

<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>	- (1995)
<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:** 08.01.2026

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

### 3. Allgemeine Überwachung<sup>1)</sup>

#### 3.1. Luft, Niederschläge, Flusswasser, Boden, Gras

H. Surbeck und G. Ferreri

Sektion Überwachung der Radioaktivität (SUeR)

Bundesamt für Gesundheit, ch. du Musée 3, 1700 FRIBOURG

##### 3.1.1. Zusammenfassung

Die Aktivität künstlicher Radionuklide war auch 1995 in den Niederschlägen und im Flusswasser sehr tief.  $^{137}\text{Cs}$  war nur in wenigen Proben im Bereich mBq/Liter feststellbar.

In den Aerosolproben waren die Aktivitäten künstlicher Radionuklide 1995 kaum mehr messbar. 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 Boden-, Gras- und Milchproben war der Einfluss des Tschernobyl-Fallouts von 1986 nach wie vor zu erkennen.

##### 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.

##### 3.1.3. Methodik

Probenahme und Probenvorbereitung für die routinemässige gammaspektrometrische Analyse wurden in früheren Jahresberichten (siehe Bericht 1992, Seite B.3.1.1.) beschrieben.

##### 3.1.4. Ergebnisse

Untenstehend werden die Resultate der Proben gezeigt, die gemäss dem Probenahmeplan erhoben und im Labor der SUeR gemessen wurden.

Bei den Boden-, Gras- und Milchproben sind auch die von anderen Labors des Bundes und den kantonalen Laboratorien mitgeteilten Resultate enthalten.

###### Aerosolproben

###### a) Höhenflugfilter

Da die bisher von der Schweizer Armee für unsere Höhenflugfilter benützten Flugzeuge ausgemustert wurden, stehen seit 1995 keine Aerosolproben aus grosser Höhe mehr zur Verfügung.

---

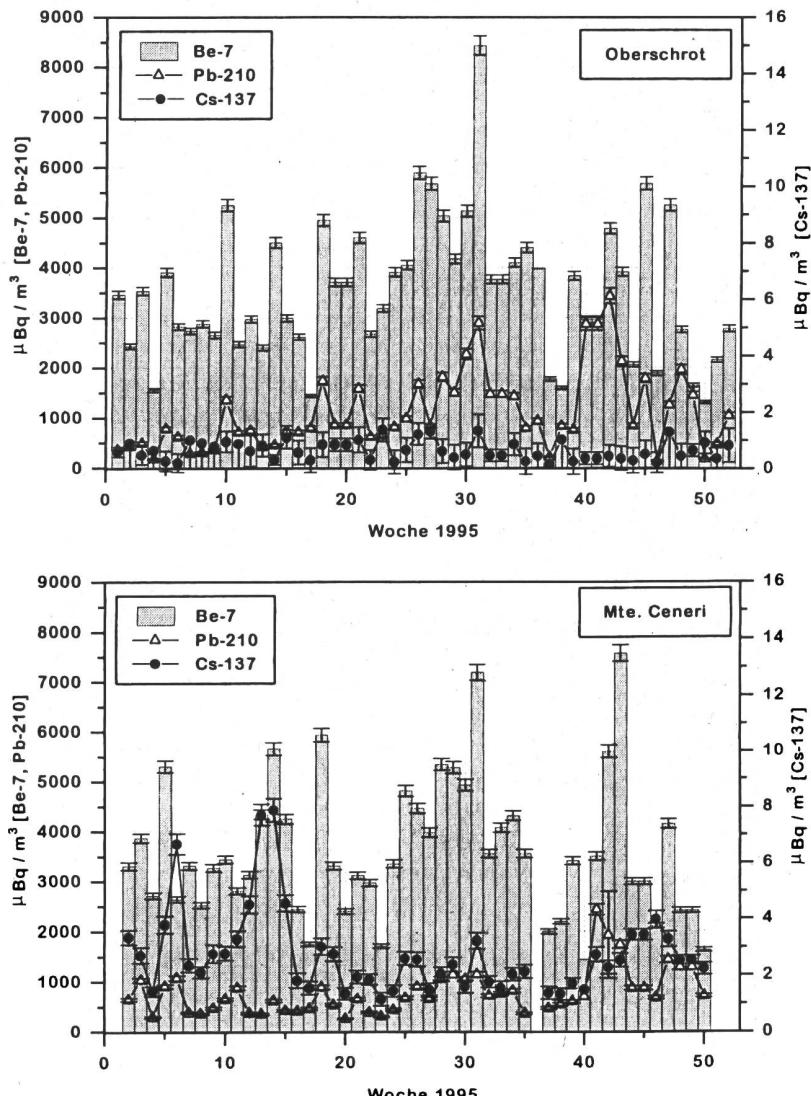
1) Überwachung der Kernanlagen siehe Kap. 4

### b) Aerosol-Sammler mit grossem Durchfluss

Ende 1995 konnte der Testbetrieb mit einem weiteren Aerosol-Sammler mit grossem Durchfluss ( $600 \text{ m}^3/\text{h}$ ) aufgenommen werden, in Güttingen (TG). Erste Daten für diese Station werden im Jahresbericht 1996 folgen. Die Daten, die mit den Aerosolsammlern auf dem Mte. Ceneri und in Oberschrot/FR 1995 gesammelt wurden, sind in der Figur 1 zu sehen.

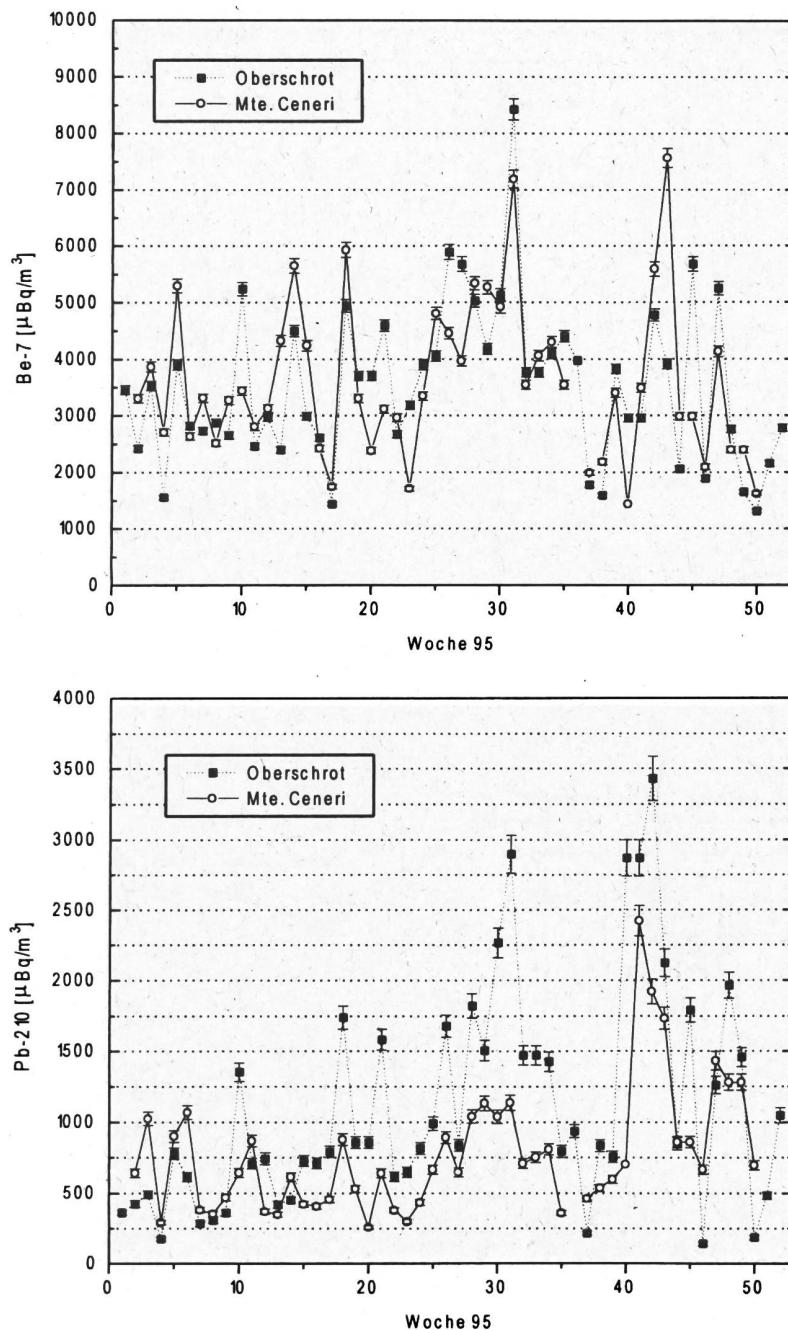
Die  $^{137}\text{Cs}$ -Werte auf dem Mte.Ceneri liegen deutlich höher als in Oberschrot, was auf die höhere Aktivität der resuspendierten Teilchen im Tessin zurückzuführen sein könnte. Der Kanton Tessin wurde 1986 vom Tschernobyl-Fallout stärker betroffen als der Kanton Freiburg.  $^{134}\text{Cs}$  konnte 1995 in Oberschrot nicht mehr und auf dem Mte.Ceneri nur noch vereinzelt nachgewiesen werden (Nachweisgrenze ca.  $0.3 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ).

Figur 2 zeigt den Verlauf der  $^7\text{Be}$ - und  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäts-Konzentrationen für die beiden Stationen. Während die  $^7\text{Be}$  Werte nördlich und südlich der Alpen praktisch gleich gross sind, sind die  $^{210}\text{Pb}$ -Konzentrationen in Oberschrot meist deutlich höher als auf dem Mte.Ceneri. Eine mögliche Erklärung dafür könnte sein, dass nördlich der Alpen der Beitrag kontinentaler Luft grösser ist als südlich der Alpen.



Figur 1

$^7\text{Be}$ -  $^{210}\text{Pb}$ - und  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentration in Aerosolproben an den Stationen Oberschrot und Monte Ceneri.



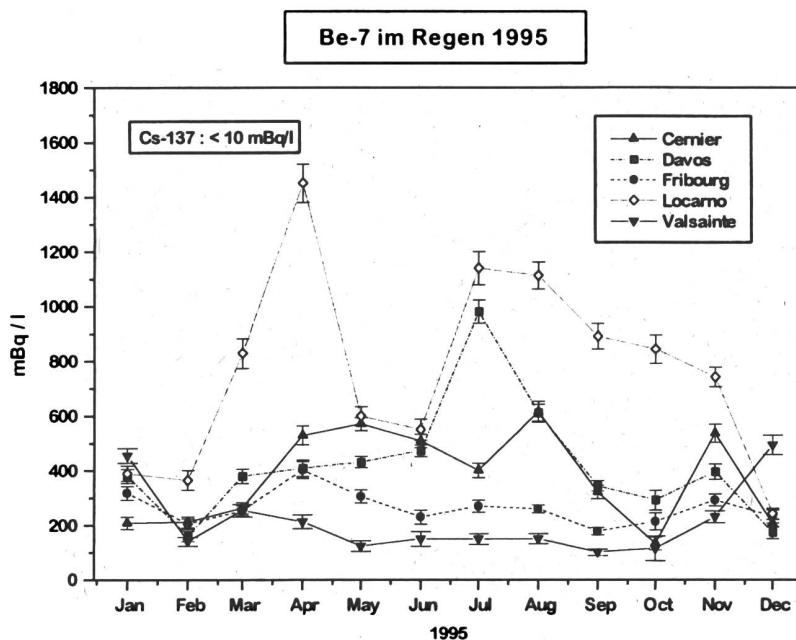
**Figur 2**

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

### Regen und Trockenstaub-Ablagerungen

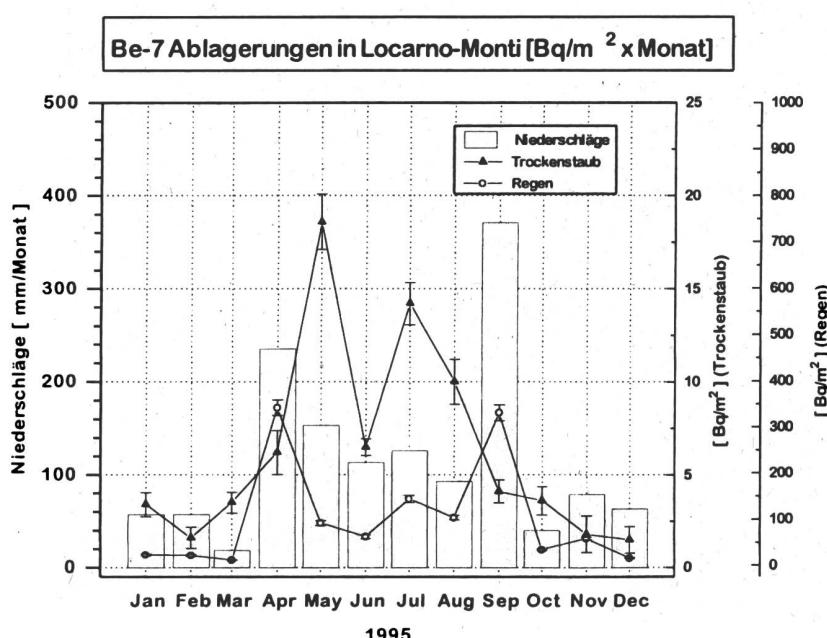
Die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten im Regen von Cernier, Davos, Fribourg, Locarno und Valsainte lagen 1995 in allen Monatsproben unter 20 mBq/Liter. Der Tritium-Gehalt im Regen liegt bei max. einigen Bq/l.

Die Aktivitäten des natürlicherweise vorhandenen  $^{7\text{Be}}$  in den Regenproben sind in Figur 3 zu sehen.



**Figur 3**

<sup>7</sup>Be im Regen an den Standorten Cernier, Davos, Fribourg, Locarno und Valsainte.



**Figur 4**

<sup>7</sup>Be-Ablagerungen mit Regen und Trockenstaub in Locarno-Monti.

