidence de différence significative du rapport  $^{239}\text{Pu}/^{90}\text{Sr}$  entre points de prélèvement.

**Tableau 1. Concentration en plutonium dans le sol en 1994 (couche de 0 à 5 cm)**

	Concentration (Bq $^{239}\text{Pu}/\text{kg}$ )	Rapport $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	Rapport $^{239}\text{Pu}/^{90}\text{Sr}$
<b>Centrales nucléaires:</b>			
Mühleberg	0,19 $\pm$ 0,02	0,039 $\pm$ 0,018	0,08 $\pm$ 0,02
Gösgen	0,33 $\pm$ 0,03	0,039 $\pm$ 0,012	0,13 $\pm$ 0,02
Leibstadt	0,20 $\pm$ 0,02	0,054 $\pm$ 0,020	0,09 $\pm$ 0,02
Beznau	0,14 $\pm$ 0,01	0,023 $\pm$ 0,012	0,09 $\pm$ 0,02
<b>Sites en plaine:</b>			
Grangeneuve	0,20 $\pm$ 0,02	0,046 $\pm$ 0,015	0,08 $\pm$ 0,02
Arenenberg	0,18 $\pm$ 0,02	0,040 $\pm$ 0,017	0,08 $\pm$ 0,02
Fahrni	0,34 $\pm$ 0,03	0,031 $\pm$ 0,010	0,03 $\pm$ 0,01
Sessa	0,62 $\pm$ 0,06	0,043 $\pm$ 0,013	0,06 $\pm$ 0,01
<b>Sites en altitude:</b>			
Diesse	0,40 $\pm$ 0,04	0,038 $\pm$ 0,011	0,05 $\pm$ 0,01
Mürren	0,45 $\pm$ 0,04	0,030 $\pm$ 0,008	0,01 $\pm$ 0,01
Rodi	0,28 $\pm$ 0,03	0,032 $\pm$ 0,012	0,03 $\pm$ 0,01

Lors des retombées des années soixante, le rapport  $^{239}\text{Pu}/^{90}\text{Sr}$  dans l'air était d'environ 0,02 aussi bien dans la stratosphère qu'à la surface de la terre [1]. Les valeurs plus élevées de ce rapport que nous avons mesurées dans le sol ( $0,07 \pm 0,03$ ) s'expliquent par la période plus courte du strontium-90 ainsi que par la migration en profondeur dans le sol extrêmement lente du plutonium (0,1 à 1 cm/an) [4].

**Figure 1. Concentration du plutonium-239, du strontium-90 et du césium-137 dans le sol en 1994**



De même, le rapport  $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  ( $0,04 \pm 0,01$ ) reste sensiblement constant d'un point de prélèvement à l'autre. Il est néanmoins entaché d'une fluctuation statistique de comptage élevée en raison de l'activité extrêmement faible du plutonium-238 dans les échantillons. Jusqu'en 1964, ce rapport était de 0,03 dans l'atmosphère. Il a atteint la valeur de 0,43 après l'accident de Tchernobyl et s'est stabilisé actuellement vers 0,09 [5].

### **Sédiments**

Les résultats sont présentés au tableau 2 et à la figure 2. L'activité du plutonium-239 dans les sédiments est environ 10 fois plus faible que dans les sols, tandis que le rapport  $\text{Pu-238}/\text{Pu-239}$  est sensiblement le même, caractéristique des retombées. On ne constate pas d'augmentation significative de l'activité de ce nucléide en aval des centrales nucléaires.

**Tableau 2. Concentration en plutonium-239 dans des sédiments en 1994**

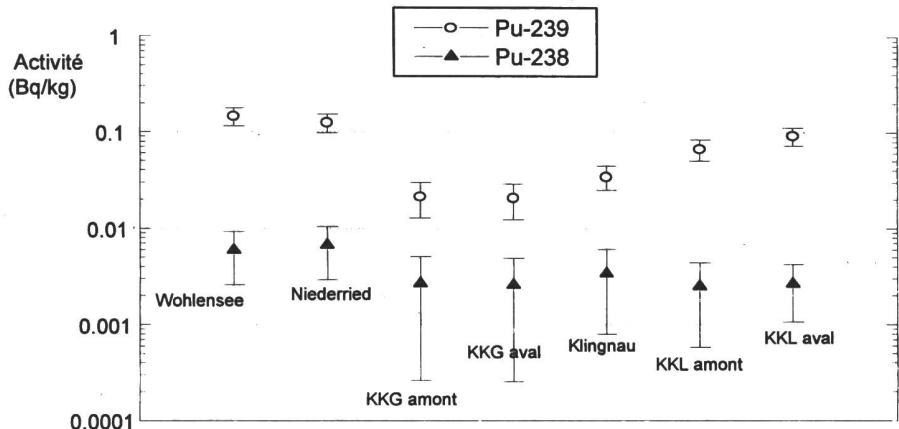
	<b>Concentration</b> (Bq $^{239}\text{Pu}/\text{kg}$ )	<b>Rapport</b> $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$
<b>Centrales nucléaires:</b>		
<b>Site de Mühleberg</b>		
Lac de Wohlen	0,15 ± 0,02	0,04 ± 0,02
Lac de Niederried	0,13 ± 0,01	0,05 ± 0,02
Lac de Bienna (*)	0,24 ± 0,03	0,03 ± 0,01
<b>Site de Gösgen</b>		
Aare en amont de la centrale	0,021± 0,004	0,13 ± 0,08
Aare en aval de la centrale	0,021± 0,004	0,13 ± 0,08
<b>Site de Beznau</b>		
Lac de Klingnau	0,035± 0,005	0,10 ± 0,05
<b>Site de Leibstadt</b>		
Rhin en amont de la centrale	0,067± 0,008	0,04 ± 0,02
Rhin en aval de la centrale	0,093± 0,010	0,03 ± 0,01

(\*) Sédiment prélevé le 31.5.94 entre 10 et 17 cm de profondeur, déposé entre 1972 et 1978.

Les activités les plus élevées ont été mesurées dans le lac de Wohlen, en amont de la centrale de Mühleberg, et dans le lac de Bienna. Dans ce dernier cas, des mesures complémentaires de plutonium à d'autres profondeurs seront nécessaires pour mettre en évidence une éventuelle augmentation de l'activité de ce nucléide entre 1972 et 1978.

Dans tous les échantillons de sols et de sédiments mesurés, le rapport Pu-238/Pu-239 reste inférieur à 0,15 et peut de ce fait être considéré comme typique des retombées des années soixante. Aussi bien dans les sols que dans les sédiments, les activités en plutonium-239 et les rapports Pu-238/Pu-239 sont comparables aux valeurs, peu nombreuses, mesurées dans d'autres pays européens [6,7].

**Figure 2. Concentration du plutonium-238 et du plutonium-239 dans des sédiments en 1994**



### ***Eau du Rhin et du Rhône***

Les résultats figurent dans le tableau 3. Les activités en plutonium-239 mesurées dans des particules en suspension dans le Rhin à Rekingen, en amont de la jonction de l'Aare, et à Village-Neuf, à la sortie du territoire Suisse, sont très faibles, en-dessous de la limite de détection. L'activité du résidu d'évaporation d'eau du Rhône, prélevée à Chancy en aval de Genève, est également très basse. Dans ces 3 échantillons, l'activité en Pu-238 est en-dessous de la limite de détection.

**Tableau 3. Concentration en plutonium-239 dans des eaux du Rhin et du Rhône**

Type d'échantillon	Lieu de prélèvement	Activité en plutonium-239
Particules en suspension	Rekingen	$\leq 0,020$ Bq/kg
	Village-Neuf	$\leq 0,050$ Bq/kg
Résidu d'évaporation	Chancy	$0,018 \pm 0,003$ Bq/m <sup>3</sup>

### ***Filtres aérosols.***

Les mesures du plutonium dans l'air à Fribourg au moyen de filtres aérosols ont donné les résultats suivants pour l'année 1994:

Plutonium-239:	$1,36 \pm 0,25$ nBq / m <sup>3</sup>
Plutonium-238:	$1,47 \pm 0,25$ nBq / m <sup>3</sup>
Rapport Pu-238/Pu-239:	$1,08 \pm 0,38$

L'activité en plutonium-239 dans l'air, qui provient essentiellement de la resuspension [3], est compatible avec les valeurs citées dans la littérature [5]; par contre, la valeur élevée du rapport Pu-238/Pu-239, qui ne devrait pas dépasser 0,1, reste pour l'instant inexpliquée.

### 3.13.5. Conclusion

Les déterminations de plutonium-238 et de plutonium-239 effectuées à titre exploratoire en 1994 dans des échantillons de sol, de sédiments et d'eaux de fleuve, ainsi que dans un filtre aérosol, ont permis de constater que la concentration en plutonium-239 dans l'environnement est extrêmement faible, souvent proche de la limite de détection. Aucune augmentation significative n'a pu être mise en évidence au voisinage des centrales nucléaires, tant dans les sols que dans les sédiments. Ce résultat est corroboré par la mesure du rapport  $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ , inférieur à 0,15 dans tous les échantillons, hormis dans l'air prélevé à Fribourg au moyen d'un filtre aérosol. Dans ce dernier cas, le rapport des deux nucléides atteint 1,1 pour une raison encore inexpliquée. Il est intéressant en outre de constater que la concentration en plutonium-239 des sols prélevés en montagne reflète leur activité plus élevée en strontium-90.

Malgré l'important investissement qu'exigent les analyses de plutonium, nous estimons indispensable de poursuivre la surveillance du plutonium dans l'environnement ces prochaines années sur un minimum d'échantillons représentatifs: sols et sédiments au voisinage des centrales nucléaires, ainsi que dans quelques autres sites, en plaine et en altitude. La surveillance du plutonium-238 et du plutonium-239 dans l'air est également prioritaire.

### Remerciements

Nous tenons à remercier les personnes qui nous ont procuré les échantillons: l'EAWAG à Dübendorf, la section de surveillance de la radioactivité à Fribourg, le Groupement de l'armement à Spiez, ainsi que les laboratoires cantonaux de Thurgovie et du Tessin.

### Bibliographie

- [1] Ionizing Radiation: Levels and Effects, UNSCEAR Report, United Nations Publication, New-York (1972), p. 54.
- [2] H. Schüttelkopf, Entwicklung einer Analysenmethode für Plutonium im Femtogramm/Gramm-Bereich und ihre Anwendung auf Umweltproben, Diss., TU München (1981).
- [3] The Environmental and Biological Behaviour of Plutonium and Some Other Trans-uranium Elements, Nuclear Energy Agency, OCDE, (1981), p.15.
- [4] Ibid., p.38.
- [5] Umweltradioaktivität, Radioökologie, Strahlenwirkungen, Fach-verband für Strahlenschutz, TUeV, Rheinland, (1993), p. 770.
- [6] S. Roussel-Debet, C. Colle, L. Jourd'heuil, M. Morello, L. Foulquier, P. Miara, M. Pally, Mesure du plutonium dans des échantillons de sols et de sédiments prélevés en juin 1991 autour du site de la centrale de Creys-Malville, Radioprotection, **28**, 191-201, (1993)
- [7] Z. Hölgye, R. Filgas, Inventory of  $^{238}\text{Pu}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  in the Soil of Czechoslovakia in 1990, Journal of Environmental Radioactivity, **27**, 181-189, (1995)

### **3.14. MESSUNGEN DES AC-LABORATORIUMS SPIEZ AN LUFT-FILTERN, BODEN, GRAS, MILCH UND REAKTORABWASSER**

**M. Burger, E. Schmid, F. Byrde, E. Astner, E. Wüthrich**

Gruppe für Rüstungsdienste, AC-Laboratorium Spiez 3700 SPIEZ

#### **3.14.1. Zusammenfassung**

*1994 hat das AC-Laboratorium Spiez der GRD mit seinen Gruppen Zentrale Analytik und Radiochemie sowie Radioaktivität und Verstrahlung erstmals einen Teil der Messaufgaben aus dem Überwachungsprogramm des BAG übernommen.*

*Es handelte sich um die Bestimmung des Gehaltes an Gammastrahlern und des Betastrahlers Sr-90 an Messproben von Erdboden, Gras und Milch der Stationen Mürren, Fahrni bei Thun (neu) und Diesse (neu). Alle Stationen liegen im Kanton Bern. Ferner wurde an Luftfiltern der FWP-Station Morges die aerosolgebundene Luftaktivität (Gammastrahler) gemessen.*

*In Abwasserproben aus den Kernkraftwerken und des Paul-Scherrer-Institutes wurde der Gehalt an Sr-90 und Sr-89 bestimmt.*

#### **3.14.2. Messtechnik**

Die Gammastrahler wurden auf HPGe-Spektrometern in verschiedenen kalibrierten Messgeometrien bestimmt.

Zur Bestimmung des Gehaltes an Sr-90 und Sr-89 gelangte eine radiochemische Trennmethode mit anschliessender Messung von Y-90 und Sr-89/Sr-90 auf einem low-level-Proportionalzähler zum Einsatz.

Die Messungen der Aktivitätskonzentrationen von Probenmaterial erfolgten im Rahmen der nach EN 45001 akkreditierten Prüfstelle STS 028 des AC-Laboratoriums Spiez.