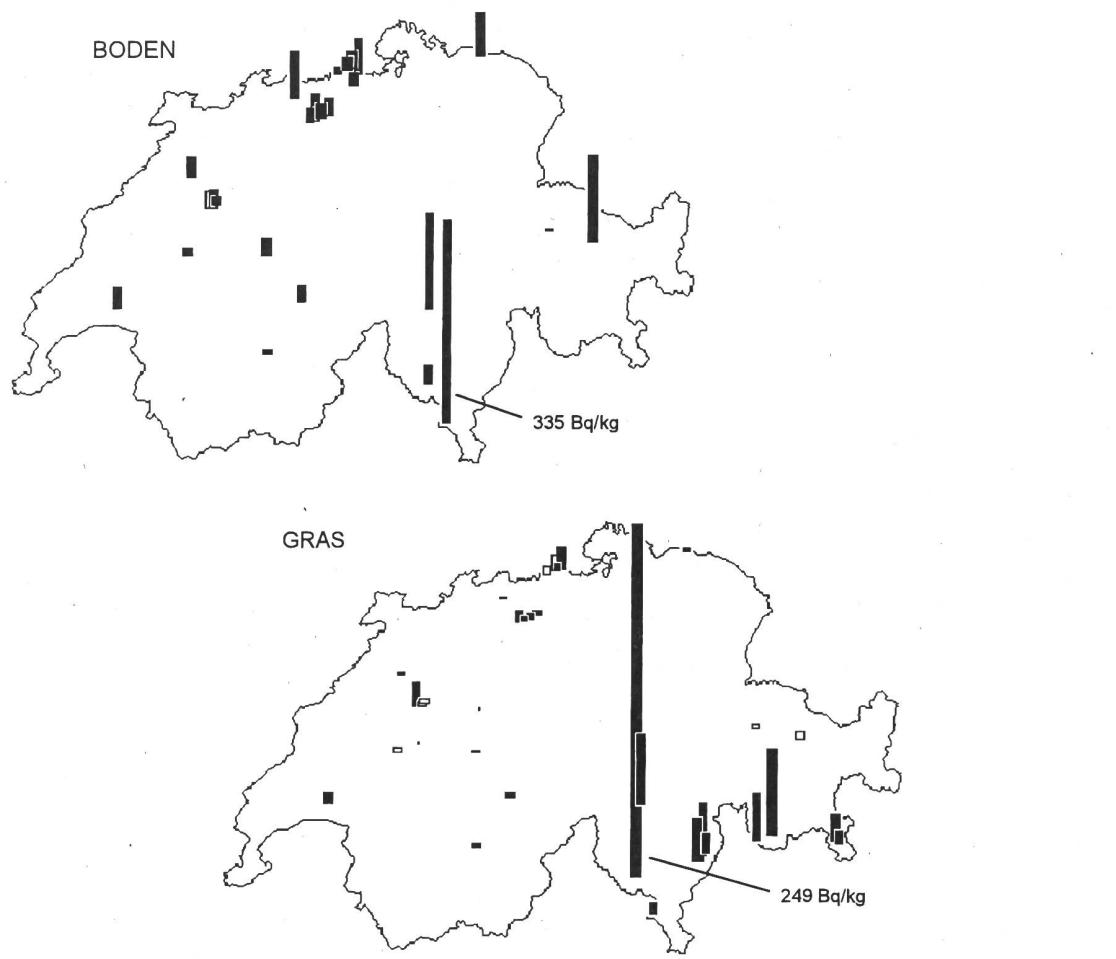
Die Ablagerung von <sup>137</sup>Cs ist auf dieser Figur nicht angegeben, da die <sup>137</sup>Cs Aktivitäten sowohl im Regen als auch im Trockenstaub 1995 häufig unterhalb der Nachweisgrenze lagen. Sie beträgt aber sicher zwei Größenordnungen weniger als für das <sup>7</sup>Be.

## Flusswasser

Die <sup>137</sup>Cs-Aktivitäten lagen 1995 in den monatlichen Sammelproben aus der Rhone im Wallis und bei Genf und aus dem Ticino bei Riazzino unter 20 mBq/Liter (monatliche Sammelproben). Der Tritium-Gehalt im Flusswasser lag bei maximal einigen Bq/l. Eine Ausnahme bildet der Doubs bei St. Ursanne /JU, wo die Werte der Monatsproben zwischen 5 und 32 Bq/l lagen.

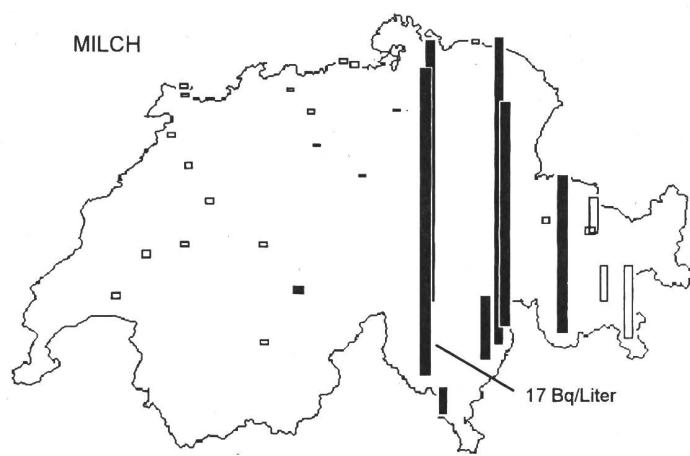
### Erde, Gras, Milch

Die  $^{137}\text{Cs}$  Aktivitäten zeigen nach wie vor die räumliche Verteilung des Tschernobyl-Fallouts (Tab. 1, 2, 3 und Fig. 5).



Figur 5

Räumliche Verteilung der  $^{137}\text{Cs}$  Aktivitäten in Boden-, Gras- und Milchproben (Daten der Tabellen 1, 2 und 3). Falls mehrere Proben vom gleichen Ort gemessen wurden, ist der höchste Wert eingezzeichnet. Nicht ausgefüllte Balken bedeuten, dass für diese Probe kein Wert über der Nachweisgrenze gefunden wurde. Die Höhe des Balkens entspricht in diesem Fall der Nachweisgrenze. Messfehler: siehe Tab. 1 bis 3.



**Tab.1:**  $^{40}\text{K}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  und  $\text{Pu}$ -Aktivitäten in Bodenproben. Werte in  $\text{Bq}/\text{kg}$  Trockengewicht, bezogen auf das Probenahmedatum. Wenn nicht anders angegeben, wurde die Schicht 0-5 cm erhoben.

Ort	Datum	$^{40}\text{K}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{239/240}\text{Pu}$
Lausanne	17.10.95	489±10	2.0±0.2	35.3±2.0	2.5±0.2	—
Grangeneuve/FR	15.05.95	400±40	< 0.5	11.7±1.0	1.9±0.2	0.23±0.02
Niederrunti/BE (KKM)	10.05.95	610±30	1.1±0.4	32.0±1.0	2.5±0.2	0.26±0.02
Salvisberg/BE (KKM)	10.05.95	650±20	< 0.6	15.0±1.0		
Ufem Horn/BE(KKM)	10.0595	830±30	1.3±0.3	29.0±1.0		
Susten-Phyn/VS	04.10.95	810±40	< 0.8	8.3±0.6	1.3±0.12	—
Gimmelwald/Mür./BE	16.06.95	307±30	< 0.5	30.0±3.0	7.0±0.7	0.70±0.06
Fahrni/Thun/BE	02.05.95	454±40	< 0.46	28.1±3.0	6.4±0.6	0.59±0.05
Diesse/BE-Jura	01.05.95	321±30	0.33±0.03	33.1±3.0	3.4±0.3	0.61±0.05
Sissach/BL	29.05.95	571±60	2.7±0.3	79.1±8.0	6.1±0.3	—
Aarau/AG (KKG)	10.05.95	380±20	0.7±0.2	26.0±1.0	1.9±0.2	0.31±0.03
Ni-Gösgen/SO (KKG)	10.05.95	430±20	0.8±0.2	23.0±1.0		
Ob-Gösgen/SO (KKG)	10.05.95	340±10	0.8±0.2	45.0±2.0		
Starrkirch/SO (KKG)	10.05.95	430±20	0.6±0.2	27.0±1.0		
Bernau/AG (KKL)	31.05.95	350±10	0.7±0.2	24.0±1.0	1.7±0.3	0.21±0.02
Etzgen/AG (KKL)	31.05.95	340±10	< 0.4	12.0±1.0		
Full/AG (KKL)	31.05.95	330±10	0.4±0.2	19.0±1.0		
Reuenthal/AG (KKL)	31.05.95	320±10	0.5±0.2	26.0±1.0		
Beznau/AG (KKB)	06.06.95	410±40	< 5.0	60.0±10.0	1.50±0.10	0.20±0.02
PSI-Nord/AG (PSI)	06.06.95	420±40	< 5	20.0±10.0	2.80±0.30	—
Intragna-Rasa/TI	08.06.95	660±15	3.1±0.2	29.0±1.0	—	—
Rodi-Fiesso/TI	06.06.95	448±10	6.2±0.2	160.0±2.0	6.2±0.4	0.23±0.02
Sessa/TI	07.06.95	617±10	11.7±0.2	335.0±3.0	9.4±0.4	0.59±0.05
Chur/GR	01.05.95	884±14	< 0.8	2.1±0.2	0.71±0.18	—
Davos-Stillberg/GR	29.06.95	550±25	2.0±0.5	142.0±7.0	35.2±0.7	1.70±0.14
Arenenberg/TG	09.05.95	450±40	1.9±0.2	72.9±7.0	2.2±0.2	0.20±0.02

**Tab.2:**  $^{40}\text{K}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivitäten in Grasproben. Werte in  $\text{Bq}/\text{kg}$  Trockengewicht, bezogen auf das Probenahmedatum.

Ort	Datum	$^{40}\text{K}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$
Lausanne	17.10.95	595±16	< 1.2	4.8±0.4	3.2±0.2
Grangeneuve/FR	15.05.95	1100±100	< 1.0	< 2.0	2.8±0.1
Susten-Phyn/VS	04.10.95	1596±23	< 1.1	2.0±0.3	3.4±0.3
Umgebung KKM	11.10.95	232±20	< 0.4	< 0.5	—
Umgebung KKM	11.10.95	164±15	< 0.4	< 0.5	—
Umgebung KKM	11.10.95	171±20	< 0.4	< 2.0	—
Umgebung KKM	11.10.95	148±15	< 0.4	< 0.5	—
Umgebung KKM	11.10.95	169±15	< 0.4	< 0.5	—
Niederruntigen/BE (KKM)	10.05.95	540±30	< 0.8	< 1.7	1.9±0.1
Salvisberg/BE (KKM)	10.05.95	670±10	< 0.9	< 1.7	
Ufem Horn/BE (KKM)	10.05.95	1110±40	< 0.8	< 1.3	

<b>Tab.2: Fortsetzung</b>	<b>Datum</b>	<b><math>^{40}\text{K}</math></b>	<b><math>^{134}\text{Cs}</math></b>	<b><math>^{137}\text{Cs}</math></b>	<b><math>^{90}\text{Sr}</math></b>
Niederruntigen/BE (KKM)	10.10.95	1110±40	< 10	1.1±0.8	
Salvisberg/BE (KKM)	10.10.95	770±50	< 1.2	< 2.5	{ } 4.1±0.2
Ufem Horn/BE (KKM)	10.10.95	1200±40	< 1.2	10.0±1.0	
Gimmelwald/Mürren/BE	16.06.95	557±50	< 0.26	1.62±0.2	12.9±0.1
Gimmelwald/Mürren/BE	23.08.95	965±90	< 0.37	3.34±0.3	--
Fahmi/Thun/BE	02.05.95	1278±100	< 0.25	0.80±0.1	5.7±0.5
Fahmi/Thun/BE	22.08.95	905±90	< 0.32	1.0±0.1	--
Diesse/BE-Jura	01.05.95	1036±100	< 0.30	0.96±0.1	2.5±0.2
Diesse/BE-Jura	22.08.95	1189±100	< 0.41	0.47±0.05	--
Sissach/BL	29.05.95	1014±100	< 0.50	1.20±0.2	2.2±0.1
Aarau/AG (KKG)	10.05.95	600±30	< 1.0	< 2.0	
Niedergösgen/SO (KKG)	10.05.95	680±30	< 1.0	< 2.0	{ } 1.5±0.1
Obergösgen/SO (KKG)	10.05.95	600±30	< 1.1	< 2.6	
Starrkirch/SO (KKG)	10.05.95	730±30	< 1.0	< 2.0	
Aarau/AG (KKG)	10.10.95	830±40	< 1.0	1.3±0.8	
Niedergösgen/SO (KK)	10.10.95	660±40	< 1.4	1.6±1.2	{ } 1.9±0.1
Obergösgen/SO (KKG)	10.10.95	790±40	< 1.1	3.1±1.1	
Starrkirch/SO (KKG)	10.10.95	460±30	< 1.7	4.5±1.5	
Bernau/AG (KKL)	31.05.95	1300±90	< 4.7	< 6.6	
Etzgen/AG (KKL)	31.05.95	430±30	< 1.1	< 2.6	{ } 2.4±0.1
Full/AG (KKL)	31.05.95	420±40	< 2.3	< 5.0	
Reuenthal/AG (KKL)	31.05.95	610±40	< 1.4	1.8±0.9	
Bernau/AG (KKL)	09.08.95	315±20	< 1.0	< 2.3	
Etzgen/AG (KKL)	09.08.95	385±30	< 1.5	< 3.5	{ } 5.2±0.2
Full/AG (KKL)	09.08.95	1060±80	< 5.0	8.0±4.0	
Reuenthal/AG (KKL)	09.08.95	1270±100	< 6.0	< 10.0	
Beznau/AG (KKB)	06.06.95	490±50	< 5.0	< 5.0	
Döttingen/AG (KKB)	06.06.95	770±80	< 5.0	< 5.0	{ } 1.97±0.20
Leuggern/AG (KKB)	06.06.95	580±60	< 5.0	< 5.0	
Beznau/AG (KKB)	05.09.95	910±90	< 5.0	< 5.0	
Döttingen/AG (KKB)	05.09.95	960±100	< 5.0	< 5.0	{ } 2.56±0.30
Leuggern/AG (KKB)	05.09.95	1030±100	< 5.0	< 5.0	
Würenlingen/AG (PSI)	06.06.95	1020±100	< 5.0	< 5.0	
PSI-Nord/AG (PSI)	06.06.95	710±70	< 5.0	< 5.0	{ } 2.03±0.20
Villigen/AG (PSI)	06.06.95	970±100	< 5.0	< 5.0	
Würenlingen/AG (PSI)	05.09.95	1100±100	< 5.0	< 5.0	
PSI-Nord/AG (PSI)	05.09.95	905±100	< 5.0	< 5.0	{ } 3.30±0.30
Villigen/AG (PSI)	05.09.95	1150±120	< 5.0	< 5.0	
Arenenberg/TG	09.05.95	1060±100	< 1.0	1.4±0.6	2.0±0.1
Intragna-Rasa/TI	08.06.95	823±22	< 2.4	35.6±1.1	--
Intragna-Rasa/TI	26.07.95	665±55	8.3±0.5	249±12	--
Rodi-Fiesso/TI	06.06.95	1130±20	< 1.3	30.2±0.7	6.3±0.2
Rodi-Fiesso/TI	25.07.95	1048±20	< 1.6	7.9±0.5	6.5±0.2
Sessa/TI	07.06.95	754±21	< 2.1	4.8±0.6	9.9±0.2
Sessa/TI	24.08.95	758±15	< 1.1	3.6±0.3	20.9±0.3
Chur/GR	01.05.95	1245±21	< 1.3	< 1.4	0.75±0.07
Davos-Stillberg/GR	29.06.95	1375±22	< 1.4	< 1.4	8.0±0.3
Davos-Stillberg/GR	25.09.95	586±13	< 1.0	2.5±0.3	23.8±0.5
Vicosoprano/GR (Heu)	14.11.95	505±18	< 2.0	37.0±1.0	--
Castasegna/GR (Heu)	14.11.95	600±10	< 2.0	20.0±1.0	--