#### **3.14.3. Resultate**

Die Resultate der 1994 durchgeführten Messungen sind in den **Tabellen 1 bis 6** zusammengestellt.

Die Gehalte an natürlichen Radionukliden in den Umweltproben Luftaerosole, Boden und Gras sowie dem Lebensmittel Milch entsprechen den in der Schweiz noch an anderen Orten anzutreffenden Werten. Die künstlichen Radionuklide Cs-134, Cs-137 und Sr-90 stammen noch aus den atmosphärischen Nuklearwaffenversuchen der 50er- und 60er-Jahre sowie vom Reaktorunfall in Tschernobyl im Jahr 1986. Die kleinen nachgewiesenen Aktivitäts-konzen-

trationen dieser Nuklide liegen im Bereich der auch an anderen Stationen in der Schweiz gemessenen Werte.

Die Resultate für Erde und Gras der Station Mürren sind vergleichbar mit den Messungen aus früheren Jahren. Lediglich die Aktivitätskonzentrationen an Sr-90 und Cs-137 in Milch liegen im Vergleich zu früheren Jahren und im Vergleich zu den Aktivitätskonzentrationen im Gras zu tief und entsprechen eher einer Milch aus dem Mittelland. Nachfragen beim Probenerheber und die Rückverfolgung der Probenbearbeitung zeigten keine Verwechslung auf. Das Resultat wurde in einer Wiederholmessung bestätigt.

Die in den Abwassern der Kernkraftwerke und des PSI bestimmten Aktivitätskonzentrationen an Sr-89 und Sr-90 dienen als Bilanzierungsgrundlage zur Beurteilung der Jahresabgabe-limiten. Wie zu erwarten war, liegen die Aktivitätskonzentrationen dieser Isotope in den Abwassern der älteren Anlagen (Mühleberg und Beznau) höher als in den neueren.

**Tabelle 1: Gammamessungen in Milch**

Alle Resultate bezogen auf das Trockengewicht

Bezugsdatum	Probe	Verhältnis Frisch- / Trockengewicht [-]	K-40 Bq/kg	$\pm$ %	Cs-134 Bq/kg	$\pm$ %	Cs-137 Bq/kg	$\pm$ %
14.06.94	<b>MILCH</b> Mürren (BE)	7.46	381	6	< 0.77		< 0.53	
7.07.94	Fahrni (BE)	7.83	420	5	< 0.77		< 0.52	
12.07.94	Diesse (BE)	7.92	382	6	< 1.02		< 0.70	

**Tabelle 2: Betamessungen Sr-90 in Gras und Boden**

Alle Resultate primär bezogen auf das Trockengewicht und umgerechnet auf das Frischgewicht  
Bodenschicht 0-5 cm

Bezugsdatum	Probe	Verhältnis Frisch-/ Trockengewicht [-]	a(Sr-90) trocken Bq/kg	$\pm$ %	a(Sr-90) frisch Bq/kg	$\pm$ %
14.06.94	<b>GRAS</b> Mürren (BE)	5.93	20.0	7	3.4	7
7.07.94	Fahrni (BE)	5.63	6.8	7	1.2	7
12.10.94	Fahrni (BE)	4.78	4.25	8	0.9	8
7.07.94	Diesse (BE)	3.82	6.5	7	1.7	7
12.10.94	Diesse (BE)	5.35	1.28	10	0.24	10
	<b>BODEN</b>					
14.06.94	Mürren (BE)	1.44	31.9	7	22.1	7
7.07.94	Fahrni (BE)	1.38	10.1	7	7.3	7
7.07.94	Diesse (BE)	1.23	7.8	7	6.4	7

**Tabelle 3: Gammamessungen in Gras und Boden**

Alle Resultate bezogen auf das Trockengewicht  
Bodenschicht 0-5 cm

Bezugsdatum	Probe	Verhältnis Frisch- / Trockengewicht [-]	Be-7 Bq/kg ± %	K-40 Bq/kg ± %	Co-60 Bq/kg ± %	Cs-134 Bq/kg ± %	Cs-137 Bq/kg ± %
	<b>GRAS</b>						
14.06.94	Mürren (BE)	5.93	269 5	477 5	< 0.85	< 0.96	3.27 10
7.07.94	Fahrni (BE)	5.63	268 4	1563 4	< 0.82	< 0.76	< 0.59
12.10.94	Fahrni (BE)	4.78	298 4	971 4	< 0.88	< 0.90	0.93 25
7.07.94	Diesse (BE)	3.82	283 7	1071 6	< 0.68	< 0.67	< 0.53
12.10.94	Diesse (BE)	5.35	295 4	1193 4	< 0.85	< 0.85	0.94 21
	<b>BODEN</b>						
14.06.94	Mürren (BE)	1.44	11.7 20	467 6	< 0.56	< 1.12	22.3 5
7.07.94	Fahrni (BE)	1.38	5.90 23	429 6	< 0.47	< 0.90	18.1 5
7.07.94	Diesse (BE)	1.23	< 3.42	388 5	< 0.40	0.67 9	29.8 4

**Tabelle 4: Gammamessungen von Filterproben FWP Morges**

Bezugs- datum	Probe	Sammel- periode 1994	Volumen [m <sup>3</sup> ]	Be-7 µBq/m <sup>3</sup> ±%	K-40 µBq/m <sup>3</sup> ±%	Co-60 µBq/m <sup>3</sup> ±%	I-131 µBq/m <sup>3</sup> ±%	Cs-134 µBq/m <sup>3</sup> ±%	Cs-137 µBq/m <sup>3</sup> ±%	Pb-210 µBq/m <sup>3</sup> ±%
15.01.94	Januar	28.12.-04.02.	36480 *	1127 11	< 33.6	< 2.0	-	< 1.9	3.3 25	< 1239
15.02.94	Februar	04.02.-03.03.	25920 *	1139 10	< 33.6	< 2.1	-	< 1.7	8.8 13	657 9
15.03.94	März	03.03.-02.04.	28800 *	2062 5	< 34.6	< 2.1	-	< 2.0	15.5 7	< 1372
15.04.94	April	02.04.-03.05.	29760 *	1279 8	36.8 35	< 2.0	-	< 1.7	9.3 12	372 11
15.05.94	Mai	03.05.-31.05.	26880 *	1923 6	< 37.9	< 2.3	-	< 1.9	13.6 12	< 1722
15.06.94	Juni	31.05.-08.07.	36480 *	2111 7	< 17.0	< 1.0	-	< 0.76	11.7 7	734 8
15.07.94	Juli	08.07.-06.08.	18219	5101 6	< 35.4	< 2.0	< 133	2.7 22	51.3 6	< 1731
15.08.94	August	06.08.-07.09.	19497	3047 6	< 26.0	< 1.6	-	< 1.4	22.1 7	473 6
15.09.94	Sept.	07.09.-02.10.	15680	1860 7	< 29.3	< 2.2	-	< 2.9	29.2 7	< 510
15.10.94	Oktober	02.10.-29.10.	18024	1920 6	< 35.5	< 2.1	-	< 1.8	17.8 9	602 6
15.11.94	Nov.	29.10.-28.11.	26954	1580 6	< 25.7	< 1.8	< 299	< 2.4	8.4 11	-
15.12.94	Dez.	28.11.-28.12.	17860	2843 7	< 42.0	< 2.4	< 35.8	< 1.8	9.9 11	1810 8

\*) Volumenmessung defekt. Erfahrungswert = 40 m<sup>3</sup>/h

**Tabelle 5: Betamessungen Sr-90 in Milch**

Radiochemische Bestimmung durchgeführt mit der Trockensubstanz (Lyophilisat).  
Umrechnung auf Frischgewicht.

Bezugsdatum	Probe	Verhältnis Frisch-/ Trockengewicht [-]	a(Sr-90) trocken Bq/kg	±%	a(Sr-90) frisch Bq/l	±%
14.06.94	Mürren (BE)	7.46	0.45	7	0.061	7
7.07.94	Fahrni (BE)	7.83	0.73	7	0.093	7
12.07.94	Diesse (BE)	7.92	0.46	7	0.058	7

**Tabelle 6: Betamessungen Sr-89 und Sr-90 in Abwasser  
der KKW und des PSI**

Dichte: 1000 [kg/m<sup>3</sup>]

Referenzdatum	Probe	a(Sr-90) Bq/m <sup>3</sup> ±%		a(Sr-89) Bq/m <sup>3</sup> ±%	
9.06.94	KKB	2717	6	1929	10
9.05.94	KKG	19.2	11	< 300	
7.04.94	KKL	43.9	10	< 300	
26.04.94	KKM	529	8	1301	12
10.06.94	PSI	783	8	< 300	
13.12.94	KKB I	1743	6	3975	10
13.12.94	KKB II	1764	6	4014	10
1.12.94	KKG	< 10		< 300	
13.12.94	KKL	15	15	< 300	
7.12.94	KKM	198.5	9	708	12
21.12.94	PSI	45.1	10	< 300	

### 3.15. VERTEILUNG VON CÄSIUM-137 IN SCHWEIZERISCHEN WALDBÖDEN

Thomas K. Riesen<sup>1)</sup>, Stefan Zimmermann<sup>2)</sup> und Peter Blaser<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> Paul Scherrer Institut, Abt. Strahlenhygiene, Radioökologie, CH-5232 VILLIGEN PSI

<sup>2)</sup> Eidgenössische Forschungsanstalt für Wald, Schnee und Landschaft,  
CH-8903 BIRMENSDORF

#### 3.15.1. Zusammenfassung

*Im Rahmen des Waldschadeninventars 1993 wurden an 172 Standorten Bodenprofile erstellt. Von jedem Standort wurde die Aktivität von Cäsium in der obersten Bodenschicht gemessen und die Resultate auf einer Karte dargestellt. Das Verteilungsmuster der Cäsium Aktivität in Waldböden stimmt mit der Verstrahlungskarte, wie sie 1986 nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl aufgezeichnet wurde, gut überein. Gebiete mit damals hohem Niederschlag zeigen in Waldböden auch heute noch eine höhere Kontamination als niederschlagsarme Gebiete. Der grösste Teil des 1986 in Wäldern deponierten Cäsiums ist immer noch in den obersten Bodenschichten gebunden.*

#### 3.15.2. Einleitung

Als Folge des Reaktorunfalls in Tschernobyl wurde in den Tagen nach dem 30. April 1986 in der Schweiz unter anderem radioaktives Cäsium ( $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ) abgelagert. Aufgrund von zahlreichen Ortsdosisleistungsmessungen konnte sehr bald eine Verstrahlungskarte der Schweiz erstellt (Honegger et al., 1986) und die daraus resultierenden Personendosen berechnet werden. Da die totalen Bodenaktivitäten für die Beurteilung der potentiellen Strahlenbelastung nicht von direktem Interesse waren, wurden nur wenige solche Messungen durchgeführt. Die Resultate dieser Messungen zusammen mit den Ortsdosisleistungen ermöglichten es dennoch, eine Verstrahlungskarte herzuleiten (Fig. 1; Czarnecki et al., 1986). Aus verständlichen Gründen wurde die Radioaktivität in Waldböden zu diesem Zeitpunkt kaum untersucht.

Inzwischen hat sich gezeigt, dass ein grosser Anteil des nach Tschernobyl über Wäldern abgelagerten Cäsiums noch immer in den obersten Schichten von Waldböden nachgewiesen werden kann. Im Rahmen des 1993 durchgeführten Waldschadeninventars 1993 durch die Eidg. Forschungsanstalt für Wald, Schnee und Landschaft ergab sich die Gelegenheit, die Cäsiumaktivität in 172 Oberbodenproben zu bestimmen. Das Ziel dieser Messungen war:

- (1) eine aktuelle Karte der Kontamination durch Cäsium in Waldböden zu erstellen,
- (2) diese Karte mit der Karte der Bodenkontamination, welche 1986 erstellt worden war, zu vergleichen,

- (3) die gemessenen Bodenaktivitäten mit den 1986 registrierten Niederschlägen in Beziehung zu setzen,
- (4) an 12 ausgewählten Orten den Anteil des Cäsiums, welches vom Bombenfallout der 60er Jahre herrührt, zu bestimmen und
- (5) die vertikale Verteilung von Cäsium an einem stark kontaminierten Probenahmeort aufzuzeigen.

### **3.15.3. Material und Methoden**

Im Rahmen der Aufnahme des WSI 93 (Wald-Schaden-Inventar 1993) in der Schweiz wurden 172 Standorte bestimmt (8 x 8 km Netz), an welchen Bodenprofile aufgenommen und von jeder Bodenschicht und von im voraus definierten Tiefen Proben entnommen wurden. Ein Teil jeder getrockneten und gesiebten Oberbodenprobe, welche in der Regel den obersten 0-5 cm des Bodenprofils entsprach ( $A_h$  Horizont, humushaltige Mineralerdebeschicht, siehe Figur 3), wurde in ein 50 ml Polyäthylenfläschchen gefüllt. Darauf bestimmten wir gammaspektrometrisch die totale Cäsiumaktivität, welche sich aus dem Bombenfallout der 60-er Jahre und dem Niederschlag des Reaktorunfalls von Tschernobyl zusammensetzt. Bei der Messung der unterschiedlichen Böden wurde keine Dichtekorrektur vorgenommen. Die Messzeiten wurden so gewählt, dass der Messfehler für die Mehrzahl der Proben < 10 % war. Alle Messwerte wurden auf den 1.7.93 zerfallskorrigiert.