<b>Tab.2: Fortsetzung</b>	<b>Datum</b>	<b><math>^{40}\text{K}</math></b>	<b><math>^{134}\text{Cs}</math></b>	<b><math>^{137}\text{Cs}</math></b>	<b><math>^{90}\text{Sr}</math></b>
Li Curt/GR (Heu)	05.12.95	568±20	< 2.0	5.0±0.8	—
Poschiavo/GR (Heu)	05.12.95	524±18	< 2.0	4.2±0.6	—
Poschiavo/GR (Heu)	05.12.95	529±19	< 2.0	11.1±1.7	—
San Vittore/GR (Heu)	21.12.95	576±20	< 2.0	18.7±0.9	—
Roveredo/GR (Heu)	21.12.95	564±19	< 2.0	4.3±0.5	—
Cama/GR (Heu)	21.12.95	698±22	< 2.0	8.6±0.7	—
Verdabbio/GR (Heu)	21.12.95	700±20	< 2.0	22.1±0.9	—

**Tab.3:**  $^{40}\text{K}$ -,  $^{134}\text{Cs}$ -,  $^{137}\text{Cs}$ -,  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivitäten in Milchproben. Werte in Bq/Liter Frischmilch, bezogen auf das Probenahmedatum. (n = ... : mehrere Proben vom gleichen Ort)

<b>Ort</b>	<b>Datum</b>	<b><math>^{40}\text{K}</math></b>	<b><math>^{134}\text{Cs}</math></b>	<b><math>^{137}\text{Cs}</math></b>	<b><math>^{90}\text{Sr}</math></b>
Lausanne	17.10.95	63±2	< 0.3	< 0.3	0.139±0.009
Lucens/VD (ORLAIT)	n = 4	56-72	< 0.2	< 0.4	—
Lucens/VD (ORLAIT)	28.11.95	69±3	< 0.2	< 0.3	0.076±0.006
Grangeneuve/FR	16.05.95	42±2	< 0.2	< 0.2	0.074±0.006
Susten-Phyn/VS	04.10.95	60±2	< 0.2	< 0.3	0.029±0.004
Saignelégier/JU	15.11.95	54±5	< 0.1	< 0.15	0.11±0.01
Beurnevésin/JU	09.02.95	49±5	< 0.1	0.04±0.005	0.10±0.01
Beurnevésin/JU	17.05.95	53±5	< 0.1	< 0.2	0.08±0.01
Beurnevésin/JU	23.08.95	52±5	< 0.1	< 0.2	0.056±0.009
Beurne. + Vendlinc./JU	14.11.95	52±5	< 0.1	< 0.15	0.08±0.01
Vendlincourt/JU	09.02.95	53±5	< 0.1	< 0.2	0.11±0.01
Vendlincourt/JU	17.05.95	53±5	< 0.1	< 0.1	0.10±0.01
Vendlincourt/JU	23.08.95	51±5	< 0.1	< 0.2	0.066±0.007
Mühleberg/BE (KKM)	10.04.95	46±4	< 0.2	< 0.3	0.090±0.010
Mühleberg/BE (KKM)	15.11.95	45±4	< 0.2	< 0.3	0.090±0.010
Gimmelwald/Mür./BE	08.03.95	46±4	< 0.03	< 0.03	0.12±0.01
Gimmelwald/Mür./BE	23.08.95	43±4	< 0.02	0.45±0.05	0.15±0.01
Fahrni/Thun/BE	07.03.95	44±4	< 0.03	< 0.02	0.06±0.005
Fahrni/Thun/BE	22.08.95	45±4	< 0.03	< 0.03	0.053±0.004
Diesse/BE	07.03.95	46±4	< 0.03	< 0.03	0.07±0.005
Diesse/BE	28.08.95	45±4	< 0.03	0.03±0.01	0.044±0.002
Sissach/BL	29.05.95	52±5	< 0.1	< 0.2	0.07±0.01
Dagmersellen/LU	n = 4	48-56	< 0.08	< 0.08	—
Emmen/LU	n = 6	49-57	< 0.08	< 0.09	—
Luzern/LU	n = 4	48-53	< 0.07	< 0.09	—
Gösgen/SO (KKG)	22.02.95	52±2	< 0.1	< 0.2	0.084±0.006
Gösgen/SO (KKG)	30.05.95	44±2	< 0.2	< 0.2	0.066±0.008
Gösgen/SO (KKG)	20.6.95	54±2	< 0.2	< 0.2	0.084±0.009
Leibstadt/AG (KKL)	13.02.95	48±3	< 0.3	< 0.3	0.070±0.007
Leibstadt/AG (KKL)	07.08.95	43±6	< 0.3	< 0.3	—
Leibstadt/AG (KKL)	10.08.95	47±2	< 0.2	< 0.3	0.066±0.006
Leibstadt/AG (KKL)	14.08.95	43±6	< 0.3	< 0.3	0.063±0.007
Dogern/D (KKL)	10.08.95	47±2	< 0.2	< 0.3	0.039±0.005
Beznau/AG (KKB)	13.02.95	46±3	< 0.3	< 0.3	0.062±0.006
Beznau/AG (KKB)	06.04.95	48±4	< 0.3	< 0.3	—
Beznau/AG (KKB)	12.04.95	50±4	< 0.3	< 0.3	—
Beznau/AG (KKB)	12.07.95	43±3	< 0.3	< 0.3	0.065±0.006
Zürich/ZH	25.04.95	63±6	< 0.1	0.09±0.02	—
Zürich/ZH	25.04.95	46±5	< 0.1	0.04±0.02	—
Zürich/ZH	06.12.95	59±3	< 0.1	< 0.1	—

<b>Tab.3: Fortsetzung</b>	<b>Datum</b>	<b><math>^{40}\text{K}</math></b>	<b><math>^{134}\text{Cs}</math></b>	<b><math>^{137}\text{Cs}</math></b>	<b><math>^{90}\text{Sr}</math></b>
Zürich/ZH	06.12.95	56±3	< 0.1	0.06±0.02	
Arenenberg/TG	09.05.95	50±4	< 0.2	< 0.2	0.046±0.006
Intragna-Rasa/TI	13.03.95	63±5	< 0.5	5.7±0.6	0.490±0.040
Intragna-Rasa/TI	22.08.95	50±5	0.9±0.1	17.1±1.0	--
Rodi-Fiesso/TI	14.03.95	52±5	< 0.3	1.8±0.2	0.210±0.020
Rodi-Fiesso/TI	09.12.95	65±6	< 0.1	14.5±1.0	--
Sessa/TI	15.03.95	51±5	< 0.3	1.4±0.2	0.430±0.040
Sessa/TI	21.08.95	66±6	< 0.2	1.1±0.1	--
Chur/GR	14.02.95	62±2	< 0.2	< 0.3	--
Chur/GR	01.05.95	50±1	< 0.1	< 0.1	0.046±0.003
Davos-Stillberg/GR	28.06.95	49±1	< 0.1	< 0.1	0.443±0.014
Davos-Stillberg/GR	25.09.95	61±2	< 0.3	< 0.3	0.269±0.015
Chur/GR	n = 6	49-56	< 2.0	< 2.0	--
Pontresina/GR	n = 6	42-50	< 4.0	< 2.0	--
Davos/GR	n = 6	44-54	< 2.0	< 2.0	--
Mesocco/GR	05.01.95	50±1	< 2.0	6.1±0.1	--
Mesocco/GR	08.03.95	52±2	< 2.0	12.5±0.2	--
Mesocco/GR	07.12.95	48±2	< 2.0	2.6±0.1	--
Lostallo/GR	07.02.95	42±2	< 2.0	3.0±0.1	--
Lostallo/GR	07.04.95	42±2	< 2.0	3.5±0.2	--
Lostallo/GR	04.05.95	45±2	< 2.0	< 2.0	--
Lostallo/GR	08.06.95	40±1	< 2.0	< 2.0	--
Lostallo/GR	07.07.95	39±2	< 2.0	4.5±0.1	--
Lostallo/GR	03.08.95	45±3	< 4.0	17.1±0.2	--
Lostallo/GR	06.10.95	41±3	< 4.0	7.5±0.3	--
Lostallo/GR	08.11.95	50±2	< 4.0	< 4.0	--
San Vittore/GR	n = 10	38-66	< 4.0	< 4.0	--
San Vittore/GR	04.09.95	50±2	< 2.0	3.5±0.1	--
Vicosoprano/GR	04.01.95	51±2	< 2.0	5.9±0.2	--
Vicosoprano/GR	06.02.95	50±2	< 2.0	8.0±0.2	--
Vicosoprano/GR	06.03.95	54±2	< 2.0	8.0±0.2	--
Vicosoprano/GR	03.04.95	49±2	< 2.0	6.4±0.2	--
Vicosoprano/GR	01.05.95	51±2	< 2.0	8.7±0.2	--
Vicosoprano/GR	06.06.95	52±2	< 2.0	4.0±0.2	--
Vicosoprano/GR	03.07.95	50±2	< 2.0	4.5±0.2	--
Vicosoprano/GR	02.08.95	50±2	< 2.0	2.5±0.2	--
Vicosoprano/GR	04.09.95	52±2	< 2.0	2.1±0.2	--
Vicosoprano/GR	03.10.95	37±2	< 4.0	4.3±0.2	--
Vicosoprano/GR	07.11.95	57±3	< 4.0	4.0±0.2	--
Vicosoprano/GR	04.12.95	57±3	< 4.0	4.5±0.2	--
Poschiavo/GR	monatl.	46-55	< 4.0	< 2.0	--

## 3.2. Tritium-, Kohlenstoff-14-, 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, BfS,  
Rosastrasse 9, D-79098 FREIBURG IM BREISGAU

### 3.2.1. Zusammenfassung

*<sup>14</sup>C-Werte wurden in Baumblätter aus der Umgebung von Kernanlagen in der Schweiz und der Verbrennungsöfen der Firma CIBA in Basel bestimmt und mit dem  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert der Referenzstation verglichen. In der Umgebung der Kernkraftwerke Leibstadt und Gösgen waren die Messwerte ähnlich hoch wie in früheren Jahren, d. h. maximal ca. 100 ‰ über dem heutigen Referenzwert von + 120 ‰. Stichproben aus der Nahumgebung des früheren Forschungsreaktors SAPHIR im PSI zeigen jedoch einen deutlichen Rückgang der <sup>14</sup>C-Aktivität. Auch in der Umgebung des "alten" Verbrennungsofens der CIBA in Basel ist ein markanter Rückgang festzustellen, weil die Emissionen seit Juli 1994 unterbrochen waren. Die Maximalwerte sanken von ca. 400 ‰ im Jahre 1994 auf ca. 100 ‰ im Jahre 1995. Proben in der Nähe des SANDOZ-Areals jedoch, deren Erhöhung schon 1994 geringer als 100 ‰ waren, zeigten keinen Rückgang. Die durch <sup>14</sup>C verursachte zusätzliche Strahlendosis durch hypothetischen Verzehr von lokal gezogenem Gemüse beträgt höchstens ca. 1  $\mu\text{Sv}$  pro Jahr und fällt deshalb nicht ins Gewicht.*

*Die <sup>85</sup>Kr-Aktivität in Luft wurde in Wochenproben auf dem Jungfraujoch und in Stichproben in Bern bestimmt. Der seit 1993 festgestellte ansteigende Trend des globalen Inventars setzte sich auch 1995 fort. Die globalen Emissionen in den letzten paar Jahren können grob zu ca.  $5 \cdot 10^{17}$  Bq abgeschätzt werden. 1995 wurden etwas häufiger und etwas höhere Spikes als in früheren Jahren festgestellt, woraus auf eine konzentriertere Abgabe von <sup>85</sup>Kr-Aktivität aus Wiederaufbereitungsanlagen geschlossen werden kann.*

*Die <sup>3</sup>H-Aktivitäten in Niederschlägen blieben 1995 unverändert und liegen an ungestörten Stationen zwischen 1,4 und 2 Bq/l Wasser. Bern zeigt nach wie vor erhöhte Aktivitäten (maximal im Oktober 95 32 Bq/l), und geringe zusätzliche Aktivitäten können für Basel und Vaduz nicht ausgeschlossen werden.*

### 3.2.2. Kohlenstoff-14 in unserer Umwelt

#### a) Einleitung, Zusammenhänge

Kohlenstoff-14-Aktivitäten sind im globalen und im regionalen Rahmen von Bedeutung (siehe H. Loosli und I. Levin: Lokale und globale <sup>14</sup>C-Konzentrationen und die dadurch bewirkten Strahlendosen, in Proceedings des Seminars über Umweltbelastung durch langlebige künstlich erzeugte Radionuklide, Luzern und Vitznau 29./30. Juni 95):

- Im globalen Rahmen dominieren als Quellen die natürliche Produktion und die verbleibende <sup>14</sup>C-Aktivität von den oberirdischen Kernwaffenversuchen. Dieser künstliche Beitrag geht langsam zurück, weil das CO<sub>2</sub> der Atmosphäre (mit heute ca. 112 % moderner Aktivität) mit dem CO<sub>2</sub> der Weltmeere (mit einer geringeren Aktivität von im Mittel heute ca. 107 % im Mixed Layer) ausgetauscht wird. Dagegen kann abgeschätzt werden,

dass in den nächsten Jahren bis Jahrzehnten die Emissionen aus Kernanlagen nicht zu einer deutlich messbaren Erhöhung des natürlichen globalen  $^{14}\text{CO}_2$ -Levels führen. Bei  $^{14}\text{CH}_4$  verhält es sich anders: die von den Druckwasserreaktoren emittierte Aktivität bestimmt heute weitgehend das Gleichgewicht, das sich in der Atmosphäre zwischen Produktion und Umwandlung in  $\text{CO}_2$  eingestellt hat.

- Im regionalen Rahmen sind  $^{14}\text{C}$ -Erhöhungen in der Umgebung von Kern- und Industrieanlagen relativ leicht messbar. Maximale Erhöhungen in der Schweiz betragen heute ca.  $\Delta^{14}\text{C} \approx 200\text{‰}$ . Da  $^{14}\text{C}$  eines der wenigen Nuklide ist, das in der Umgebung solcher Anlagen (beispielsweise in der Biosphäre) gemessen werden kann, können damit Ausbreitungsrechnungen verifiziert werden.

Im Folgenden werden die 1995 gewonnenen  $^{14}\text{C}$ -Resultate an Blattproben dargestellt, die sowohl Schlüsse über das globale Verhalten dieses Nuklids wie über regionale Anreicherungen und die dadurch bewirkten zusätzlichen Dosen erlauben. 1995 wurden Proben aus der Umgebung der Kernkraftwerke Leibstadt, Gösgen und Beznau/PSI und des Verbrennungsofens der CIBA in Basel untersucht.