Basierend auf dem  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -Verhältnis, welches für den Tschernobyl Ausfall 1986 0.6 betrug, und den bekannten Halbwertszeiten für  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{137}\text{Cs}$  von 2.1 beziehungsweise 30.2 Jahren wurde das  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  Verhältnis für den 1.7.93 berechnet. Da alles  $^{134}\text{Cs}$ , welches in den Proben des WSI 93 gemessen wurde, vom Tschernobyl Fallout stammt, kann durch Multiplikation der  $^{134}\text{Cs}$ -Aktivität mit dem neuberechneten  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  Verhältniss die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität des Tschernobyl Fallouts berechnet werden. Die Differenz zwischen dieser berechneten und der aktuell gemessenen  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität entspricht dann der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität, welche von vor 1986, also vom Bombenfallout stammen muss.

Von den Probenahmeorten des WSI 93 waren bereits vor dem 26.4.1986 im Rahmen des Landesforstinventares (1 x 1 km Netz, 1982-1986) Oberbodenproben erhoben und bei der WSL (Eidgenössischen Forschungsanstalt für Wald, Schnee und Landschaft) eingelagert worden. In diesen Proben wurde die Cäsiumaktivität, welche vom Bombenfallout herrührte, bestimmt und mit den berechneten Werten aus dem WSI 93 verglichen.

Der Vergleich wurde für vier Regionen der Schweiz mit unterschiedlich hoher Deposition durch den Unfall von Tschernobyl gemacht. In jeder der vier Regionen wurden dazu 3 möglichst nahe beieinanderliegende Probenahmeorte ausgewählt.

Um die Beziehung zwischen Niederschlagsmenge und Oberbodenaktivität aufzuzeigen, wurden die Niederschläge von Anfang Mai 1986 für oben erwähnte 4 Regionen aufgezeichnet. Die Werte stammen von denjenigen Messstationen der Schweizerischen Meteorologischen Anstalt, welche den Probenahmeorten am nächsten gelegen waren.

### 3.15.4. Resultate und Diskussion

Figur 2 zeigt eine aktuelle Karte der Radioaktivität der Oberbodenschichten schweizerischer Wälder. Wegen der grossen Unterschiede der Bodendichte zwischen verschiedenen Standorten und der unterschiedlichen Mächtigkeit der Oberbodenschichten erfolgen die Aktivitätsangaben in Bq/kg. Dennoch ist die Übereinstimmung mit der Verstrahlungskarte (Figur 1), welche in den Wochen nach dem Unfall von Tschernobyl erstellt wurde und die Aktivitäten pro Fläche angibt, klar ersichtlich. Auch die bereits 1986 festgestellte Übereinstimmung zwischen Niederschlag und erhöhter Ortsdosisleistung spiegelt sich 7 Jahre nach dem Ereignis und sicherlich auch heute noch ausgeprägt in den Waldböden wieder: In Gebieten mit damals erhöhten Niederschlägen (Figur 1) ist auch die Aktivität des Oberbodens in Wäldern erhöht (Figur 2).

Wir können drei Kategorien mit unterschiedlich starker Waldbodenaktivität bilden:

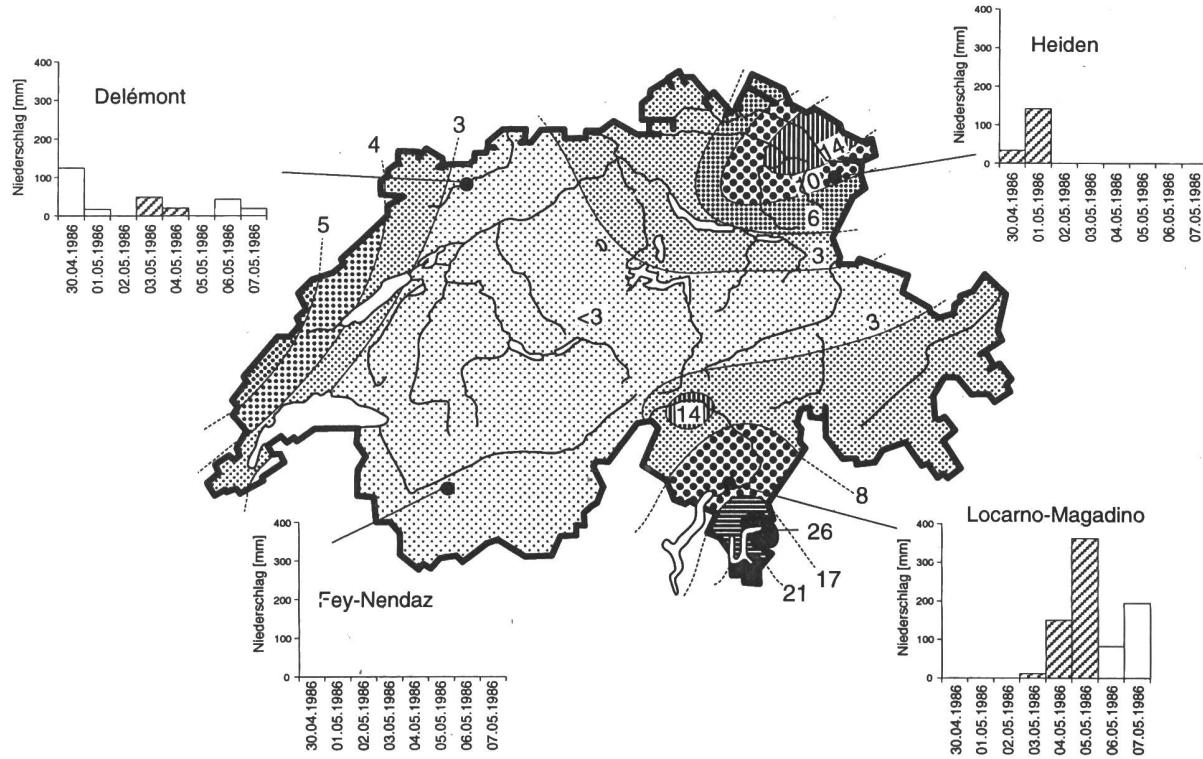
- (1) 0-100 Bq/kg Mittelland, Rhonetal, Graubünden (ohne Südtäler),
- (2) 100-500 Bq/kg Juranordfuss und das Gebiet südwestlich des Bodensees und
- (3) > 500 Bq/kg Kanton Tessin (und Bündner Südtäler) mit einigen Werten, welche 1000 Bq/kg übersteigen (Maximalwert: 1896 Bq/kg).

Tabelle 1 zeigt einen Vergleich zwischen der aus den Oberbodenproben von 1993 für den Bombenfallout berechneten  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität mit der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität, welche in den Proben vor 1986 gemessen wurde (vgl. Material und Methoden). Die berechneten Werte sind allgemein etwas höher als die gemessenen, was auf den vertikalen Transport von Cäsium in tiefere Schichten zurückgeführt werden kann. Für die Unterschiede kommen aber auch unterschiedliche Auswaschungsraten von der organischen in die mineralische Bodenschicht gegeben durch die unterschiedlichen lokalen Verhältnisse, unterschiedliche Probenahmetechniken in den beiden Erhebungsperioden und die Streubreite der Messungen in Frage.

**Tabelle 1:** Cäsium Aktivitäten im Oberboden von 12 Waldstandorten und Vergleich zwischen der aus dem  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -Verhältnis berechneten\*  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität der Tschernobyl-Deposition [ $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität gemessen 1993 -  $(15,7 \times ^{134}\text{Cs}$ -Aktivität gemessen 1993)] und der gemessenen\*\*  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität des Bomben- Fallout der 60er Jahre (Bodenproben 1986). Alle Aktivitäten sind zerfalls-korrigiert auf den 1.7.93.

Standort-Nr (vgl. Fig. 2)	$^{137}\text{Cs}$ - Aktivität 1993 [Bq/kg]	$^{134}\text{Cs}$ - Aktivität 1993 [Bq/kg]	berechneter * Bomben-Fallout [Bq/kg]	gemessener ** Bomben-Fallout [Bq/kg]
1	466	20	148	53
2	414	21	93	44
3	398	21	70	11
4	102	4	42	26
5	144	8	15	16
6	138	6	49	58
7	1646	91	217	188
8	1896	97	378	17
9	1461	76	265	2
10	12	0	-	13
11	30	0	-	5
12	36	0	-	4

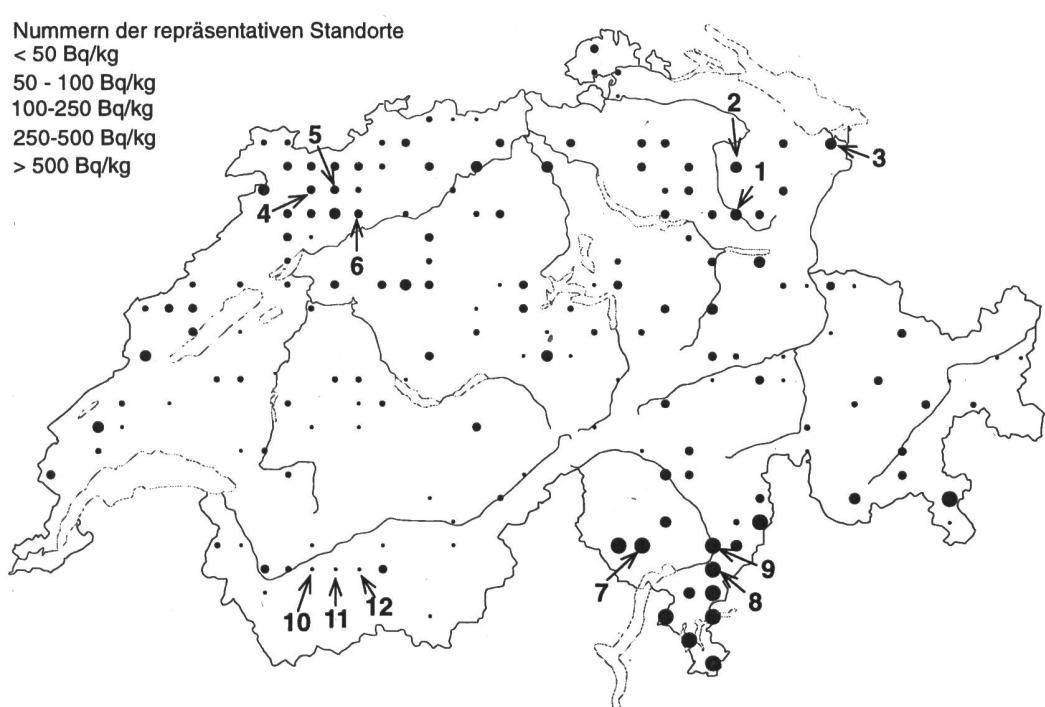
**Figur 1:** Berechnete mittlere Deposition von  $^{137}\text{Cs}$  [ $\text{kBq}/\text{m}^2$ ] in der Schweiz durch den Reaktorunfall von Tschernobyl 1986 (Berechnungsbasis: Ortsdosisleistung und Aktivitätsmessungen von repräsentativen Bodenproben; nachgezeichnet mit Genehmigung der Hauptabteilung für die Sicherheit von Kernanlagen) und Niederschlagsmengen [mm] von 4 ausgewählten Messstationen für anfangs Mai 1986.



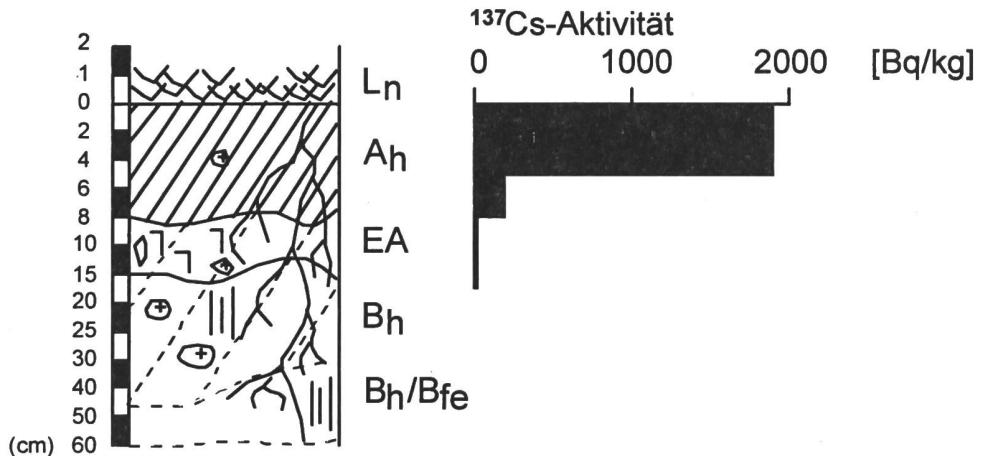
**Figur 2:** Aktivität von  $^{137}\text{Cs}$  [Bq/kg] in der obersten Bodenschicht (0-5 cm) von Waldböden, gesammelt im Rahmen des Waldschadeninventars 1993 und zerfallskorrigiert auf den 1.7.93.

1-12 Nummern der repräsentativen Standorte

- < 50 Bq/kg
- 50 - 100 Bq/kg
- 100-250 Bq/kg
- 250-500 Bq/kg
- > 500 Bq/kg



Figur 3 zeigt eine für Waldböden typische vertikale Verteilung von Cäsium. Der grösste Teil des Gesamtcäsiums ist noch immer in den obersten Bodenschichten gebunden, während nur ein kleiner Teil in tiefere Schichten vorgedrungen ist. Dieses Resultat steht im Gegensatz zu landwirtschaftlich genutzten Böden, in welchen Cäsium durch die Bodenbearbeitung homogener und in tiefere Schichten hinunter verteilt wird.



**Figur 3:** Vertikale Verteilung von  $^{137}\text{Cs}$  in einem stark kontaminierten Boden aus der Südschweiz (Standort Nr. 8 in Figur 2).  $\text{A}_\text{h}$ , EA,  $\text{B}_\text{h}$  und  $\text{B}_\text{h}/\text{B}_\text{fe}$  sind fachspezifische Bezeichnungen für die Bodenschichten dieses Profils.

Die vorliegenden Daten bestätigen die lange Halbwertszeit von Cäsium in halbnatürlichen Ökosystemen, wie sie Wälder darstellen, deutlich. Die Faktoren, welche dafür verantwortlich sind, dass Cäsium in den obersten Bodenschichten gebunden bleibt, sind noch nicht endgültig geklärt. Der hohe Gehalt an organischen Stoffen oder die Fixierung durch Mikroorganismen spielen dabei sicherlich eine bedeutende Rolle. Ein Projekt im Rahmen des vierten Rahmenprogrammes der EU (1996-1999) wird sich unter anderem mit dieser Fragestellung beschäftigen.

### Verdankungen

Der Beitrag von T. Riesen wurde über den Kredit 0.805.391.02/6, EPA 217.475 der Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen/Bundesamt für Energiewirtschaft finanziert.

### 3.15.5. Literaturverzeichnis

Czarnecki, J., F. Cartier, P. Honegger, A. Zurkinden (1986). Bodenverstrahlung in der Schweiz aufgrund des Reaktorunfalls in Tschernobyl. In „Radioaktivitätsmessungen in der Schweiz nach Tschernobyl und ihre wissenschaftliche Interpretation“ (Ed. L. André et al.) 20.-22.10.86. Tagungsbericht Band 1, S. 93-109. Bern.

Honegger, P., C. Wernli und A. Hardmeier (1986). Übersicht über den Verlauf der Ortsdosisleistung in der Schweiz und daraus resultierende Dosen als Folge des Reaktorunfalls in Tschernobyl. In „Radioaktivitätsmessungen in der Schweiz nach Tschernobyl und ihre wissenschaftliche Interpretation“ (Ed. L. André et al.) 20.-22.10.86. Tagungsbericht Band 1, S. 201-218. Bern.

### **3.16. TIEFENVERTEILUNG UND TRANSFER BODEN-PFLANZE VON CÄSIUM-RADIONUKLIDEN IN WALDGEBIETEN IM SÜDLICHEN VORALPENGEBIET UND VERGLEICH ZUM NÖRDLICHEN VORALPENGEBIET**

**R. Miller<sup>1)</sup>, E. Klemt<sup>1)</sup>, T. Klenk<sup>1)</sup>, G. Zibold<sup>1)</sup>, M. Burger<sup>2)</sup>, A. Jakob<sup>2)</sup>**

<sup>1)</sup> Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, IAF Radiometrie, Postfach 1261,  
88241 Weingarten, Deutschland

<sup>2)</sup> GRD, AC-Laboratorium Spiez, Sektion Sicherheitsfragen, Zentrale Analytik und  
Radiochemie, CH-3700 Spiez, Schweiz

#### **3.16.1. Einleitung**

Die vorliegende Arbeit wurde parallel zu den Untersuchungen "Einschwemmung von Radionukliden in den Lüganersee und Vergleich mit dem Bodensee" durchgeführt (vgl. Publikation in diesem Band). Das Ökosystem Wald stellt einen zu beachtenden Langzeitspeicher für künstliche Radionuklide dar. Es ist daher von großer Bedeutung, das Verhalten der Radionuklide in diesem Ökosystem zu verstehen. Einerseits stellen die untersuchten Wälder in den meisten Fällen die Quellgebiete von Bächen dar, die in der regionalen Trinkwasserversorgung eine Rolle spielen, andererseits handelt es sich um Waldgebiete, die zum Einzugsgebiet des Nutzwasserspeichers Lüganersee gehören.

Diese Studie verfolgt das Ziel, die horizontspezifische Tiefenverteilung der  $^{137}\text{Cs}$ - und  $^{134}\text{Cs}$ -Radionuklide im Waldboden des Kantons Tessin nahe Lugano sowie die spezifische Aktivität der Bewuchspflanzen zu messen und daraus die Transferfaktoren von  $^{137}\text{Cs}$  (Boden  $\rightarrow$  Pflanze) zu berechnen. Im weiteren sollen die horizontspezifischen Anteile des  $^{137}\text{Cs}$  von Tschernobyl und den Kernwaffentests am Gesamtinventar ermittelt und die Desorbierbarkeit von  $^{137}\text{Cs}$  aus ausgewählten Bodenhorizonten bestimmt werden.

#### **3.16.2. Experimentelle Methoden**

##### **3.16.2.1 Probennahme**

Die Beprobung erstreckte sich über den Zeitraum von 05. bis 07. Juli 1994. Über die zu beprobende Meßstelle wurde ein quadratischer Rahmen mit einer Seitenlänge von vierzig Zentimetern gelegt und somit die Entnahmefläche definiert. Die innerhalb des Rahmens vorhandene Vegetation wurde, nach den jeweiligen Arten getrennt, abgezupft und aufbewahrt. Folgende Pflanzen wurden entnommen: Dornfarn (*Dryopteris carthusiana*), Efeu (*Hedera helix*) und Zwergbuchs (*Polygala chamaebuxus*). An folgenden Stellen wurden Proben erhoben:

**Corticiasca (1) und (2)**

Geographische Lage:

- 1250 m Höhe
- $46^{\circ} 05' 30''$   $9^{\circ} 01' 10''$
- Schiefergneis
- Fichtenwald 80%, Tanne 20%

**Sessa (3) und (4)**

Geographische Lage:

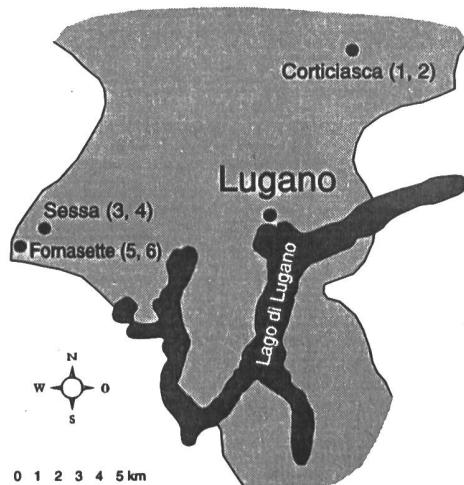
- 390 m Höhe
- $46^{\circ} 00' 05''$   $8^{\circ} 48' 50''$
- Moräne
- Laubwald 100%

**Fornasette (5) und (6)** 270 m Höhe

Geographische Lage: •  $45^{\circ} 59' 50''$   $8^{\circ} 47' 25''$

Geologie: • Alumosilikatgneis

Charakterisierung: • Laubwald 100%



*Abb. 1 Beprobungsorte um Lugano*

### 3.16.2.2 Aktivitätsmessungen

Um  $^{137}\text{Cs}$  aus atmosphärischen Kernwaffentests vom  $^{137}\text{Cs}$  aus Tschernobyl abtrennen zu können, wurde das Verhältnis  $(^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs})_{\text{Tschernobyl}} \approx 0,6$  zugrundegelegt /1/.

Die Aktivität wurde in einem Reinstgermanium-Detektor mit einem relativen Fehler kleiner als 2% für  $^{137}\text{Cs}$  bestimmt. Der relative Fehler der  $^{134}\text{Cs}$ -Aktivitätsbestimmung lag zwischen 2% und 5%. Die Bodenproben wurden luftgetrocknet und gesiebt. Die Pflanzenproben wurden im Trockenschrank bei  $105^{\circ}\text{C}$  bis zur Gewichtskonstanz getrocknet und kleingehäckelt.

### 3.16.2.3 Desorptionsversuche

In diesen Experimenten wird den einzelnen Horizonten des Waldbodens das Cäsium mit einer Giesesalzzelle /2/ entzogen. Damit wird die in der Natur vorkommende Cäsiumaufnahme durch die Pflanze aus der Bodenlösung simuliert.

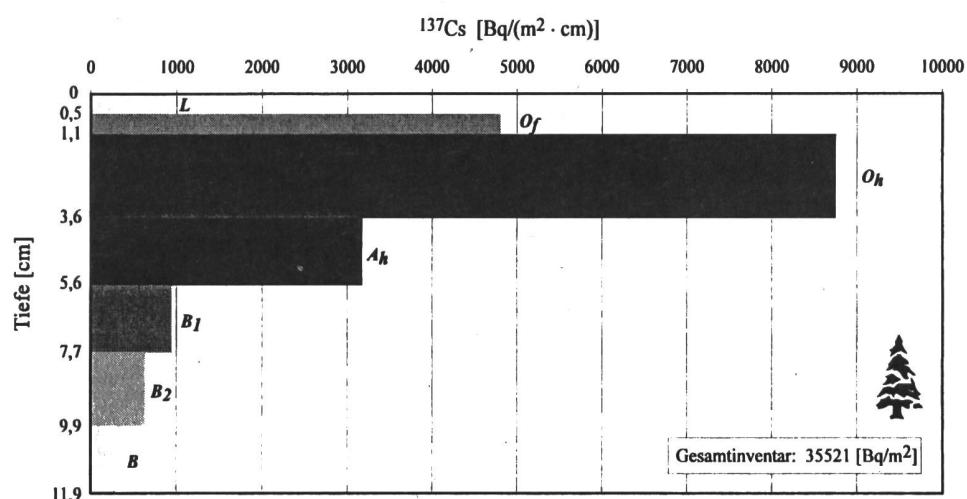
Zunächst wird die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität von 30 g Boden (Feuchtmasse) eines bestimmten Horizontes gemessen. Nach Zugabe von einem Liter deionisiertem Wasser wird die Bodensuspension eine Stunde lang kräftig gerührt. Danach wird die Giesesalzzelle für 24 Stunden in die Suspension getaucht. Die Giesesalzzelle besteht aus einem Dialyseschlauch, der mit 3g Giesesalz und 27ml deionisiertem Wasser gefüllt ist. Nach Beendigung des Desorptionsvorganges (24 h) wird die Giesesalzlösung in einen Probenbecher gefüllt, und es erfolgt eine gammaspektrometrische Aktivitätsbestimmung des Giesesalzes ( $A_{\text{Giese}}$ ). Dessen Aktivität wird mit der zuvor gemessenen Aktivität des entsprechenden Bodenhorizonts ( $A_{\text{Boden}}$ ) verglichen.

### 3.16.3. Tiefenverteilung der $^{137}\text{Cs}$ - Aktivitätskonzentration

In den folgenden Diagrammen ist auf der Abszisse die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentration der einzelnen Waldbodenhorizonte<sup>1</sup> und auf der Ordinate die gemittelten Horizonttiefen aufgetragen. Alle Angaben sind hier bzgl. des radioaktiven Zerfalls auf den 1. Mai 1986 korrigiert. Der Tiefenmaßstab ist bei den Fichtenwaldstandorten Corticiasca (1) und (2) den jeweiligen Profilproben angepaßt.

Bei den Laubwaldprofilen Sessa und Fornasette ist der Tiefenmaßstab beim L- bzw.  $O_f$ -Horizont ebenfalls den Profilproben angepaßt. Bei den  $A_h$ -Horizonten wurden möglichst gleichmäßig dicke Schichten von 1,5 cm abgetragen ( $A_{h1}$ ,  $A_{h2}$ , ...).

Die Maxima der Tiefenverteilungen wurden in dieser Studie dadurch festgelegt, daß die Unterkante des Horizontes oder der Schicht mit der höchsten Cs-Aktivitätskonzentration angegeben wird. Die Mächtigkeit der einzelnen Horizonte wurde mit einem Maßstab bestimmt, wobei die Genauigkeit der Bestimmung in einzelnen Fällen, wenn die Horizonte unscharf voneinander abgegrenzt sind, nur  $\pm 0,5$  cm beträgt.