#### b) $\Delta^{14}\text{C}$ an Referenzstationen

Vor und nach jeder Verbrennungsserie wurde je ein Teil der Probe von der Referenzstation Imlihubel (ca. 15 km südlich von Bern) aufbereitet. Die Messung dieser Proben diente dem Nachweis, dass Memory-Effekte vernachlässigbar sind, der Bestimmung der Reproduzierbarkeit und der Bestimmung der  $\Delta^{14}\text{C}$ -Aktivität an der Referenzstation. Alle Messwerte stimmen innerhalb des statistischen Messfehlers einer Probe überein und ergeben als Mittelwert für 1995  $\Delta^{14}\text{C} = 120 \pm 2\text{‰}$  (Tabelle 1). Dieser Wert entspricht einer spezifischen  $^{14}\text{C}$ -Aktivität von 0,254 Bq/g C und stimmt bis auf wenige ‰ mit der Aktivität im atmosphärischen  $\text{CO}_2$  der Nordtroposphäre überein. Die im Folgenden berechneten Nettowerte der Proben von anderen Stationen entsprechen der Differenz zwischen dem Messwert und dem obigen Wert für die Referenzstation. Die Erhöhung von 120 ‰ über dem natürlichen Level von 0,227 Bq/g C stammt grösstenteils von den atmosphärischen Kernwaffentests der 60er Jahre. Aus Figur 1 ist ersichtlich, dass der Referenzwert 1995 ca. 4 ‰ tiefer liegt als 1994. Dieser Rückgang ist mit dem  $\text{CO}_2$ -Austausch zwischen Atmosphäre und den Weltmeeren zu erklären.

Zur Berechnung der heutigen zusätzlichen Dosis wegen der künstlichen  $^{14}\text{C}$ -Aktivität der Bombenversuche, die mit Nahrungsmitteln aufgenommen wird, kann von der Erhöhung um 120 ‰ ausgegangen werden. Allerdings wäre der heutige "natürliche"  $^{14}\text{C}$ -Level in der Atmosphäre wegen dem Suess-Effekt erniedrigt; man kann abschätzen, dass das Verbrennen von fossilen Brennstoffen heute zu einer Verdünnung der atmosphärischen  $^{14}\text{C}$ -Konzentration um 50 - 100 ‰ geführt hätte. Der Bombenüberschuss beträgt also heute mehr als die gemessenen 120 ‰, nämlich 170 bis 220 ‰, was nach UNSCEAR 1988 zu einer jährlichen zusätzlichen Dosis von ca. 2 bis 3  $\mu\text{Sv}$  führt.

#### c) $\Delta^{14}\text{C}$ in der Umgebung von Kernanlagen

In Tabelle 1 sind die Messwerte der Proben aus der Umgebung des KKL, des KKG, des KKB und vom ehemaligen Reaktor SAPHIR des PSI zusammengestellt. Enthalten sind auch die Netto-Erhöhungen gegenüber dem Wert von + 120 ‰ der Referenzstation.

Tabelle 1:  $\Delta^{14}\text{C}$  Werte in der Umgebung von Schweizer Kernanlagen

Probenbezeichnung	Datum der Probennahme	$\Delta^{14}\text{C}$ (%)	1 $\sigma$ Zählfehler	$\Delta^{14}\text{C}$ netto (%)	Umgebung von:
Imihubel	30.7.95	122,6	3,0		Referenzstation
Imihubel	30.7.95	117,3	3,0		Referenzstation
Imihubel	30.7.95	121,0	3,0		Referenzstation
<b>Imihubel Durchschnitt</b>		<b>120,3</b>	<b>1,7</b>	<b>0,0</b>	<b>Referenzstation</b>
Laubberg	5.9.95	119,9	3,5	-0,4	KKL
Laufenburg	5.9.95	152,9	3,7	32,6	KKL
Weidhof	5.9.95	156,0	3,6	35,7	KKL
Station Leibstadt	5.9.95	201,8	3,6	81,5	KKL
Chlämmi	5.9.96	219,9	3,2	99,6	KKL
Schlüsselgraben	5.9.96	244,4	3,8	124,1	KKL
Ried	5.9.95	226,0	3,7	105,7	KKL
Schiebenächer	5.9.95	172,8	3,6	52,5	KKL
Wasserkraftwerk	5.9.95	158,9	3,7	38,6	KKB
Au	5.9.95	194,1	3,7	73,8	KKB
EIR Ost	5.9.96	168,8	3,6	48,5	KKB
EIR Süd	5.9.96	156,1	3,7	35,8	KKB
Saphir 5 (A)	5.9.96	170,7	3,6	50,4	Saphir
Saphir 2 (B)	5.9.95	251,0	3,8	130,7	Saphir
Saphir 3 (C)	5.9.95	242,2	3,2	121,9	Saphir
Saphir 4 (E)	5.9.95	218,3	3,7	98,0	Saphir
Obergösgen	5.9.95	141,8	3,6	21,5	KKG
Gretzenbach	5.9.95	139,8	3,5	19,5	KKG
Aarfeld	5.9.95	163,0	3,1	42,7	KKG

In der Umgebung des Kernkraftwerks Leibstadt sind wie in früheren Jahren die grössten Erhöhungen in ca. 1 bis 2 km Distanz festgestellt worden; sie betragen maximal ca. + 100 ‰ (Schlüsselgraben und Ried in östlicher Richtung, Chlämmi und Station Leibstadt im Westen). Mit zunehmender Entfernung nehmen die Netto-Erhöhungen ab, weil die Verdünnung wirksam ist. Diese Erhöhungen sind sehr ähnlich wie in früheren Jahren (vergl. z. B. mit der graphischen Darstellung im BAG Bericht 1994 auf Seite B.3.2.2). Daraus kann geschlossen werden, dass auch im Jahre 1995 die Emission von  $^{14}\text{C}$  und die mittlere Verdünnung während der Wachstumszeit ähnlich waren wie in den früheren ca. 10 Jahren.

Auch 1995 sind vier Stichproben aus der Umgebung des Kernkraftwerks Beznau gemessen worden. Die Resultate sind in der Figur 2 als Zeitreihen dargestellt. Man sieht, dass sich der 1994 beobachtete Rückgang der Aktivität im Jahre 1995 nicht fortgesetzt hat; es wurden an allen Standorten ähnliche Werte wie vor 1994 nachgewiesen. Die im letzten Jahr geäusserte Vermutung, dass die fehlende Emission aus dem Reaktor SAPHIR zu diesem Rückgang für 1994 geführt hat, ist also nicht oder nur teilweise richtig. Heute muss eher geschlossen werden, dass die an diesen Standorten gemessenen  $^{14}\text{C}$ -Erhöhungen aus den Reaktoren Beznau stammen.

In der nahen Umgebung des ehemaligen Reaktors SAPHIR, der am 17.12.1993 abgestellt wurde, sind 1995 wieder an 4 Standorten Blattproben genommen worden. Die Resultate sind für die letzten 4 Jahre in Figur 3 zusammengestellt; eine weiter zurückreichende Zeitreihe findet sich im BAG Bericht 1994 auf Seite B.3.2.4.

Der Rückgang der  $^{14}\text{C}$ -Konzentration in den Baumblättern ist augenfällig. Im Durchschnitt sinkt die Aktivität von einem Jahr bis ins nächste auf ca. 60 % des Vorjahres. Es stellen sich aber zwei zusammenhängende Fragen: Woher stammt die  $^{14}\text{C}$ -Aktivität, die immer noch gemessen wird? Und weshalb ist der Rückgang langsamer als in Proben aus der südwestlichen Richtung des Verbrennungsofens der CIBA in Basel (siehe Abschnitt d) und Figur 6)?

Die folgenden Antworten sind teilweise spekulativ, werden aber voraussichtlich durch die geplanten Messungen in den nächsten Jahren präzisiert werden können. Es ist nicht anzunehmen, dass die Buche beim PSI ca. 60 % des Kohlenstoff in einem neuen Blatt aus Einlagerungen früherer Jahre bezieht. Für diesen Anteil ist der für Basel bestimmte Prozentsatz von ca. 20 % realistischer. Eine mögliche Erklärung des langsamem Rückgangs besteht in der Annahme, dass die Emissionen doch noch nicht auf 0 zurückgegangen sind, sondern dass sich einige gefangene Volumina erst allmählich leeren. Ein Teil der in der Umgebung des Reaktors SAPHIR noch gemessenen Aktivität könnte auch den Emissionen des KKB zuzuordnen sein, allerdings wohl weniger als ca. 100 %.

1995 wurden 3 Stichproben in der Umgebung des KKG an Stellen entnommen, die schon in früheren Jahren beprobten wurden. Die Netto-Werte sind in der Figur 4 zusammengestellt und zeigen ähnliche Werte wie in den früheren Jahren. Dies deckt sich mit der Erwartung, dass in der Umgebung eines Druckwasserreaktors die  $^{14}\text{C}$ -Erhöhungen geringer sind als eines Siedewasserreaktors, weil jener  $^{14}\text{C}$  grossenteils in Methan-Form abgibt.

#### d) $\Delta^{14}\text{C}$ in der Umgebung der Verbrennungsöfen der CIBA, Basel

Im Auftrag der Firma CIBA wurden auch 1995  $^{14}\text{C}$ -Aktivitäten in Baumblättern aus der Umgebung des alten und des neu geplanten Verbrennungsofens gemessen. Die Standorte sind aus der Figur 5 ersichtlich, die schematisch auch die Resultate der im September entnommenen Proben zeigt. Gleiche Standortbezeichnungen sind auch in den Figuren 6 und 7 benutzt, die die zeitliche Entwicklung aller Messwerte von 1994 und 95 mit Netto-Werten über ca. 20 % darstellen. Die Probenahme erfolgte 1995 wiederum unter Mithilfe des Kt. Labors und der Stadtgärtnerei. Die letzte Verbrennung radioaktiver Abfälle mit  $^{14}\text{C}$ -Aktivitäten wurden im alten Ofen im Juli 1994 durchgeführt. Die CIBA beschloss, nachher diese Verbrennungen vorübergehend einzustellen, um zur Beantwortung der Frage beizutragen, welches die Ursache der in den Blättern gemessenen Netto  $^{14}\text{C}$ -Aktivitäten seien. Auch im neuen Ofen wurden vor der 2. Probenahme im September 95 keine Abfälle verbrannt, von denen bekannt war, dass sie  $^{14}\text{C}$  enthalten. So wurde erwartet, dass die gemessenen Aktivitäten im Jahre 1995 wesentlich geringer ausfallen würden als im Vorjahr.

Wie aus der Figur 5 zu sehen ist, sind auch 1995 noch positive Netto- $^{14}\text{C}$ -Werte gemessen worden, insbesondere an den gleichen Standorten wie 1994 (südlich und westlich des alten Verbrennungsofens). Allerdings betrug die maximale Erhöhung am Volataplatz nur noch 103 %; die Probe vom gleichen Baum wies im Vorjahr ca. 450 % auf. Ausser bei E-24, wo die Erhöhung mit + 10 % sehr gering (und mit einem Fehler von  $\pm 5 \%$  nahe der Nachweisgrenze) ist, traten Erhöhungen nur an Standorten auf, die auch 1994 schon Erhöhungen zeigten. Die rund um den neuen Ofen zur Beweissicherung genommenen Proben zeigten keine Erhöhungen (in Figur 5 mit einem X markiert); einige Standorte lagen sogar leicht unter dem Wert der Referenzstation, z. B. E-2 mit -18 %, E-17 und E-9 mit je -9 %. Es kann angenommen werden, dass die Verbrennung von fossilen Brennstoffen zu dieser Verdünnung der  $^{14}\text{C}$ -Konzentration führt, liegen doch zwei der oben erwähnten Standorte in unmittelbarer Nähe der Autobahn.

Mit diesen Resultaten ist gezeigt, dass 1995 in der Tat die  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte tiefer lagen als 1994 und dass in der Umgebung des neuen Verbrennungsofens (noch) keine zusätzliche  $^{14}\text{C}$ -Aktivität vorkam. Die Frage ist nun, um wieviel die Aktivität von 1994 bis 1995 abnahm. Antwort auf diese Frage geben die Figuren 6 und 7.

In Figur 6 sind die Zeitreihen derjenigen Standorte dargestellt, die im Jahre 1994  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte von über ca. 100 ‰ zeigten. Es ist ein deutlicher Rückgang bis 1995 zu sehen; die Blätter enthielten im Jahre 1995 durchschnittlich ca. 20 % der im Jahre 1994 gemessenen  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte. Die Werte der am 11. April 1995 gewonnenen Knospenproben liegen (mindestens für zwei Standorte) zwischen den Werten den beiden Jahren. Diese Knospenproben wurden an der ETHZ im Institut für Teilchenphysik mit der AMS-Technik gemessen. Für die meisten Standorte gilt, dass Mai- und September-Werte ähnlich gross sind, wie es insbesondere für die im Jahre 1995 gewonnenen Proben der Fall ist. Als Erklärung der beobachteten Messreihen bieten sich folgende Möglichkeiten an: die Knospen haben vorwiegend im Herbst 1994 organisches Material eingelagert. Ihr  $^{14}\text{C}$ -Gehalt besteht deshalb aus einer Mischung der im Frühling 1994 in die Blätter eingelagerten und einer unkontaminierten Komponente (weil die Verbrennung  $^{14}\text{C}$ -haltigen Abfalls ab Juli unterbrochen war). Die im Frühling 1995 gebildeten neuen Blätter haben ca. 20 % ihrer Substanz vom Vorjahr bezogen und 80 % entstand aus unkontaminiertem neu assimiliertem CO<sub>2</sub>. Die Blattbildung wird im Frühling grossenteils abgeschlossen und deshalb bleibt die einmal eingelagerte Aktivität im Laufe eines Jahres ungefähr konstant. Als Alternative der 1995er Werte bietet sich an, dass die prozentuale Einlagerung aus dem Vorjahr geringer ist als 20 % und dass sich in der Gegend der Standorte eine (zusätzliche) Emissionsquelle bemerkbar macht, die zu geringeren  $^{14}\text{C}$ -Erhöhungen als 1994 führt.

Mit dieser alternativen Erklärung passen die Beobachtungen besser überein, wie sie auf Figur 7 dargestellt sind. Die Stationen, deren  $^{14}\text{C}$ -Erhöhung 1994 eindeutig nachweisbar aber geringer als 80 ‰ war, zeigen (ausser E5) eine andere zeitliche Entwicklung als die Standorte mit starken Erhöhungen: die Nettoaktivitäten nehmen von 1994 bis 1995 praktisch nicht ab. Gemäss Lageplan der Figur 5 sind vorwiegend die Standorte W7, 8, 9 und E13 und 14a betroffen. Aus dieser Verteilung allein kann vorerst allerdings noch nicht darauf geschlossen werden, wo sich eine eventuelle zusätzliche Emissionsquelle befindet.

Beim Betrachten der  $^{14}\text{C}$ -Zeitreihen in Basel oder in der Umgebung von Kernanlagen stellt sich die Frage nach der Reproduzierbarkeit. Zeigen alle Blätter ein und desselben Baumes etwa die gleichen Nettowerte resp. stimmen verschiedene Bäume desselben Standortes miteinander überein? Unsere bisherigen Untersuchungen können diese Fragen noch nicht beantworten; vorläufige Hinweise sind jedoch vorhanden. Um die Streuungen gering zu halten, wurden in den letzten 20 Jahren in der Umgebung der Kernanlagen und an der Referenzstation womöglich Buchenblätter gesammelt, d. h. Blätter der gleichen Baumart; damit sollten unterschiedliche Wachstumsstadien verschiedener Baumarten zur Zeit der Probenahme vermieden werden. Die Messwerte der Proben von verschiedenen Referenzstationen stimmen denn auch innerhalb der statistischen Fehler untereinander überein (siehe z. B. Imihubel und Wiler, BAG Bericht 1993 und 1994); die Werte der Referenzstationen stimmen zudem mehrheitlich mit denjenigen unbelasteter Standorte überein (z. B. mit denjenigen in der Umgebung des neuen Verbrennungsofens in Basel). Netto-Erhöhungen in der Umgebung eines  $^{14}\text{C}$ -Emittenten jedoch können Variationen aufweisen, die grösser sind als die statistischen Zählfehler. Tabelle 2 fasst einige Messwerte aus Basel zusammen, die ein "Gefühl" für solche Variationen geben können:

Tabelle 2:  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte von Vergleichsproben

Nr.	Jahr	Standort	Baumart, Bemerkung	$\Delta^{14}\text{C}$ netto (‰)
W6	1994	Voltaplatz	Linde	$438 \pm 4,6$
W6	1994	Voltaplatz	dieselbe Linde, Blätter gewaschen	$451 \pm 5$
E6	Mai 95	Dreirosenanlage	Kastanie	$57 \pm 5$
E6	Mai 95	Dreirosenanlage	Blutbuche	$46 \pm 5$
E6	Sept. 95	Dreirosenanlage	Kastanie	$62 \pm 5$
E6	Sept. 95	Dreirosenanlage	andere Kastanie	$49 \pm 5$

Aus der Tabelle sind Variationen sichtbar. Sie sind aber nicht so gross, dass die weiter oben gezogenen Schlüsse beeinträchtigt würden. Weitere Vergleichsmessungen sind geplant.

#### e) Zusätzliche Strahlendosen wegen $^{14}\text{C}$

Unter der Annahme, dass eine Person in ihrem Körper eine  $^{14}\text{C}$  Konzentration aufbauen würde, die 100 ‰ über dem natürlichen Level läge, würde die zusätzliche Dosis ca. 1  $\mu\text{Sv}$  pro Jahr betragen. Dies ist gegenüber anderen Strahlendosen und deren Variationen vernachlässigbar, insbesondere gegenüber den Dosen wegen der Radon-Folgeprodukte. Diese Beurteilung ist in Übereinstimmung mit einer Toleranzwertbetrachtung: der Toleranzwert für  $^{14}\text{C}$  beträgt in Lebensmitteln gemäss FIV 200 Bq/kg. Ein Wert von  $\Delta^{14}\text{C} = +100\text{ ‰}$  entspricht einer Gesamtaktivität von 250 Bq/kg C, also einem Wert von ca. 40 Bq/kg Lebensmittel.

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

In Figur 8 sind die Resultate der  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivitätsmessungen in Freiburg i.B. an Proben vom Jungfraujoch seit dem Beginn der Messungen dargestellt. An dieser Stelle sei den beiden Hauswarten auf dem Jungfraujoch, Herrn F. Baertschi und Herrn P. Kuster für die jahrelange zuverlässige Gewinnung der Wochenproben herzlich gedankt.

Aus der Zeitreihe von 1990 bis 1995 kann herausgesehen werden, dass

- im Jahre 1995 die Anzahl Spikes öfters auftrat als früher und dass die erhöhten Wochenwerte grösser waren als früher. Diese Beobachtungen wurden auch für die Proben vom Schauinsland gemacht, wo 1995 zweimal Wochenproben mit einem Wert von ca. 3 Bq/m<sup>3</sup> auftraten. In 7 zusätzlichen Wochen betrug dort der Mittelwert ca. 2 Bq/m<sup>3</sup>. In 5 Wochen lag auf dem Jungfraujoch die  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivität bei 1,4 Bq/m<sup>3</sup> oder darüber und in all diesen Wochen war die Troposphärenaktivität auch auf dem Schauinsland erhöht.
- Der seit 1993 beobachtete beschleunigte Anstieg der Basisaktivität setzte sich (sowohl auf dem Jungfraujoch wie an andern Stationen Europas) auch 1995 fort. Ende 1995 muss auf dem Jungfraujoch mit einem Basislevel von ca. 1,2 Bq/m<sup>3</sup> gerechnet werden.
- Als Trend kann (mit relativ grosser Unsicherheit) aus der Figur herausgelesen werden, dass im Sommer mehrfach eine Periode mit grösseren Erhöhungen als im Winter auftraten. Relativ deutlich ist dies in den Jahren 1991 und 1993 - 1995 sichtbar.

Für die Erklärung dieser Beobachtungen ist in Betracht zu ziehen, dass offenbar die Aufarbeitung von Brennelementen intensiviert wurde. Die Emissionen waren so gross, dass nicht nur die in der Atmosphäre zerfallende Aktivität ersetzt wurde, sondern dass sich zusätzlich das Inventar erhöhen konnte, und zwar um ca. 0,2 Bq/m<sup>3</sup> in drei Jahren (vergl. Fig. 8). Pro Jahr zerfallen ca. 6 % des globalen Inventars, d. h. ca.  $0,06 \cdot 1 \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} \cdot 4 \cdot 10^{18} \text{ m}^3 = 2,4 \cdot 10^{17} \text{ Bq}$ . Die Erhöhung des Inventars um 0,07 Bq/m<sup>3</sup> pro Jahr ergibt zusätzlich  $2,8 \cdot 10^{17} \text{ Bq}$ . Die Emissionen können also grob zu  $5 \cdot 10^{17} \text{ Bq/Jahr}$  abgeschätzt werden (ca.  $1,5 \cdot 10^7 \text{ Ci}$ ). Der Trend, dass im Sommer auf dem Jungfraujoch grössere Erhöhungen als im Winter auftreten, hängt mit der grösseren Turbulenz der Luftmassen im Sommer zusammen, die häufiger kontaminierte Luft bis in die Höhe von 3'500 m empor mischt.

Stichproben von Krypton, das in Bern aus Luft abgetrennt wurde, ergaben folgende Resultate:

Probenahmedaten	$^{85}\text{Kr}$ -Aktivität	
	dpm/cc Kr	Bq/m <sup>3</sup> Luft
11.7.1995	$82,6 \pm 2,4$	$1,57 \pm 0,05$
12.1.1996	$72 \pm 4$	$1,37 \pm 0,08$

Diese Aktivitäten stimmen mit den Messwerte auf dem Jungfraujoch gut überein. Ein Vergleich der langjährigen Messwerte auf dem Jungfraujoch mit solchen an tiefer gelegenen Standorten (z. B. Freiburg i.B.) zeigt ferner, dass die letzteren fast immer deutlich höher liegen.

### 3.2.4. Tritium (siehe Fig. 9a-h)

#### Niederschläge

Die gewichteten Jahresmittel der Tritiumkonzentrationen blieben 1995 gegenüber dem Vorjahr praktisch unverändert. Bern ist wegen der Freisetzung von Industrietritium gegenüber den anderen Stationen erhöht. In Basel, Vaduz und Nyon sind lokale Einflüsse ebenfalls nicht ganz auszuschliessen. In den Monatsmittelwerten fällt vor allem die starke Konzentrationszunahme im Oktober 1995 in Basel und Bern auf. Ob hier ein Zusammenhang besteht, kann nicht entschieden werden. Im übrigen liegen die Winterwerte mancher Stationen bereits an der Nachweisgrenze des LSC. Der Ankauf eines grossvolumigen Messgerätes, das die Nachweisgrenze für Tritium unter 0,1 Bq/l (und damit in dem Bereich der natürlichen Produktion) bringen wird, ist für Ende 1996 vorgesehen.

#### Flusswasser

Auch in der Aare bei Brugg blieben die Tritiumwerte gegenüber dem Vorjahr unverändert. Die Ursache für die Erhöhung im Mai 1996 ist nicht bekannt.

Tabelle 3: Tritium in Niederschlägen 1995

	Basel	Bern	Grimsel (LHG)	Guttannen	Meiringen	Vaduz (LHG)
JAN	1.7±0.4	4.9±0.4	≤ 0.7(2s)	≤ 0.7(2s)	≤ 0.7(2s)	1.0±0.4
FEB	1.6±0.4	1.2±0.4	1.4±0.4	1.4±0.4	1.5±0.4	≤ 0.7(2s)
MAR	2.9±0.4	4.0±0.4	1.3±0.4	1.6±0.4	1.5±0.4	2.1±0.4
APR	keine Probe	6.1±0.4	1.8±0.4	2.1±0.4	2.1±0.4	2.2±0.4
MAI	2.0±0.4	5.7±0.4	2.8±0.4	2.4±0.4	2.9±0.4	3.0±0.4
JUN	3.4±0.4	5.2±0.4	2.8±0.4	3.2±0.4	2.7±0.4	3.2±0.4
JUL	3.3±0.4	4.1±0.4	2.2±0.4	2.8±0.4	3.1±0.4	3.8±0.4
AUG	3.4±0.4	4.7±0.4	2.5±0.4	2.4±0.4	2.8±0.4	3.1±0.4
SEP	2.1±0.4	4.5±0.4	1.6±0.4	1.2±0.4	1.3±0.4	2.1±0.4
OKT	9.2±0.5	32.0±0.7	2.3±0.4	keine Probe	1.9±0.4	2.3±0.4
NOV	2.4±0.4	9.9±0.5	2.0±0.4	2.0±0.4	2.6±0.4	3.0±0.4
DEZ	±0.4	3.1±0.4	2.0±0.4	1.8±0.4	2.0±0.4	1.2±0.4
Mittel 95*:	2.5	4.7	1.7	1.9	2.0	2.5
Mittel 94*:	2.9	5.4	1.5	1.8	2.1	2.7

Tabelle 3 (Fortsetzung): Tritium in Niederschlägen 1995

	Nyon (LHG)	La Brévine	Locarno
JAN	1.2±0.4	0.8±0.4	≤0.7(2s)
FEB	1.5±0.4	1.2±0.4	≤0.7(2s)
MAR	1.3±0.4	1.1±0.4	0.9±0.4
APR	4.8±0.4	2.1±0.4	1.9±0.4
MAI	2.0±0.4	1.5±0.4	1.0±0.4
JUN	3.0±0.4	3.2±0.4	1.8±0.4
JUL	2.0±0.4	1.5±0.4	keine Probe
AUG	3.1±0.4	2.4±0.4	2.3±0.4
SEP	1.6±0.4	1.5±0.4	1.6±0.4
OKT	1.8±0.4	0.8±0.4	2.1±0.4
NOV	2.1±0.4	2.0±0.4	≤0.7(2s)
DEZ	1.9±0.4	1.2±0.4	1.0±0.4
Mittel 95*:	1.8	1.4	1.5
Mittel 94*:	2.1	1.8	1.6

\* Mittel gewichtet nach Niederschlagsmenge  
\*\* arithmetisches Mitte

Alle Angaben in Becquerel pro Liter Wasser

Tabelle 4: Tritium Aare Brugg 1995

JAN	3.4±0.4
FEB	4.7±0.4
MAR	4.2±0.4
APR	6.5±0.4
MAI	10.9±0.5
JUN	4.2±0.4
JUL	3.9±0.4
AUG	2.7±0.5
SEP	3.4±0.4
OKT	3.3±0.4
NOV	5.6±0.4
DEZ	4.4±0.4
Mittel 95**:	4.8
Mittel 94**:	5.1

\* Mittel gewichtet nach Niederschlagsmenge  
\*\* arithmetisches Mitte

Alle Angaben in Becquerel pro Liter Wasser

Fig. 1:  $\Delta^{14}\text{C}$  Konzentration in Buchenblättern von den Referenzstationen