**Abb. 2 Tiefenverteilung der  $^{137}\text{Cs}$  - Aktivitätskonzentration Corticiasca (1).**

Beim Standort Corticiasca befindet sich am Probeort 1 ein Maximum der Aktivitätskonzentration im  $O_h$ -Horizont, und die Grenze zwischen organischer Auflage und Mineralboden liegt bei 3,6 cm. Man erkennt eine deutliche Abnahme der Aktivitätskonzentration mit wachsender Tiefe, so daß in den unteren mineralischen Bodenhorizonten nur noch wenig Cäsium enthalten ist. Bei dieser Probennahme fällt zum einen das überdurchschnittlich hohe Inventar von 35,5 kBq/m<sup>2</sup> auf. Weiterhin besteht hier eine sehr dicke  $O_h$ -Auflage, wohingegen die restlichen organischen Horizonte relativ dünn sind.

<sup>1</sup> L,  $O_f$ ,  $O_h$ : Horizonte der organischen Auflage;  $A_h$ , B: Horizonte des Mineralbodens

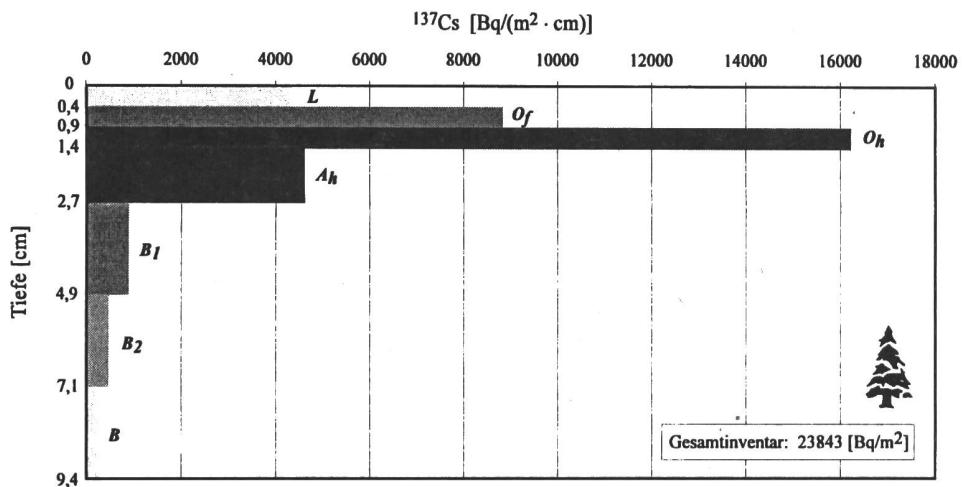


Abb. 3 Tiefenverteilung der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentration Corticiasca (2).

Das Inventar ist am Entnahmestandort Corticiasca (2) mit einem Wert von 23,8 kBq/m<sup>2</sup> wesentlich geringer. Die organische Auflage ist hier mit einer Gesamtmächtigkeit von 1,4 cm sehr dünn. Der extrem dünne O<sub>h</sub>-Horizont von 0,5 cm hat zur Folge, daß die Aktivitätskonzentration sehr hohe Werte annimmt.

Bei beiden Tiefenprofilen in Corticiasca zeigt die geringe Aktivitätskonzentration im B-Horizont deutlich, daß der Horizont tief genug abgetragen wurde, um das gesamte Flächeninventar abschätzen zu können.

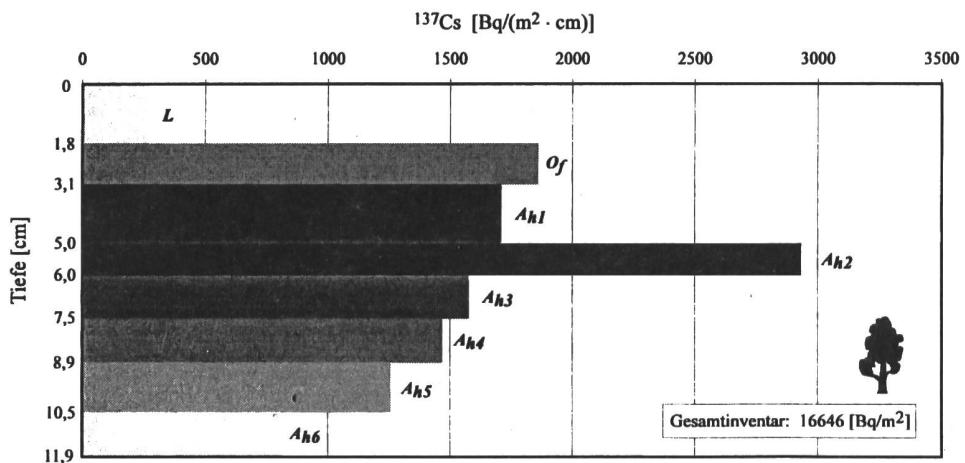


Abb. 4 Tiefenverteilung der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentration Sessa (3).

Die Tiefenprofile aus Sessa unterscheiden sich von denen aus Corticiasca: Am Entnahmestandort Sessa (3) wurde mit 16,6 kBq/m<sup>2</sup> der mit Abstand kleinste Wert für das  $^{137}\text{Cs}$ -Inventar gemessen. Das Hauptmaximum im A<sub>h2</sub>-Horizont bei 6,0 cm ist in großer Tiefe und für die Dicke von nur 1,0 cm sehr niedrig. Auffallend ist, daß viel Cäsium im A<sub>h3</sub>- bis A<sub>h6</sub>-Horizont, also verhältnismäßig tief, zu finden ist. Das lokale Maximum im O<sub>f</sub>-Horizont ist nicht signifikant. Es kann durch einen Fehler in der Dickenbestimmung des Horizontes zustande gekommen sein.

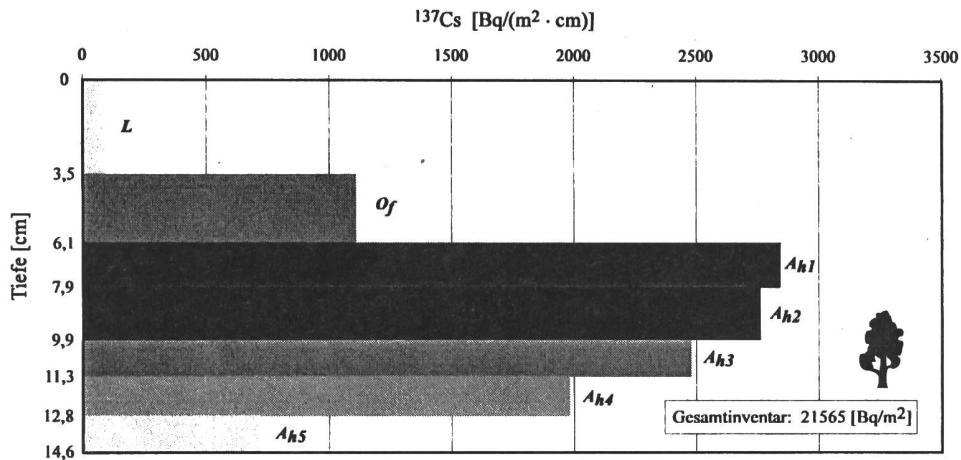


Abb. 5 Tiefenverteilung der  $^{137}\text{Cs}$  - Aktivitätskonzentration Sessa (4).

Die Position Sessa (4) ist mit Sessa (3) vergleichbar. Das Maximum liegt hier in einer Tiefe von 7,9 cm. Die organische Auflage ist mit 6,1 cm etwa doppelt so dick wie bei den restlichen Laubwaldstandorten. Mit einem Wert von 21,6 kBq/m<sup>2</sup> für das Gesamtinventar zählt der Standort zu den weniger stark kontaminierten Positionen.

Bei den beiden Probeorten in Sessa ist die Cäsiumkonzentration im tiefsten gemessenen Horizont mehr als doppelt so hoch wie an den Probenahmestellen in Corticiasca und Fornasette. Daraus ergibt sich folgendes: Das Cäsium wandert an diesen beiden Entnahmestellen besonders schnell in tiefere Bodenschichten. Da im letzten gemessenen Horizont noch viel Cäsium enthalten ist, kann man davon ausgehen, daß nicht das ganze im Boden enthaltene Cäsium berücksichtigt wurde. Die aus diesen Daten berechneten Inventare sind also zu niedrig.

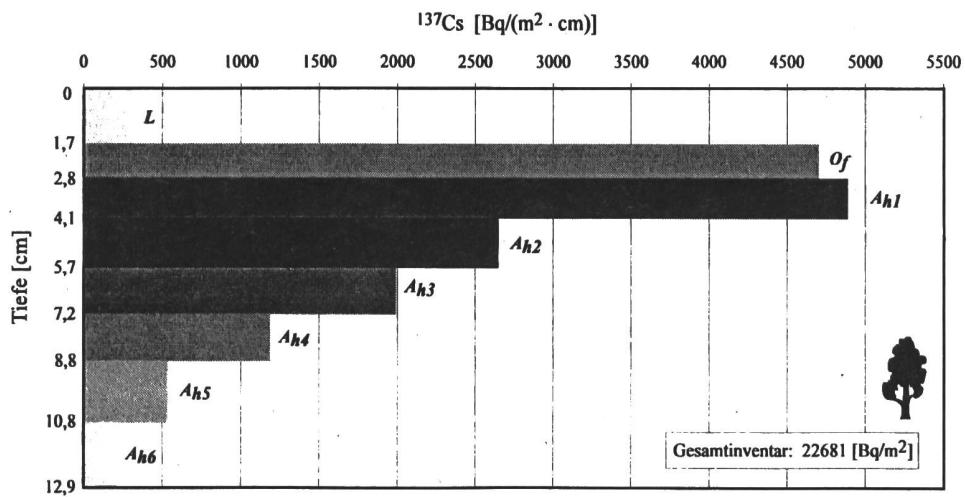


Abb. 6 Tiefenverteilung der  $^{137}\text{Cs}$  - Aktivitätskonzentration Fornasette (5).

Die Tiefenprofile der beiden Probeorte in Fornasette sind ähnlich. Am Probeort Fornasette (5) ist das Inventar mit einem Wert von 22,7 kBq/m<sup>2</sup> für  $^{137}\text{Cs}$  durchschnittlich. Das Maximum der Aktivitätskonzentration liegt hier im mineralischen Ah<sub>1</sub>-Horizont in einer Tiefe von 4,1 cm. Die organische Auflage ist 2,8 cm dick.

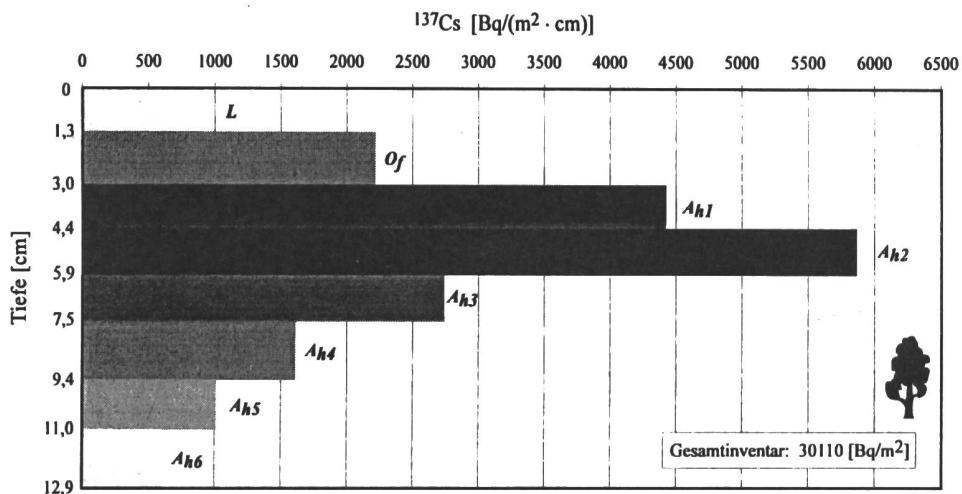


Abb. 7 Tiefenverteilung der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentration Fornasette (6).

Bei Position Fornasette (6) befindet sich das Maximum der Aktivitätskonzentration im  $A_{h2}$ -Horizont in 5,9 cm Tiefe. Der Wert von  $30,1 \text{ kBq}/\text{m}^2$  für das Gesamtinventar ist überdurchschnittlich hoch, was sich auch in der Aktivitätskonzentration der einzelnen Horizonte zeigt.

In Fornasette zeigen beide Profile geringe Cäsiumkonzentrationen im  $A_{h6}$ -Horizont, somit kann man auch hier davon ausgehen, daß an diesen Positionen nahezu das ganze sich im Boden befindende Cäsium berücksichtigt wurde.

Abbildung 8 zeigt einen Vergleich der Inventare der 6 Probenentnahmestellen im Bereich des Lugarersees mit 10 Probeorten im Eggwald /3/. Der Eggwald ist Teil des größten zusammenhängenden Waldgebietes Oberschwabens in der Nähe von Weingarten und wurde von uns besonders intensiv untersucht. Er wird in diesem Projekt als Referenz genommen.

Abbildung 8 zeigt einen Vergleich der Inventare der 6 Probenentnahmestellen im Bereich des Lugarersees mit 10 Probeorten im Eggwald /3/. Der Eggwald ist Teil des größten zusammenhängenden Waldgebietes Oberschwabens in der Nähe von Weingarten und wurde von uns besonders intensiv untersucht. Er wird in diesem Projekt als Referenz genommen.