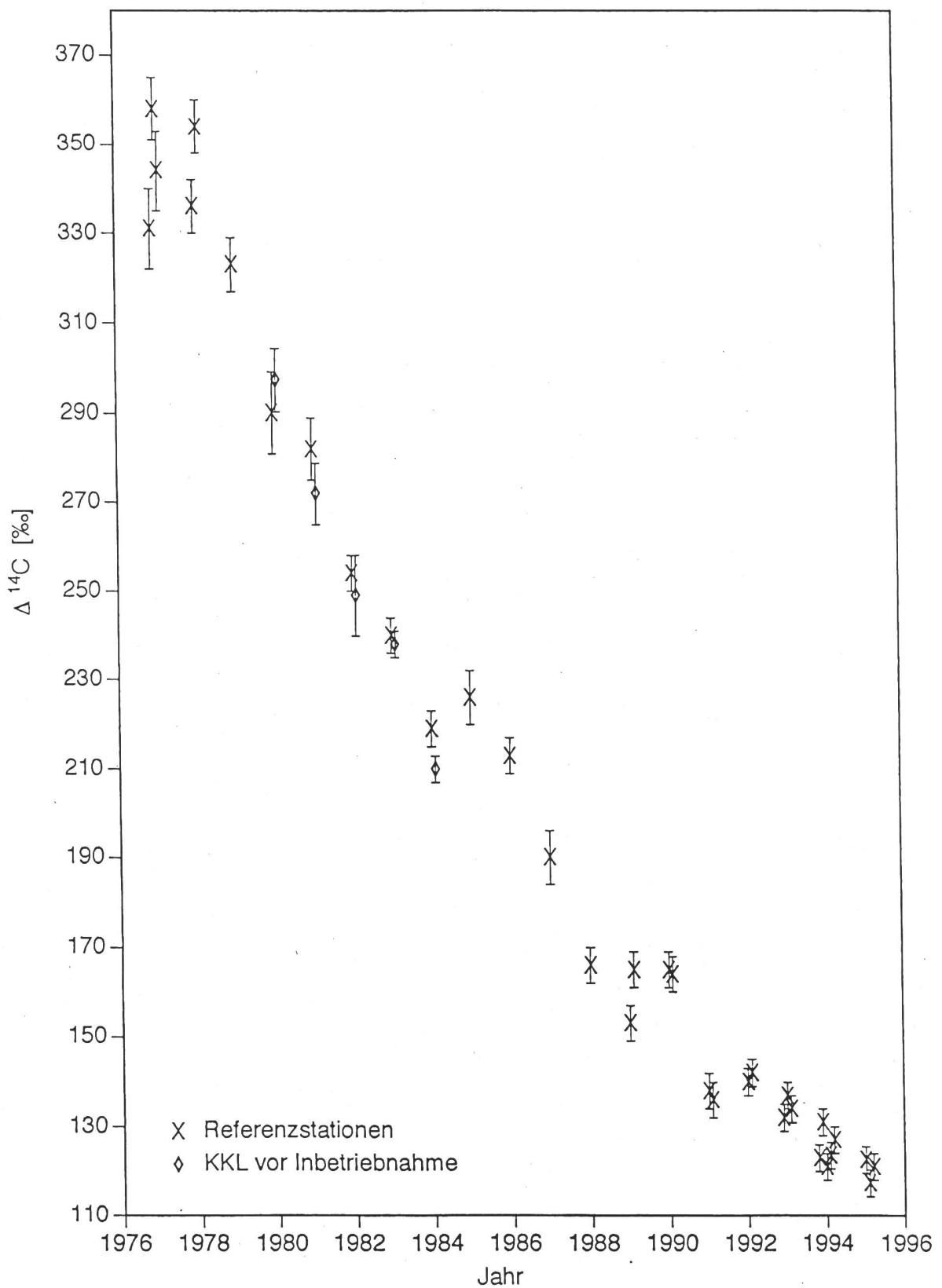


Fig. 2: Netto  $\Delta^{14}\text{C}$  Werte in der Umgebung vom KKB und vom PSI

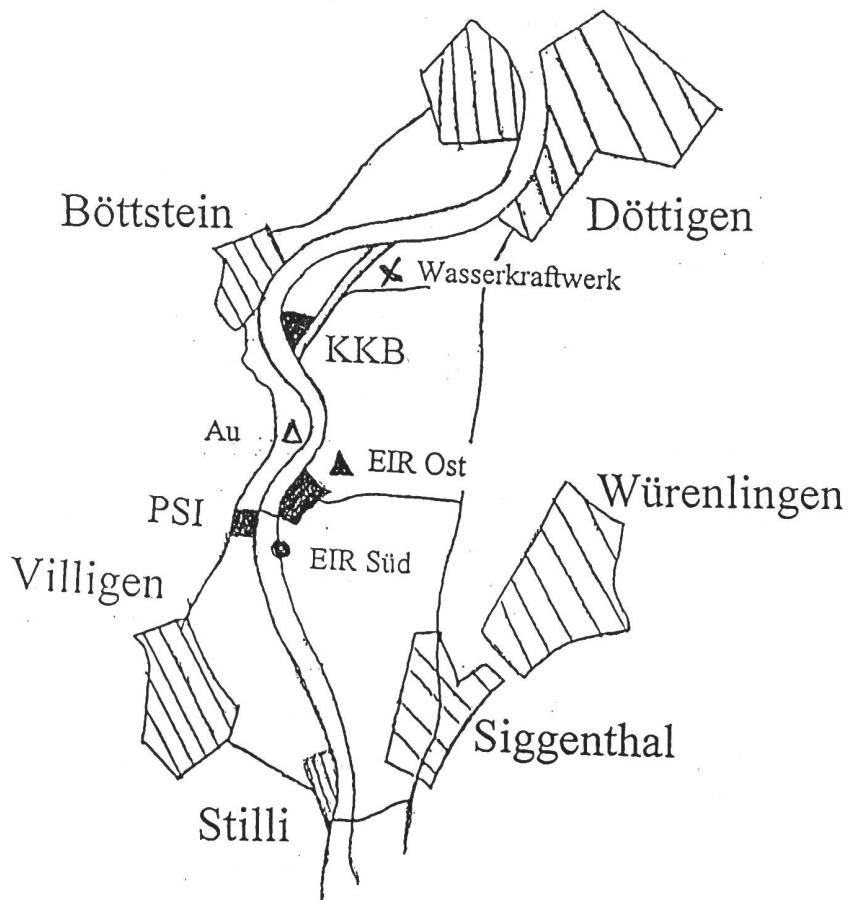
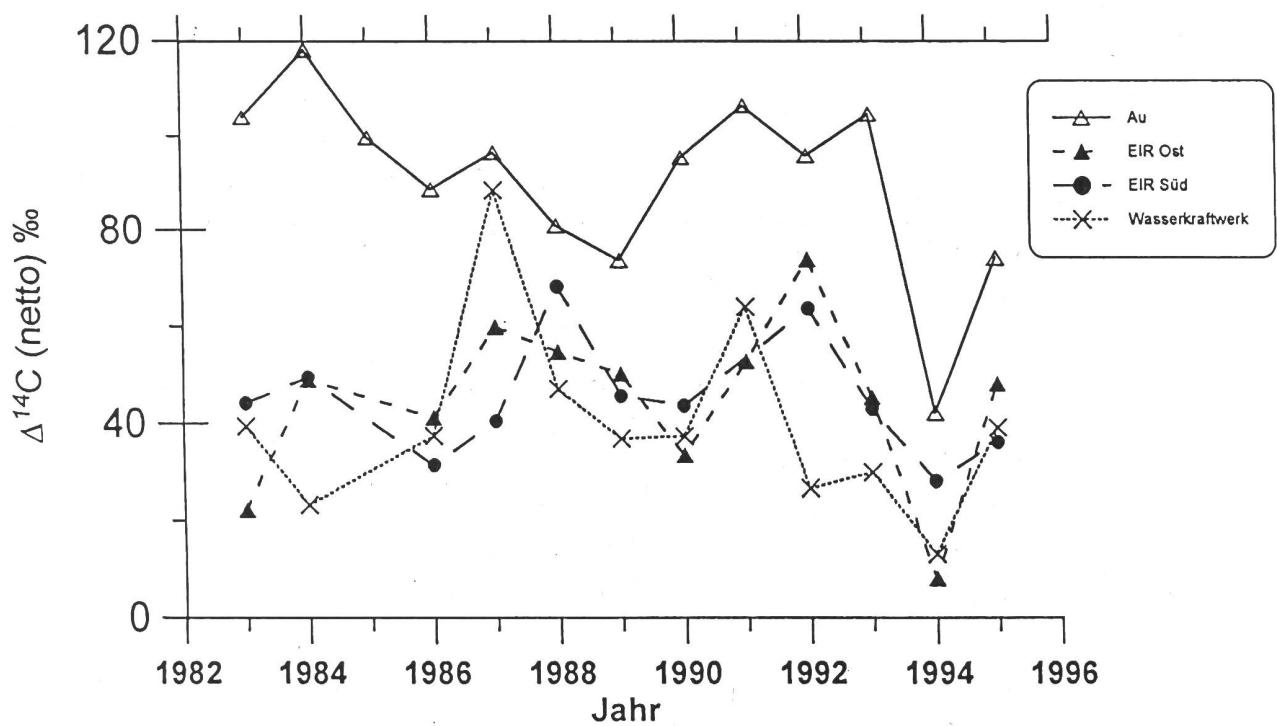
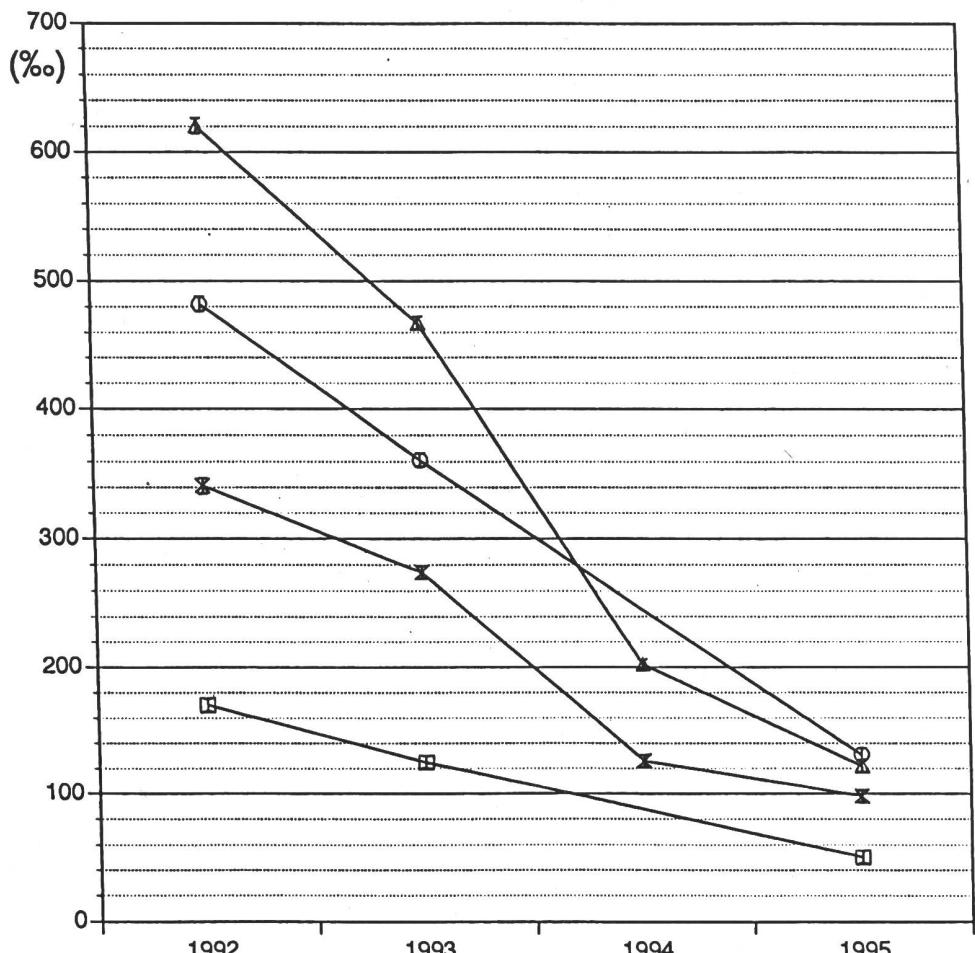


Fig. 3:  $\Delta^{14}\text{C}$  in der Umgebung des Reaktors SAPHIR (netto)



—□— A      —○— B      —△— C      —×— E

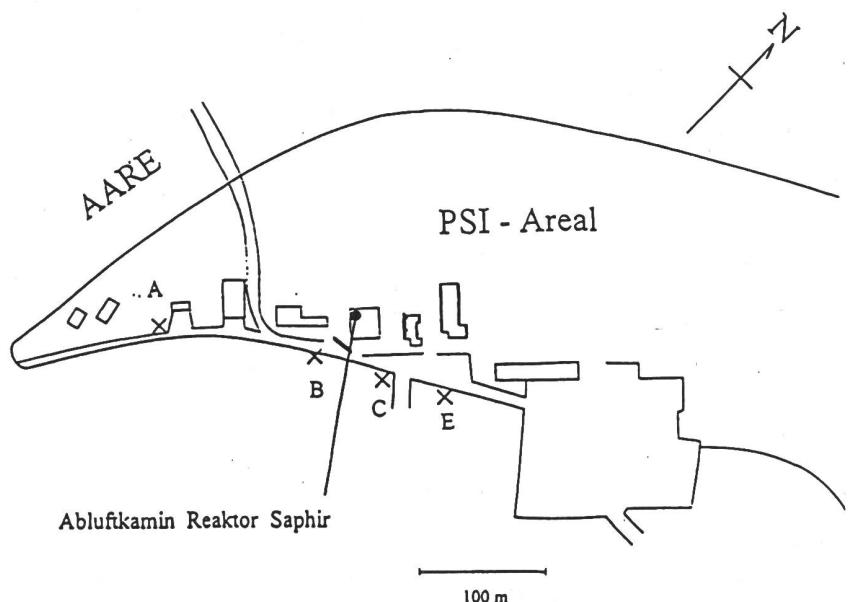


Fig. 4:  $\Delta^{14}\text{C}$  Aktivität in der Umgebung des KKG  
(netto, relativ zur Referenzstation)