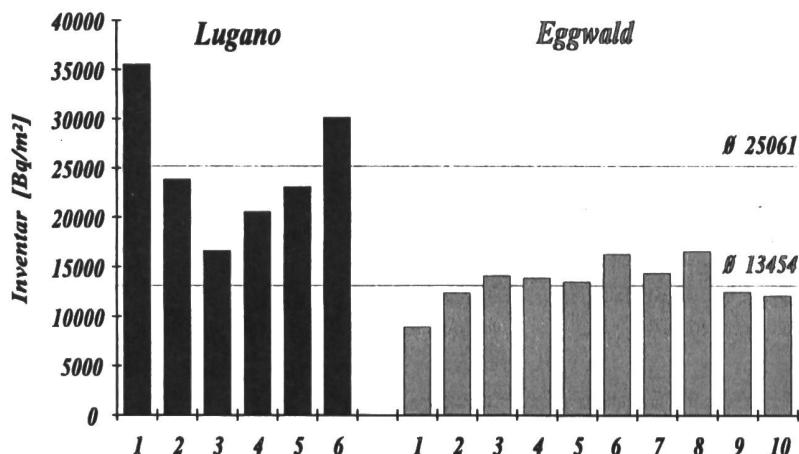


Abb. 8 Vergleich der  $^{137}\text{Cs}$ -Inventare (Tessin - Oberschwaben).

Aus der Graphik ist zu entnehmen, daß die Inventare im Tessin mit einem Wert von 25 kBq/m<sup>2</sup> im Mittel fast doppelt so hoch liegen, wie die Inventare im Eggwald mit 13 kBq/m<sup>2</sup>. Weiterhin ist zu erkennen, daß die Inventare der einzelnen Probeorte im Tessin starke lokale Schwankungen aufweisen, wohingegen die Inventare im Eggwald in deutlich geringerem Maße variieren.

Werden die Inventare der einzelnen Probeorte Corticiasca, Sessa und Fornasette betrachtet, so ist gute Übereinstimmung mit den von Czarnecki in /1/ aufgeführten Werten festzustellen. In der vorliegenden Arbeit ergeben die gemittelten Werte beider Entnahmestellen für Corticiasca den Wert 30 kBq/m<sup>2</sup>, für Sessa den Wert 19 kBq/m<sup>2</sup> und für Fornasette den Wert 26 kBq/m<sup>2</sup>. Czarnecki hat in Corticiasca ca. 26 kBq/m<sup>2</sup>, in Sessa ca. 17-21 kBq/m<sup>2</sup> und Fornasette ca. 21 kBq/m<sup>2</sup> gemessen, d.h. unsere Meßwerte liegen im Mittel etwa 13% höher.

Der Maximalwert des Inventars bei Corticiasca (1) ist mehr als doppelt so hoch wie der Maximalwert im Eggwald, sogar der niedrigste Wert im Tessin bei Sessa (3) liegt noch über dem Maximalwert im Eggwald.

Zum Vergleich der Tiefenverteilungen der Aktivitätskonzentration im Tessin mit denen Oberschwabens ist in Abbildung 9 ein Tiefenprofil dargestellt, wie es typisch für diese Region ist. Die Grafik ist eine Mittelung über zehn im Eggwald entnommene Profile.

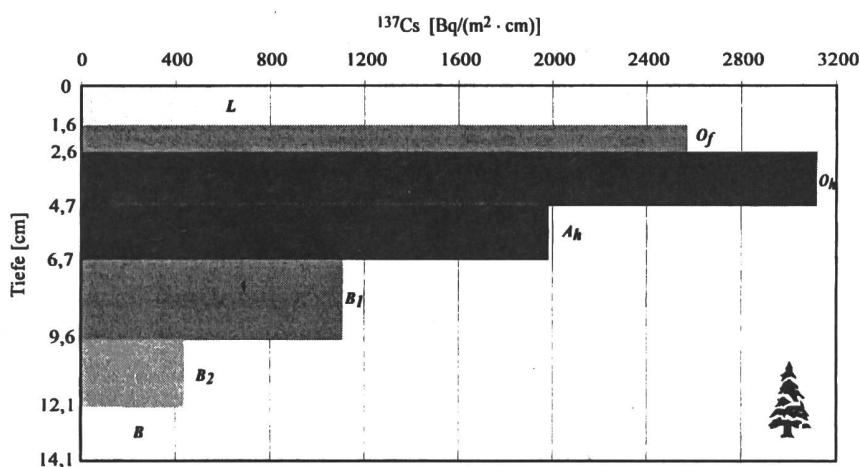


Abb. 9 Tiefenverteilung der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentration Eggwald 1-10 (Oberschwaben).

Das oben abgebildete Tiefenprofil hat einige typische Merkmale. Es hat ein Maximum der Aktivitätskonzentration im O<sub>h</sub>-Horizont, wobei sich die Grenze zwischen organischer Auflage und Mineralboden in einer für den Eggwald typischen Tiefe von ca. 4,7 cm befindet. Die Abbildung zeigt auch, daß die Mächtigkeit des O<sub>h</sub>-Horizontes normalerweise etwas größer ist als die des O<sub>f</sub>-Horizontes. Man erkennt eine deutliche Abnahme der Aktivitätskonzentration mit wachsender Tiefe, so daß in den unteren mineralischen Bodenhorizonten nur noch wenig Cäsium enthalten ist.

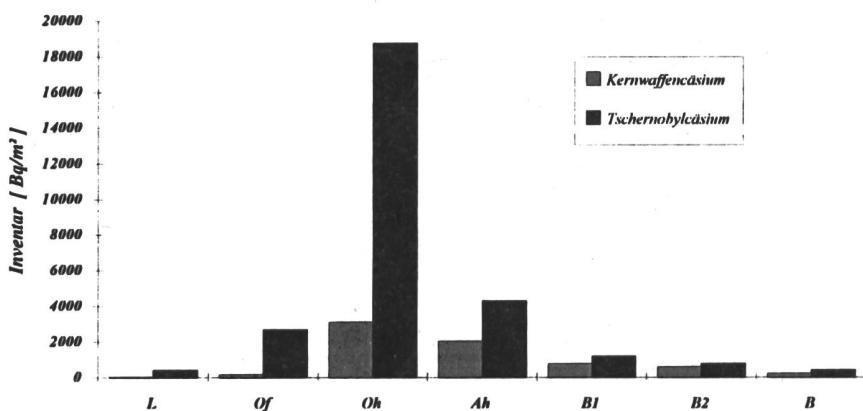
Die Tiefenprofile der Standorte Corticiasca und Fornasette sind vergleichbar mit denen Oberschwabens. Jedoch schwankt die Tiefe der maximalen Aktivitätskonzentration stärker und liegt zwischen ca. 1 und 5 cm.

Die Tiefenprofile von Sessa unterscheiden sich sowohl von den übrigen Profilen der erhobenen Standorte als auch vom Tiefenprofil des Eggwaldes. Das Maximum bei einer Tiefe von 7,9 cm liegt fast doppelt so tief wie im Eggwald, bzw. wie in Corticiasca und Fornasette.

### 3.16.4. Horizontspezifische Anteile am $^{137}\text{Cs}$ -Inventar

Die folgenden Diagramme zeigen die Anteile des  $^{137}\text{Cs}$  von Tschernobyl und den Kernwaffentests am Inventar für die verschiedenen Bodenhorizonte am Beispiel von zwei Probeorten: Corticiasca (1) in Abb. 10 und Fornasette (6) in Abb. 11.

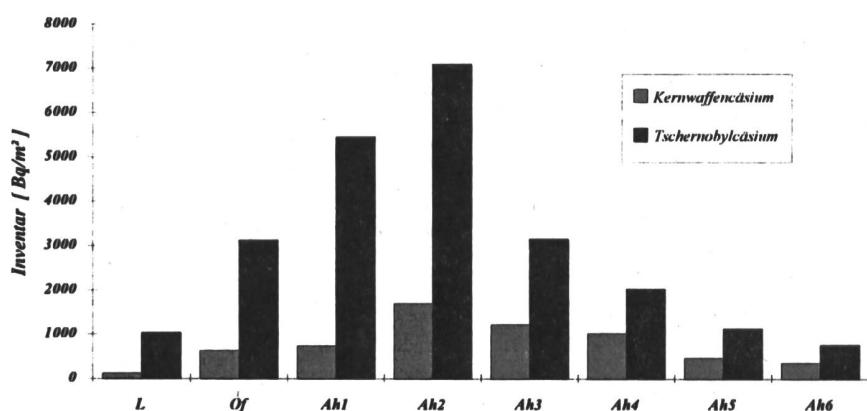
**Probenentnahmestelle Corticiasca (1)**



**Abb. 10 Horizontspezifische Anteile des  $^{137}\text{Cs}$  von Tschernobyl und den Kernwaffentests.**

Am Entnahmestandort Corticiasca (1) liegen beide Maxima der Inventare im organischen  $\text{O}_\text{h}$ -Horizont in einer Tiefe von 3,6 cm. Besonders auffallend ist hier sowohl das überdurchschnittlich hohe Tschernobyl- wie auch Kernwaffentest-Inventar (über 60% des im Boden enthaltenen Cäsums befindet sich in dieser  $\text{O}_\text{h}$ -Auflage). Die Kurvenform ist typisch für die Verteilung im Boden: Ein steiler Anstieg mit einem deutlich zu erkennenden Peak und danach ein steiler Abfall.

**Probenentnahmestelle Fornasette (6)**



**Abb. 11 Horizontspezifische Anteile des  $^{137}\text{Cs}$  von Tschernobyl und den Kernwaffentests.**

Am Probeort Fornasette (6) auf dem geologischen Untergrund Alumosilikatgneis liegen beide Maxima im  $A_{h2}$ -Horizont in einer Tiefe von 5,9 cm. Die Maxima sind deutlich ausgeprägt und fallen zu beiden Seiten hin gleichmäßig ab.

Die Abbildungen 10 und 11 zeigen, daß die Cäsium-Radionuklide nur sehr langsam im Boden wandern können. Es liegt daher nahe, daß im Boden Fraktionen enthalten sind, die Cäsium-Ionen irreversibel binden können.

Dies wird verständlich, wenn von der Adsorption von Cäsium an Tonmineral-Partikeln ausgegangen wird. Von einer solchen Adsorptionsbindung aus können die Cäsium-Ionen entweder in einen irreversiblen Bindungsplatz (Einbau) übergehen oder desorbieren. Durch den irreversiblen Einbau des Cäsiums wird die Mobilität des Cäsiums im Boden verringert.

Der Schiefergneis am Standort Corticiasca ist ein Schichtsilikat, bestehend aus Quarz, Albit und Glimmer. Gerade der Glimmer vermag, den Cäsium-Ionen feste spezifische Bindungsplätze anzubieten /4/.

Am Standort Fornasette auf Alumosilikatgneis dürften vor allem die Zeolithe des Raumgitter-Alumosilikates für die Bindung verantwortlich sein, bei dem die Fähigkeit zum Einbau von Kationen bekannt ist /4/.

### 3.16.5. Desorption von $^{137}\text{Cs}$ aus Waldböden

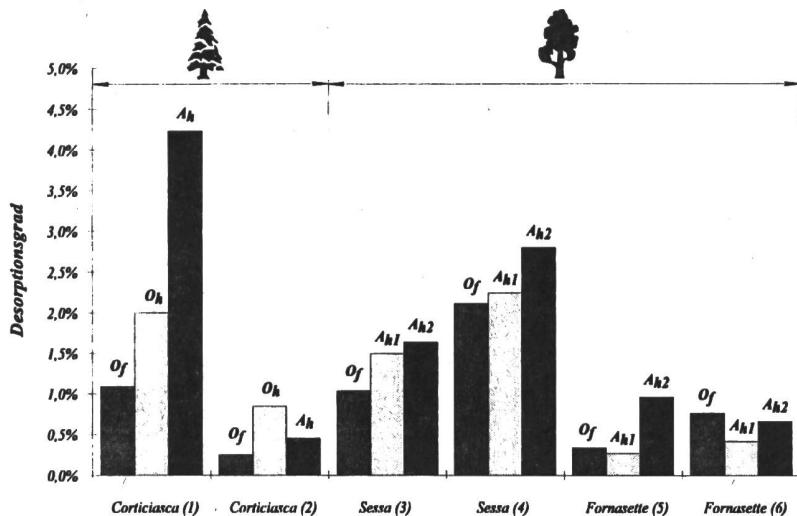


Abb. 12 Desorptionsgrade aus Waldböden an verschiedenen Standorten.

Wie aus Abbildung 12 ersichtlich, sind die Desorptionsgrade an den Fichtenwaldstandorten sehr unterschiedlich. So schwankt an den Beprobungsorten Corticiasca (1) und Corticiasca (2) der Desorptionsgrad im  $A_h$ -Horizont um den Faktor 10.

Im Laubwald liegt der Desorptionsgrad an den Standorten Fornasette (5) und (6) bei den verschiedenen Bodenhorizonten zwischen 0,5% und 1%, während die Standorte in Sessa (3) und (4) höhere Desorptionsgrade von 1% bis 3% aufweisen.

Die Ergebnisse deuten auf eine höhere Verfügbarkeit der Cs-Ionen in Sessa hin, d.h. die Cs-Ionen sind nicht so fest (irreversibel) gebunden wie auf dem geologischen Untergrund Alumosilikatgneis in Fornasette. Dies könnte ein Indiz dafür sein, daß in dem sandigen Boden an diesem Standort wenig Tonminerale, d.h. spezifische Bindungsplätze enthalten sind, die das Cäsium irreversibel binden können.

Auffallend ist außerdem, daß bei vielen Entnahmestellen der Desorptionsgrad im unteren  $A_h$ -bzw.  $A_{h2}$ -Horizont größer als in den organischen Horizonten ist. In Oberschwaben nimmt der Desorptionsgrad in diesen mineralischen Horizonten meistens ab.

### 3.16.6. $^{137}\text{Cs}$ Transfer vom Boden in die Pflanze

Als Maß für den  $^{137}\text{Cs}$ -Transfer vom Boden in die Pflanze wird der aggregierte Transferfaktor ( $\text{m}^2/\text{kg}$ ) verwendet, der definiert ist als spezifische Aktivität ( $\text{Bq}/\text{kg}$ ) der getrockneten Pflanze, geteilt durch das Inventar ( $\text{Bq}/\text{m}^2$ ) am Standort der Pflanze.

In Abbildung 13 sind die Transferfaktoren für verschiedene Pflanzen an den beprobten Standorten im Tessin dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, daß der Dornfarn an allen vier Standorten einen ähnlichen Transferfaktor aufweist (ca. 0,0014 - 0,0035  $\text{m}^2/\text{kg}$ ), daß hingegen der Transferfaktor für die Dornfarn-Wurzel um etwa eine Zehnerpotenz höher ist und stark variiert. Die Pflanzen Zwergbuchs und Efeu haben mit 0,0021  $\text{m}^2/\text{kg}$  und 0,0063  $\text{m}^2/\text{kg}$  einen ähnlichen Transferfaktor wie der Dornfarn. An den beiden Fichtenwaldstandorten Corticiasca (1) und (2) wurden keine Pflanzen gefunden.

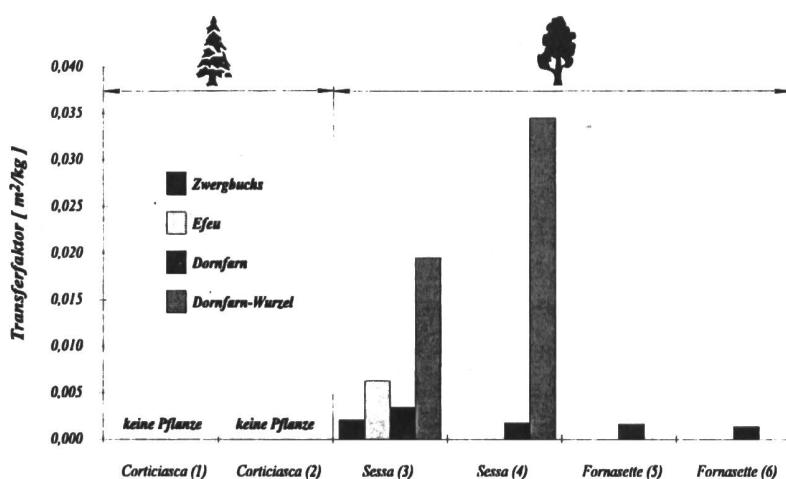
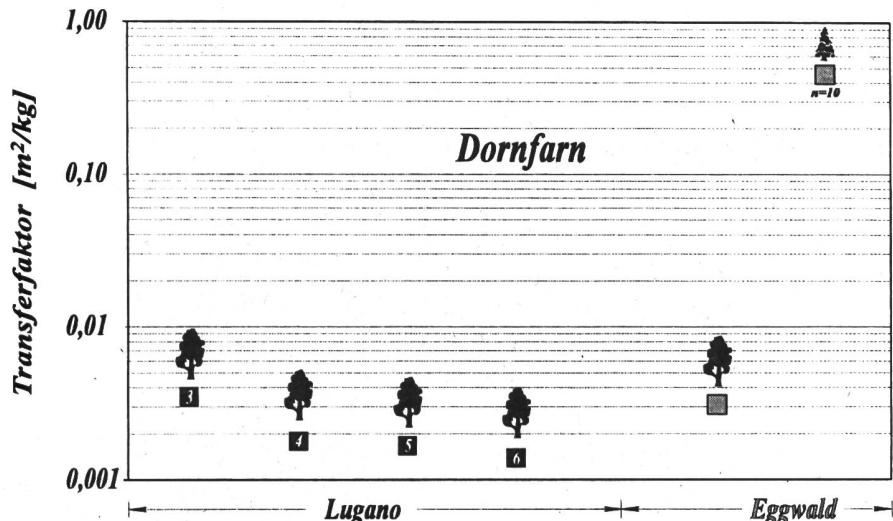


Abb. 13 Transferfaktoren für Pflanzen an Standorten im Tessin.



**Abb. 14 Vergleich der Transferfaktoren (Tessin-Oberschwaben) für den Dornfarn.**

Abbildung 14 zeigt den Vergleich der Transferfaktoren im Tessin mit den in Oberschwaben (Eggwald) gemessenen Werten. Der Dornfarn wird als Referenzpflanze verwendet, da er an allen Laubwaldstandorten um Lugano zu finden ist und auch Werte aus dem Eggwald zur Verfügung stehen.

Die Pflanzen Zwergbuch und Efeu sind untypisch für die Wälder Oberschwabens. Ein Vergleich der Transferfaktoren ist für diese Pflanzen somit nicht möglich.

Der Transferfaktor am Laubwaldstandort in Oberschwaben stimmt gut mit den Werten im Tessin überein. Außerdem ist zu sehen, daß der Wert für den Fichtenwaldstandort Oberschwabens um ca. zwei Zehnerpotenzen größer ist als bei einem vergleichbaren Laubwaldstandort im Tessin. Bei diesem Transferfaktor im Fichtenwald handelt es sich um eine Mittelung über zehn Werte.

Der Transferfaktor einer Pflanze hängt stark davon ab, aus welchem Bodenhorizont die Pflanze ihre Nährstoffionen bezieht. Dabei spielen mehrere Parameter eine Rolle. Charakteristische Walddaten wie Humusform, Bodentyp, Bodenart und Korngröße sind wichtige Faktoren. Unsere jüngsten Untersuchungen im südlichen Baden-Württemberg haben ergeben, daß die Humusform das wichtigste Kriterium für den Transfer darstellt. An schwach entwickelten Humusformen wie Rohhumus oder Moder wurde ein höherer Pflanzentransfer gemessen als bei der sehr stark entwickelten Humusform O<sub>f</sub>-Mull. Der Bodentyp ist dabei nur als indirekter Parameter zu werten, da die Humusentwicklung auch von der Bestockung abhängt. Der geologische Untergrund kann nach neuesten Ergebnissen nicht direkt in Zusammenhang mit dem Transferverhalten in Zusammenhang gebracht werden. Bodenart und Korngröße spielen ebenfalls eine untergeordnete Rolle [5].

### **3.16.7. Zusammenfassung**

Um Lugano wurden an sechs Positionen Bodenhorizonte und Pflanzen entnommen. Es wurde die  $^{137}\text{Cs}$ -Tiefenverteilung und die  $^{137}\text{Cs}$ -Inventare im Boden gemessen, der Transferfaktor Boden-Pflanze sowie der Desorptionsgrad bestimmt.

Bei vier Profilen im Kanton Tessin nahe Lugano ist das Maximum der Aktivitätskonzentration, ähnlich wie in Oberschwaben, in einer Tiefe bis ca. 4,7 cm zu finden. Bei den beiden Standorten in Sessa liegt das Maximum bereits doppelt so tief. Die Gesamtinventare weisen mit Werten von 16,6 bis 35,5 kBq/m<sup>2</sup> starke lokale Schwankungen auf. Im Mittel sind die Inventare im Tessin jedoch fast doppelt so hoch wie in der Umgebung von Weingarten.

Der Transfer von  $^{137}\text{Cs}$  vom Boden in die Pflanze ist in den bepropten Standorten ähnlich niedrig wie in Oberschwaben. Speziell der Transferfaktor des Dornfarn mit Werten von 0,0014 bis 0,0035 m<sup>2</sup>/kg steht in guter Übereinstimmung mit dem Wert von 0,0031 m<sup>2</sup>/kg in Oberschwaben. Zwergbuchs und Efeu haben mit 0,0021 bzw. 0,0063 m<sup>2</sup>/kg einen ähnlich geringen Transferfaktor wie der Dornfarn.

Der Desorptionsgrad für  $^{137}\text{Cs}$  in Fornasette entspricht mit Werten zwischen 0,3% bis 1% weitgehend den typischen Werten von ca. 1% in Laubwäldern Oberschwabens. In Sessa sind die Werte etwa doppelt so hoch und bestätigen die dort gemessene höhere Migrationsgeschwindigkeit des  $^{137}\text{Cs}$ . An den beprobten Fichtenwaldstandorten in Corticiasca treten starke Schwankungen des Desorptionsgrades auf. Lediglich Corticiasca (1) kommt mit seinem Maximalwert von 4,2% nahe an den für Oberschwaben typischen Wert des Desorptionsgrades von 5% bis 10%.

### **3.16.8. Ausblick auf die Fortführung des Projekts**

Nach diesen orientierenden Untersuchungen in Waldgebieten im südlichen Tessin und im Luganersee sind weitere Messungen notwendig, um die bisherigen Ergebnisse zu vervollständigen.

Die horizontspezifische Tiefenverteilung von Radiocäsium im Boden soll an weiteren Standorten im Tessin vermessen werden. Es soll geprüft werden, ob die Besonderheiten der schnellen Tiefenverlagerung am Probenort Sessa durch weitere Messungen bestätigt werden können. Durch Sammeln von charakteristischen Bodendaten dieser Region soll geprüft werden, ob die schnelle Tiefenverlagerung mit einem geringen Vorkommen von Tonmineralen zusammenhängt. Auch der gemessene hohe Desorptionsgrad in Sessa soll durch ein Extraktionsverfahren ergänzt werden, um Erkenntnisse zu gewinnen, wieviel Cäsium an die organische Fraktion gebunden ist.

Neue Ergebnisse haben gezeigt, daß Humusform und Bodentyp den Pflanzentransfer wesentlich bestimmen /5/. Deshalb erscheint es sinnvoll, auch für bereits beprobte Orte diese Daten zu sammeln. Weitere Parameter wie Bodenart, Korngrößenverteilung, Geologie und genaue Niederschlagsmengen, einschließlich Besonderheiten wie z.B. heftige Gewitter, sollen ergänzt und berücksichtigt werden.

Das Projekt wird im Jahr 1995 fortgeführt.

### 3.16.9. Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde mit Mitteln aus dem Forschungsvertrag 108685 der GRD, AC-Laboratorium Spiez teilfinanziert. Es handelt sich um eine Zusammenfassung aus dem entsprechenden Jahresbericht /6/.

### 3.16.10. Literaturverzeichnis

- /1/ Czarnecki, J., Cartier, F., Honegger, P., Zurkinden, A.: Bodenverstrahlung in der Schweiz aufgrund des Reaktorunfalls in Chernobyl, in: Radioaktivitätsmessungen in der Schweiz nach Tschernobyl und ihre Wissenschaftliche Interpretation, Band I, Universität Bern, 1986.
- /2/ Giese, W.: Das Verhalten von Radiocäsium bei Laboratoriums- und Haustieren sowie Möglichkeiten zur Verminderung der radioaktiven Strahlenbelastung, Habilitationsschrift, Tierärztliche Hochschule Hannover, 1971.
- /3/ Bürmann, W., Drissner, J., Miller, R., Heider, R., Lindner, G., Zibold, G., Sykowa, T.: Migration of  $^{134,137}\text{Cs}$  Radionuclides in the Soil and Uptake by Plants in German Spruce Forests, Radiochimica Acta 66/67, 373-380, 1994
- /4/ Di Gleria J., Klimes-Szmik A., Dvoracsek, M.: Bodenphysik und Bodenkolloidik, VEB Fischer Verlag, Jena, 1962
- /5/ Enslin, F.: Kartierung der Bioverfügbarkeit von Cäsium-Radionukliden in Waldgebieten im südlichen Baden-Württemberg, Diplomarbeit, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, 1994.
- /8/ Miller, R., Klenk, Th., Zibold, G., Klemt, E.:
  - I) Tiefenverteilung und Transfer Boden-Pflanze von Cäsium-Radionukliden in Waldgebieten im südlichen Voralpengebiet und Vergleich zum nördlichen Voralpengebiet.  
und
  - II) Einschwemmung von Cäsium-Radionukliden in den Lugarer See und Vergleich zum Bodensee.  
Weingarten, 1994.  
Abschlußbericht Vertrag 108685, GRD, AC-Laboratorium Spiez, 3700 Spiez

## 3.17. ERGEBNISSE DER GANZKÖRPERMESSUNGEN

**M. Boschung <sup>1)</sup>, A. Donath <sup>2)</sup> und H. Völkle <sup>3)</sup>**

1) Abteilung Strahlenhygiene, PSI, 5232 VILLIGEN-PSI

2) Abt. Nuklearmedizin des Kantonsspital, Av. Micheli-du-Crest 24, 1211 GENEVE 4

3) Sektion Überwachung der Radioaktivität, BAG, Ch. du Musée 3, 1700 Fribourg

### 3.17.1. 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. Im menschlichen Körper ist immer noch an Caesium-137 nachweisbar, das vom Reaktorunfall in Tschernobyl stammt. Die Messwerte an Schülern aus Genf haben weiter abgenommen und liegen alle unter 10 Bq.*

### 3.17.2. Ziel der Messungen

Im PSI werden zur Zeit Ganzkörpermessungen nur zur Überwachung der beruflich strahlenexponierten Personen des PSI eingesetzt, von denen viele im Kanton Aargau wohnen. Bei Ereignissen mit Verdacht auf Inkorporation radioaktiver Stoffe können auch Personen der Bevölkerung gemessen werden. Bei den Messungen am Kantonsspital Genf handelt es sich um rund zwanzig 17-19-jährige Mädchen und Knaben aus einem Genfer Gymnasium.