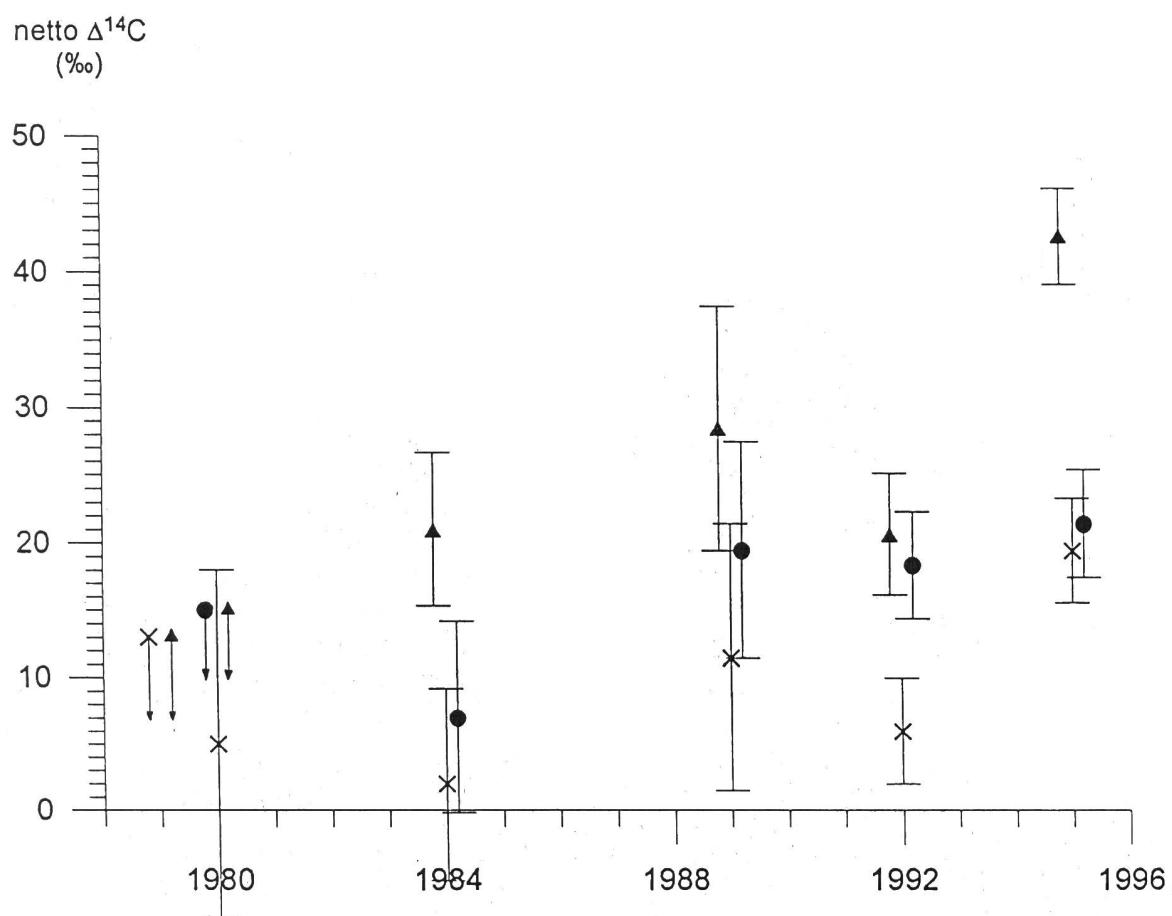
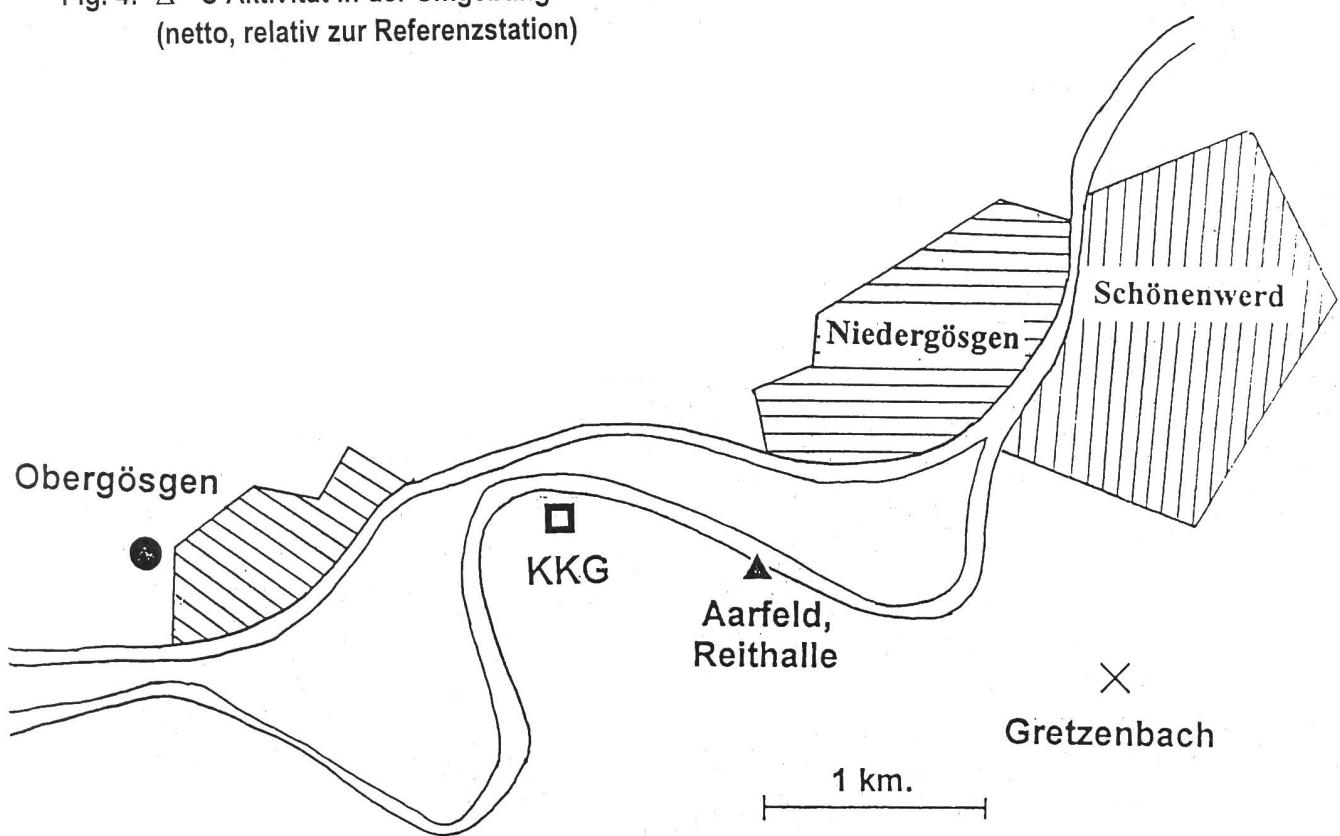


Fig. 5: Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte, Herbst 1995

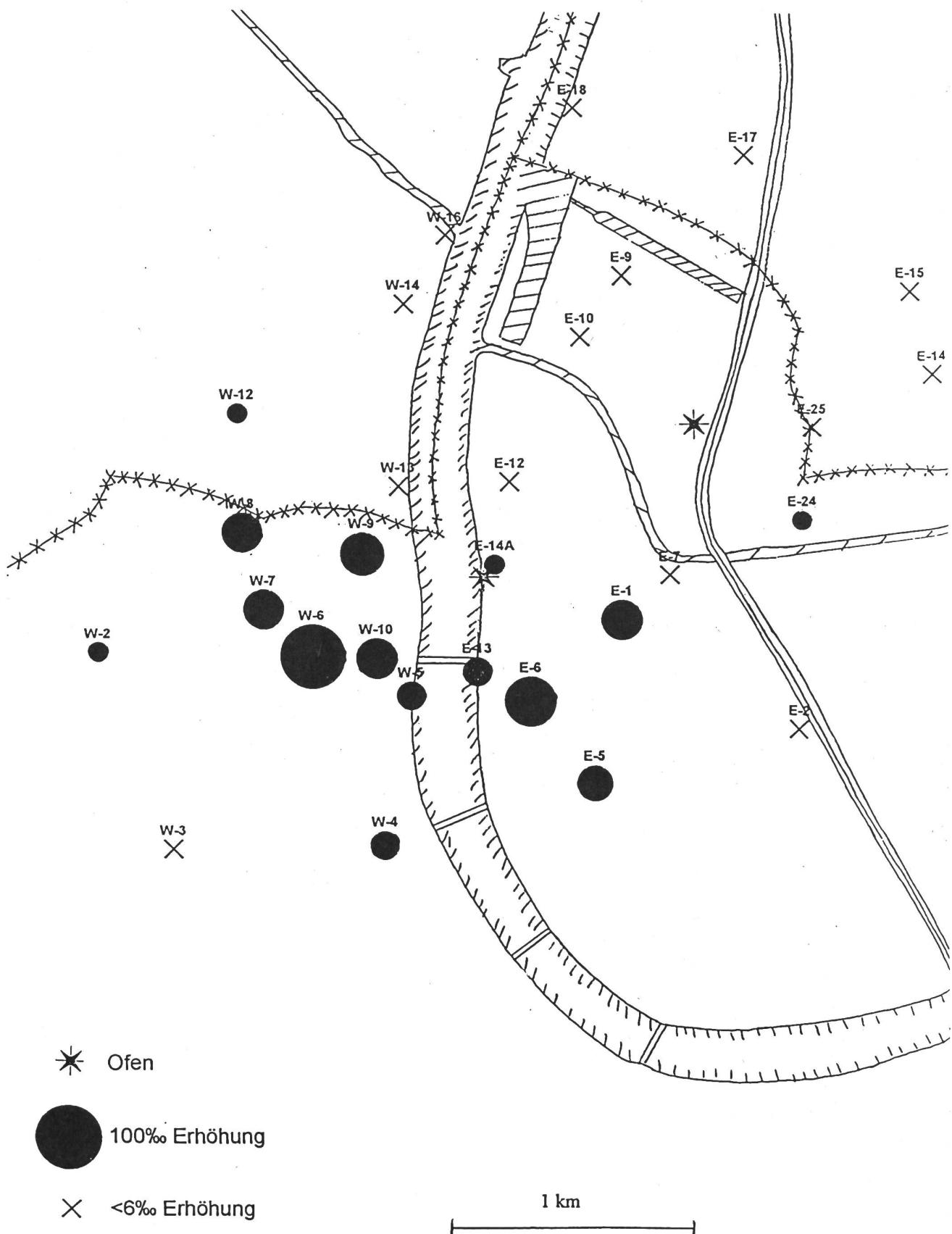


Fig. 6: Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in Basel  
(Standorte: siehe Figur 5)

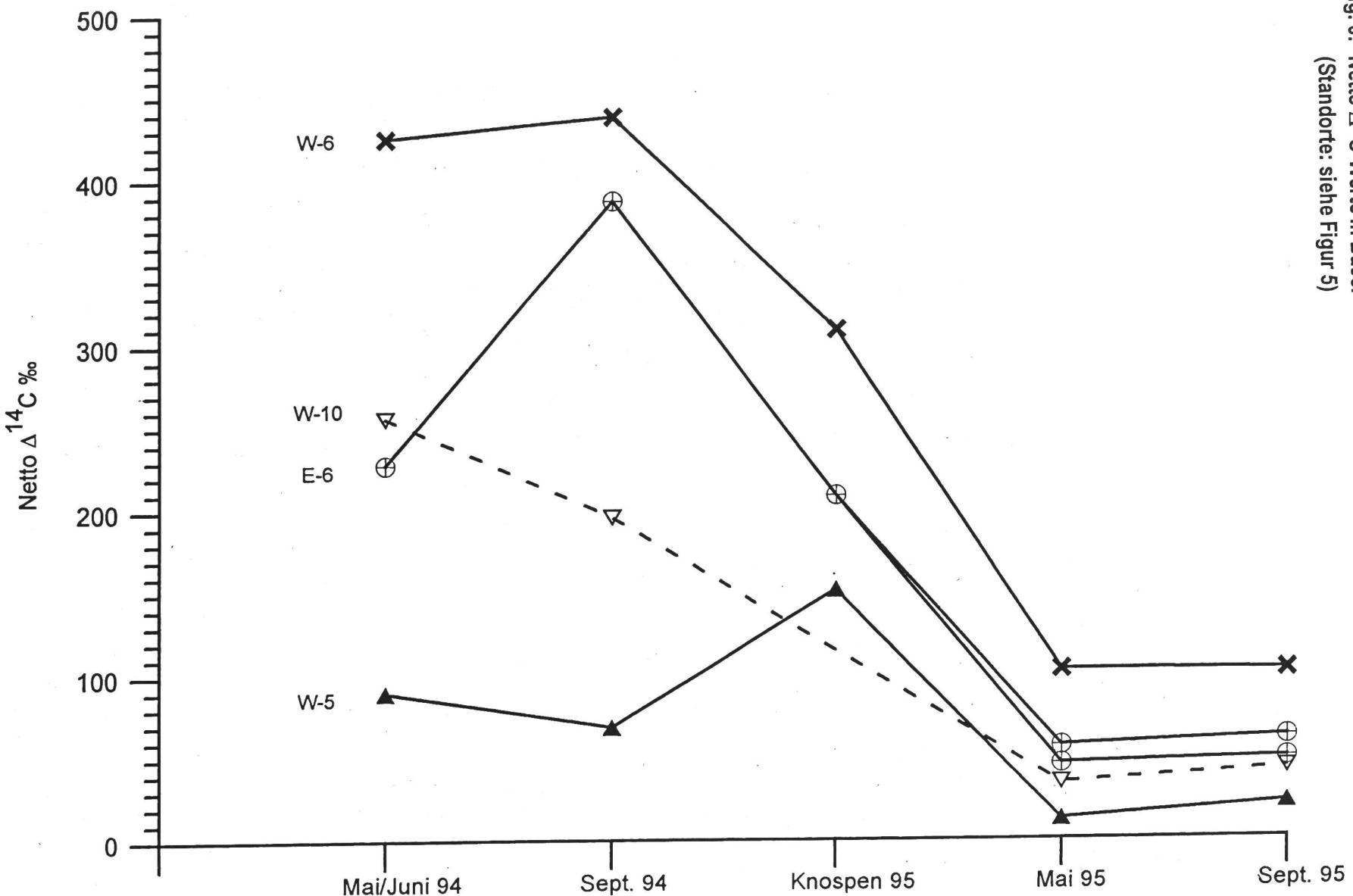


Fig. 7: Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in Basel  
(Standorte: siehe Figur 5)

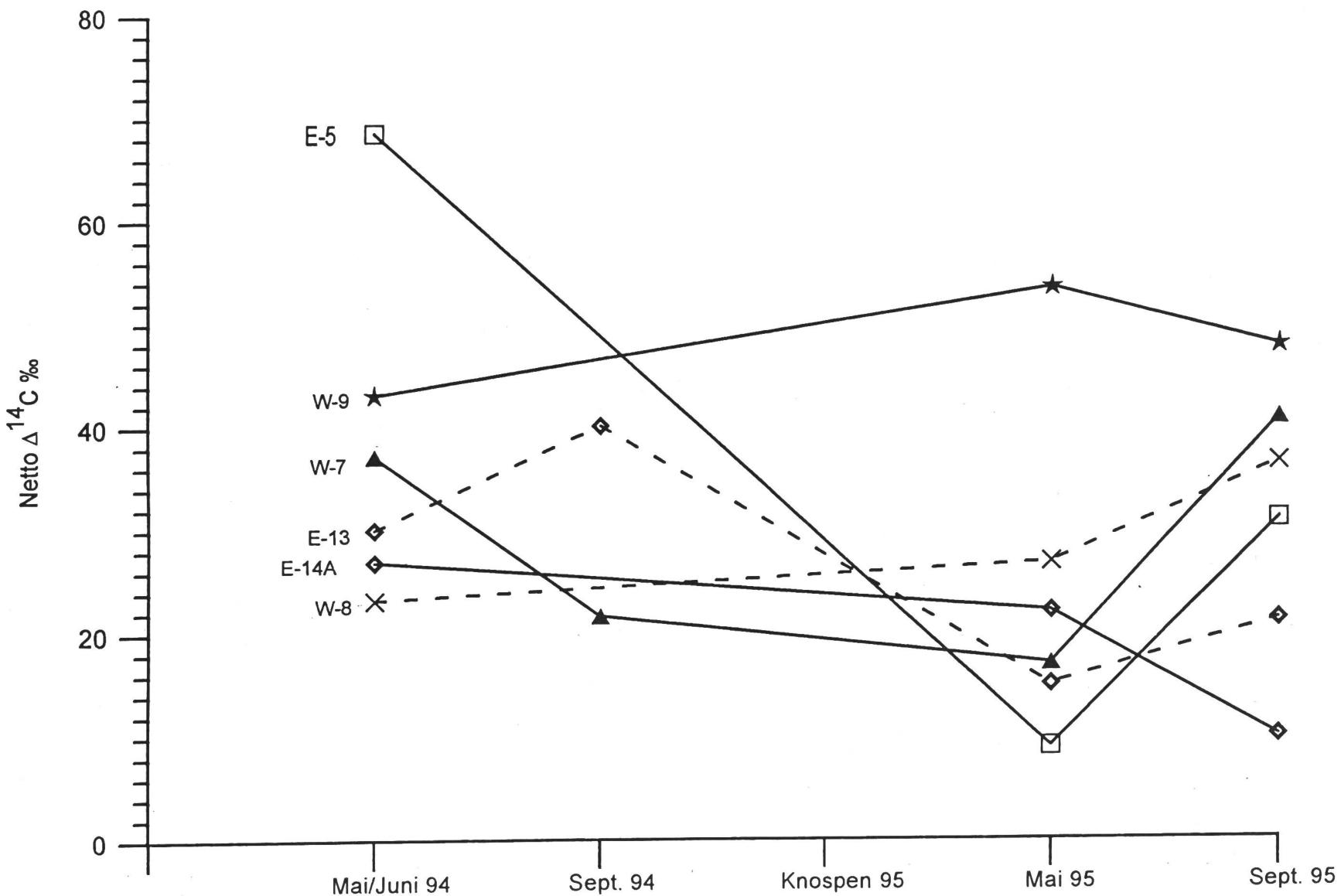


Fig. 8:  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivität in Luftproben von Jungfraujoch