### 3.17.3. Ergebnissen und Interpretation

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

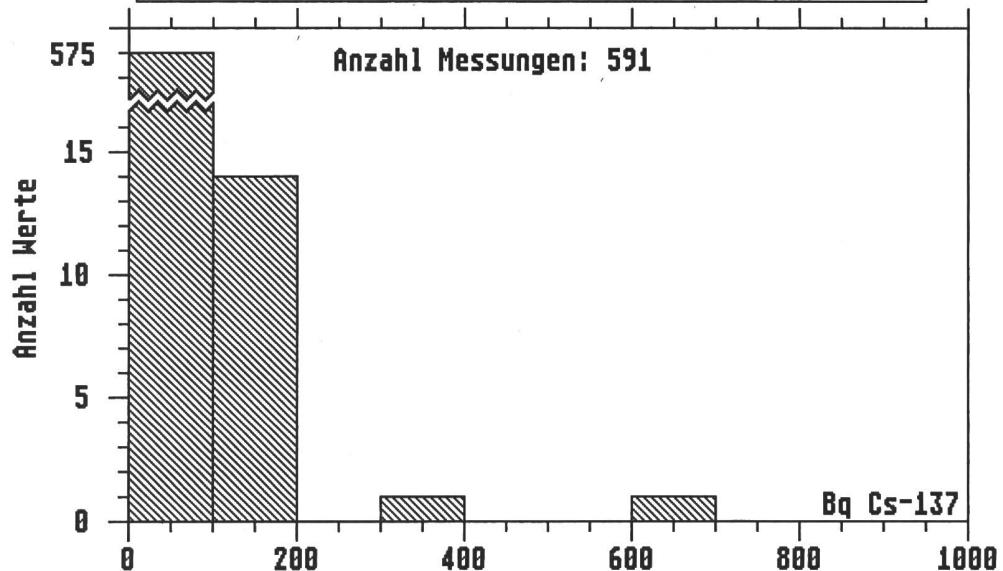
Im Rahmen der Inkorporationsüberwachung der beruflich strahlenexponierten Personen wurden am PSI 1994 591 Messungen im Ganzkörperzähler durchgeführt. Über 95% der Messwerte liegen unterhalb der Nachweisgrenze von 100 Bq (Fig. 1).

Die Messwerte an Gymnasiasten aus Genf haben weiter abgenommen und lagen durchwegs unter 10 Bq Caesium-137. Der zeitliche Verlauf der Caesiumaktivität dieser Messreihe ist auf Fig. 2 dargestellt; dabei ist deutlich die Abnahme des Tschernobyl-Einflusses zu erkennen. Da Caesium, wie Kalium, vor allem in das Muskelgewebe geht und bei Männern der Anteil Muskelgewebe am Gesamtkörpergewicht grösser ist als bei Frauen, haben die Männer auch einen höheren Kalium- und Caesium-Gehalt als diese.

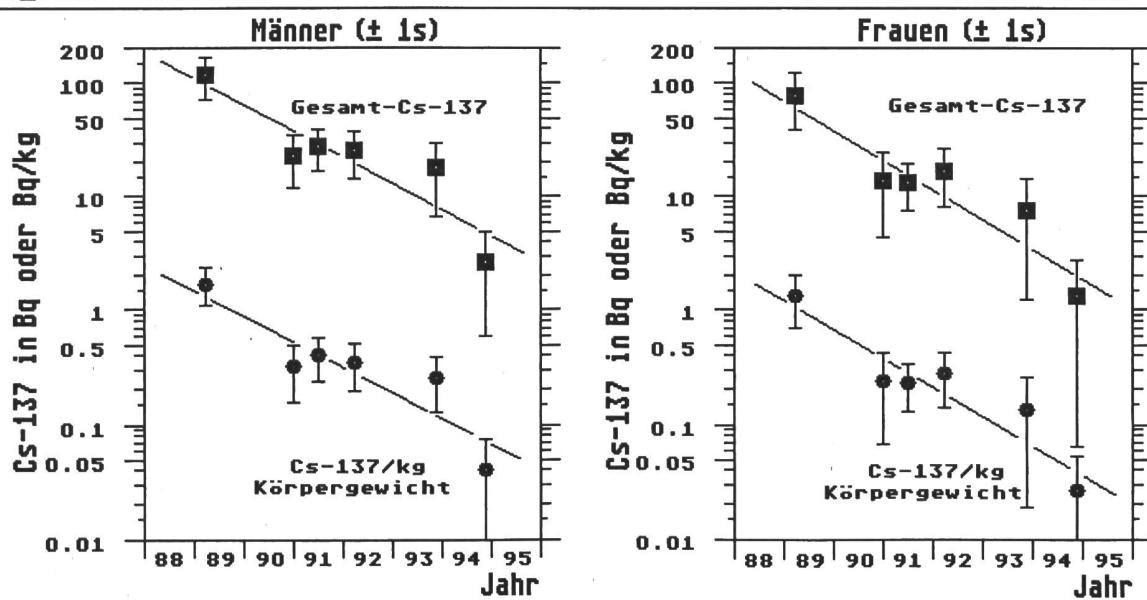
Ein dauernder Gehalt von 100 Bq Caesium-137 im Körper einer 70 kg schweren Person führt zu einer Jahresdosis von ca. 0.003 milli-Sievert. Die Caesium-137-Werte der Genfer Schülern

entsprechen somit weniger als 0.0003 milli-Sievert pro Jahr. Demgegenüber beträgt die mittlere Jahresdosis durch das natürliche Kalium-40, das wie Caesium im Muskelgewebe eingebaut wird (2.4 g/kg d.h. 71 Bq/kg bei den Knaben bzw. 1.8 g/kg d.h. 55 Bq/kg bei den Mädchen), ca. 0.2 milli-Sievert.

**Fig. 1: Ganzkörpermessungen am Paul-Scherrer-Institut 1994**



**Fig. 2: GANZKÖRPERMESSUNGEN AN GYMNASIASTEN AUS GENF**



### **3.18. INTERCOMPARAISON DE TERRE CONTAMINEE PAR DU CESIUM RADIOACTIF**

**J.-F. Valley<sup>1</sup>, J.-J. Geering<sup>1</sup>, M. Décombaz<sup>1</sup>, J.-J. Gostely<sup>1</sup>, H. Völkle<sup>2</sup>**

- 1) Institut de radiophysique appliquée  
Centre universitaire, 1015 Lausanne
- 2) Section de surveillance de la radioactivité  
Office fédéral de la santé publique, Fribourg

#### **3.18.1. Introduction**

Dans le cadre de la surveillance de la radioactivité en Suisse, l'Institut de radiophysique appliquée (Lausanne) et la Section de surveillance de la radioactivité (Fribourg) ont organisé en 1994 une intercomparaison de l'activité des émetteurs  $\gamma$  dans des échantillons de terre contaminée.

L'objectif de cette intercomparaison est la vérification de la consistance des mesures dans les conditions rencontrées dans la pratique, à savoir un échantillon de terre contenant comme contaminant artificiel du césium-137 et du césium-134. La mesure du potassium-40 était également demandée. Pour les autres radioéléments naturels, leur mesure était facultative.

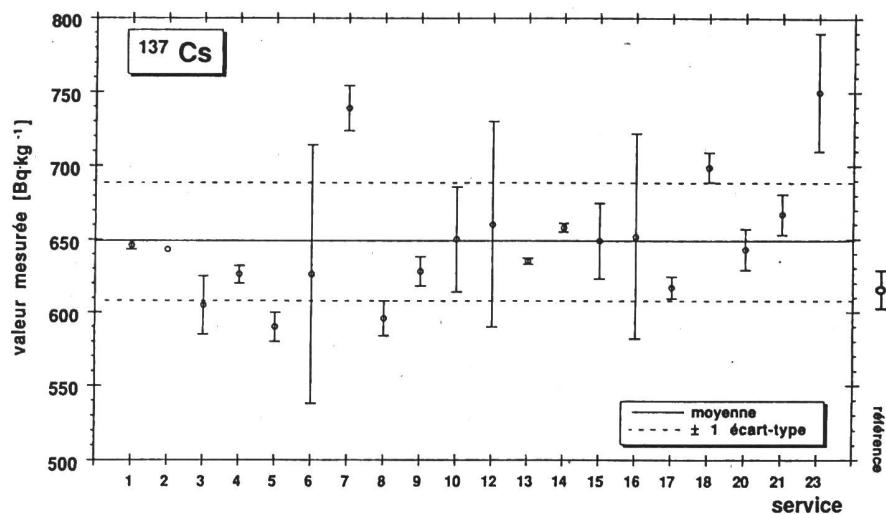
Vingt laboratoires, dont 9 laboratoires cantonaux, ont participé à l'intercomparaison

#### **3.18.2. Qualification des échantillons**

La terre utilisée pour l'intercomparaison provenait de prélèvements effectués au Tessin après l'accident de Tchernobyl. Après séchage, tamisage et broyage en poudre fine, les échantillons de terre ( $\sim 500$  g), après avoir subi une mesure d'activité qui a vérifié l'homogénéité du lot, ont été transmis aux participants.

Sur un échantillon, une détermination de référence a été effectuée par le groupe de radiométrie de l'IRA pour le césium-137, le césium-134 et le potassium-40. L'incertitude sur la concentration radioactive des échantillons est de l'ordre de 3,5 % pour chacun de ces radioéléments.

**Figure 1: Résultats de l'intercomparaison pour le césium-137**



### 3.18.3. Résultats

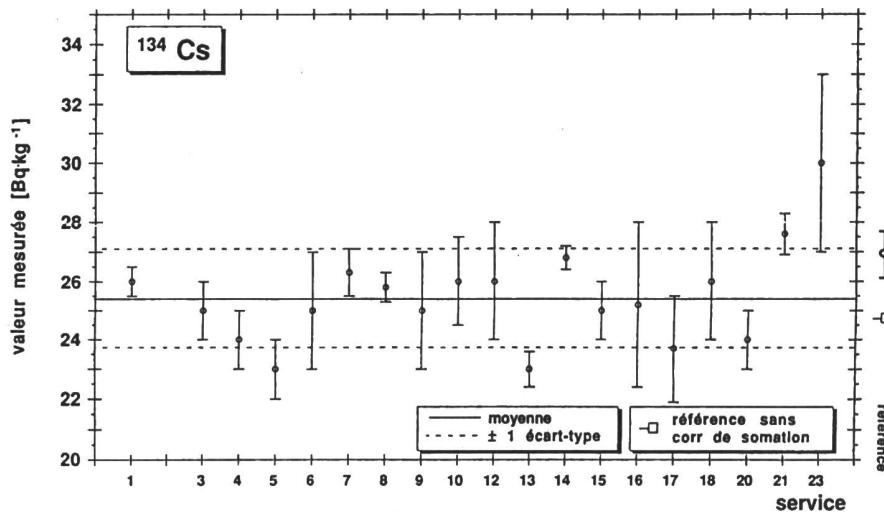
Les résultats de l'intercomparaison sont donnés aux figures 1 à 3 pour le césium-137, le césium-134 et le potassium-40. On observe en règle générale une bonne concordance des résultats et une moyenne assez proche de la détermination de référence. Dans le cas du césium-134 la valeur de référence sans correction de sommation est plus proche de la moyenne; ce résultat est compatible avec le fait que la correction de sommation n'a en général pas été effectuée par les participants. Les résultats obtenus pour les autres radioéléments, principalement les produits de filiation des séries du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 ont mis en évidence les difficultés de mesure liées aux faibles concentrations et les problèmes d'identification engendrés par le grand nombre de nuclides en présence.

### 3.8.4. Conclusions

L'intercomparaison a mis en évidence une bonne concordance pour les radioéléments attendus, à savoir le césium-137, le césium-134 et le potassium; l'écart-type des résultats est situé entre 6 et 8 % et la dispersion est de l'ordre de 25 %.

Nous remercions tous les participants pour leur collaboration.

**Figure 2: Résultats de l'intercomparaison pour le césium-134**



**Figure 3: Résultats de l'intercomparaison pour potassium-40**