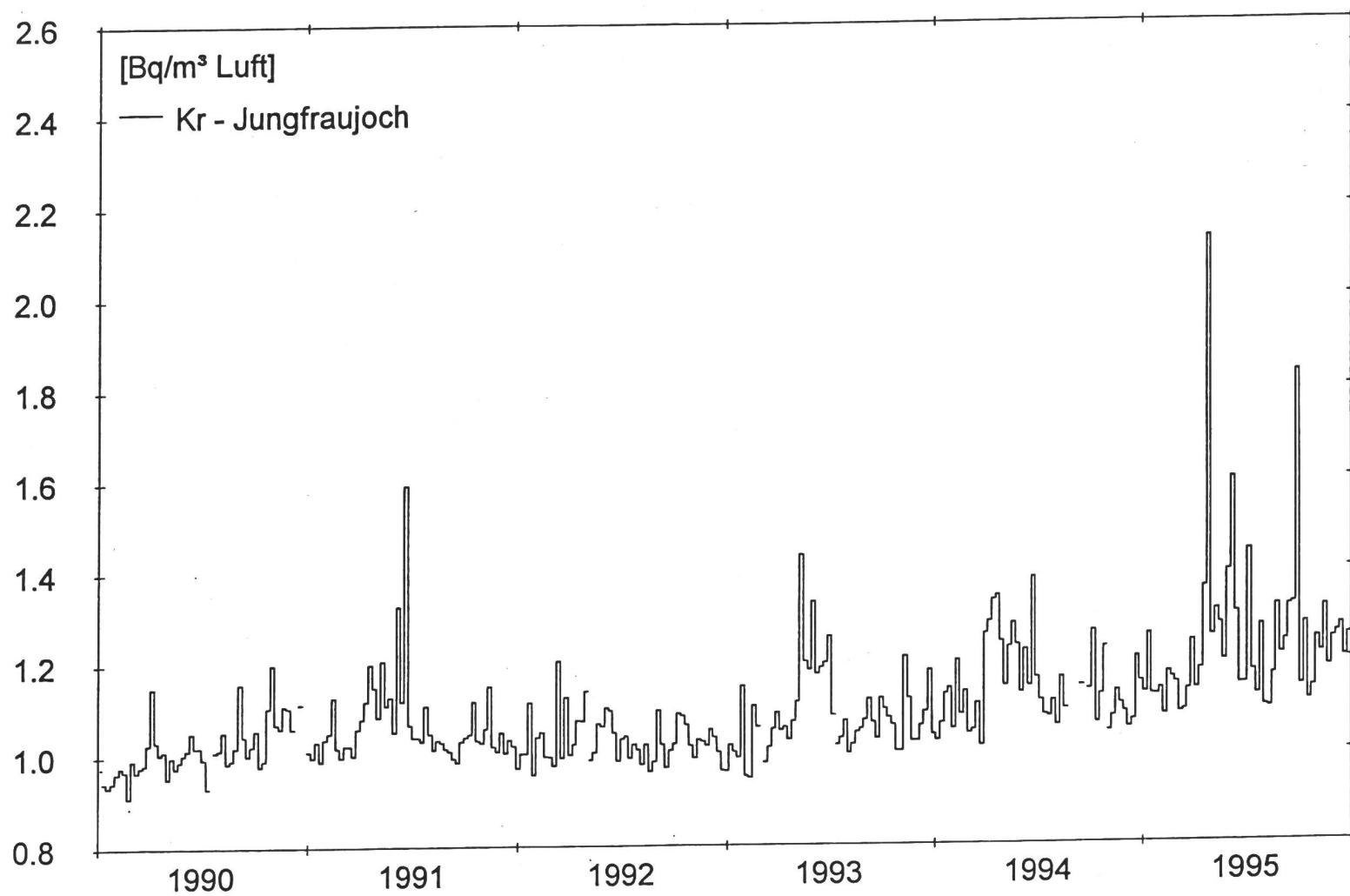


Fig 9a. Tritium im Regen 1993-1995  
Fribourg, Nyon, La Brévine, Locarno-Monti

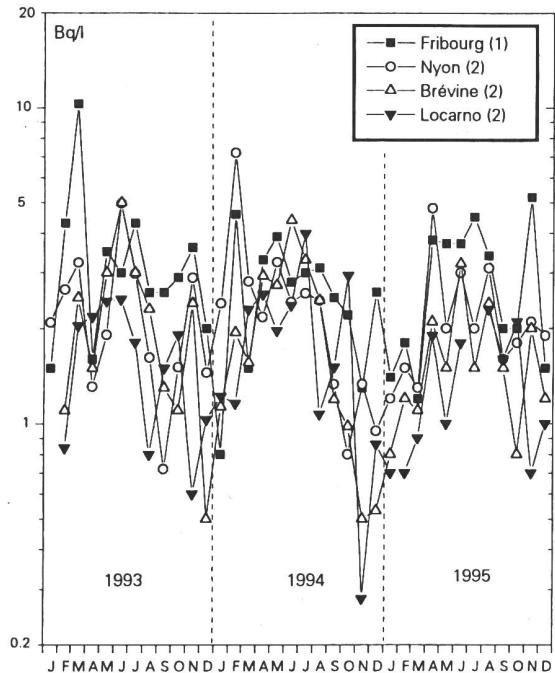


Fig 9b. Tritium im Regen 1993-1995  
Grimsel, Guttannen, Meiringen, Vaduz

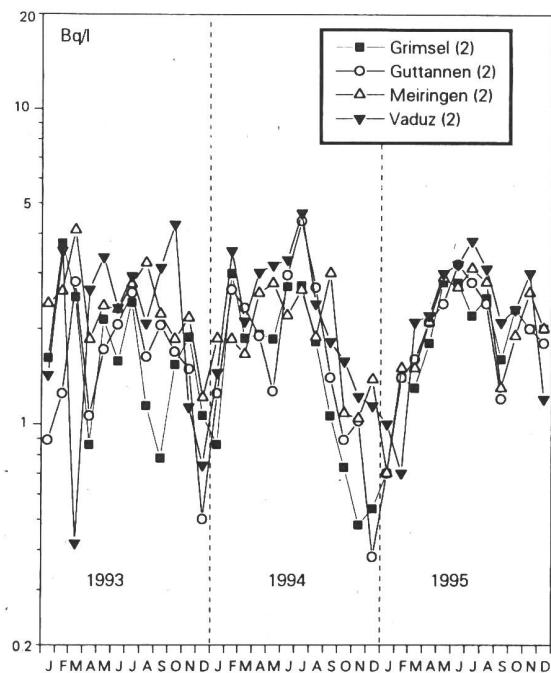


Fig 9c. Tritium im Regen 1993-1995  
Basel, Bern, PSI

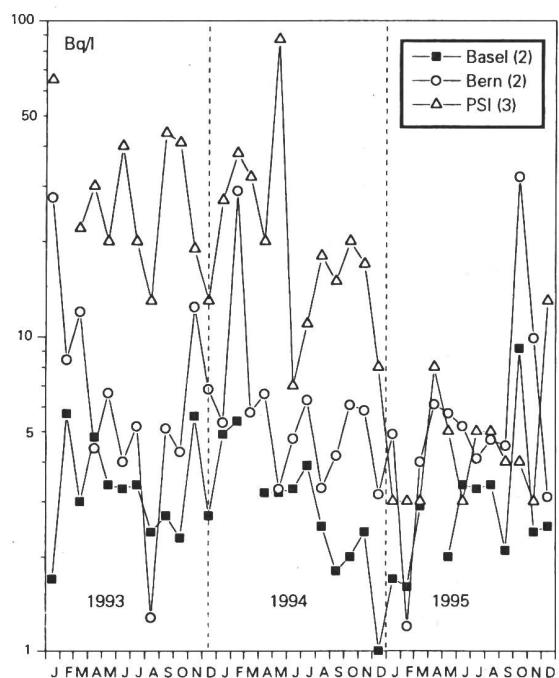
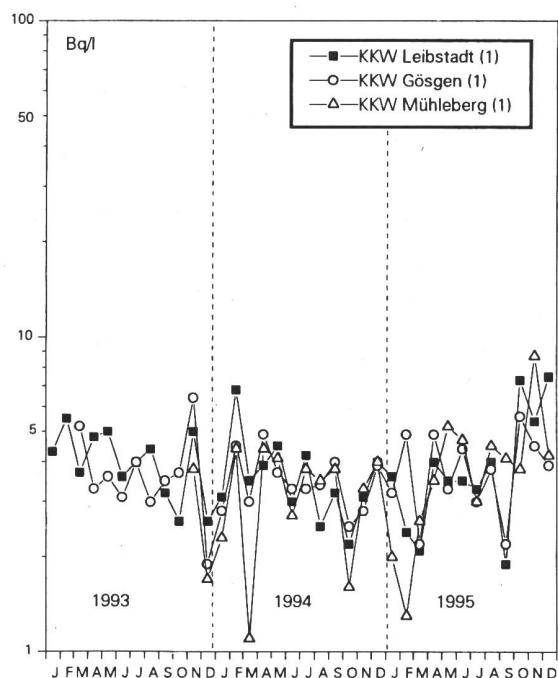


Fig 9d. Tritium im Regen 1993-1995  
KKW Leibstadt, Gösgen, Mühlberg



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

Fig 9e. Tritium im Regen  
Übersicht: Jahresmittel 1981-1995  
Basel, Guttannen, Locarno, Bern

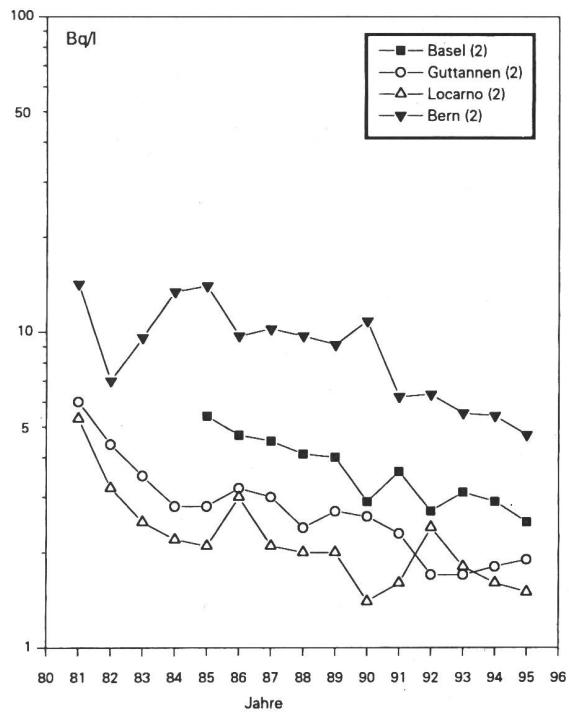


Fig 9f. Tritium im Flusswasser 1993-1995  
Doubs bei St. Ursanne / JU

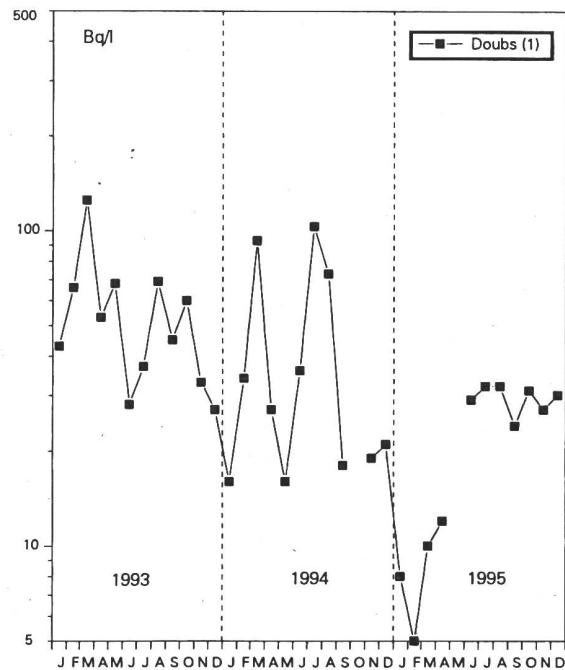


Fig 9g. Tritium im Flusswasser 1993-1995  
Aare oberhalb KKM und in Brugg / AG

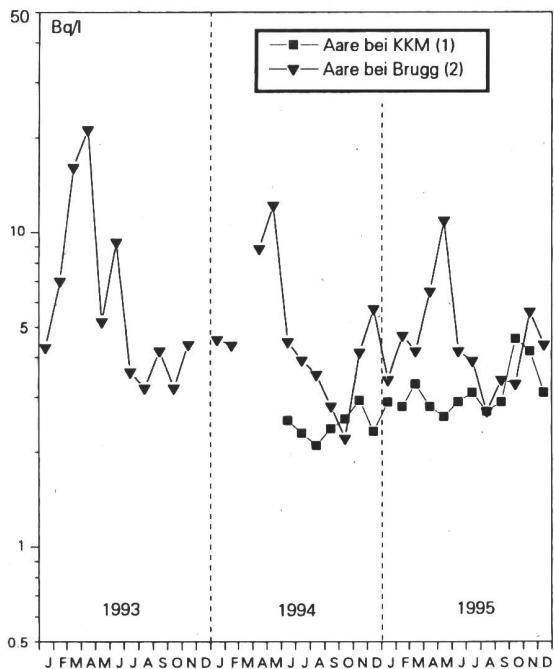
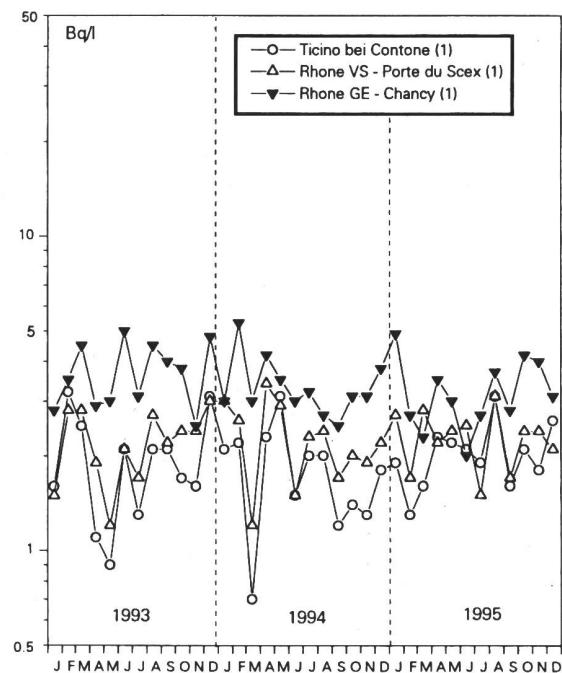


Fig 9h. Tritium im Flusswasser 1993-1995  
Ticino bei Contone / TI,  
Rhone bei Porte du Scex / VS und Chancy / GE



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

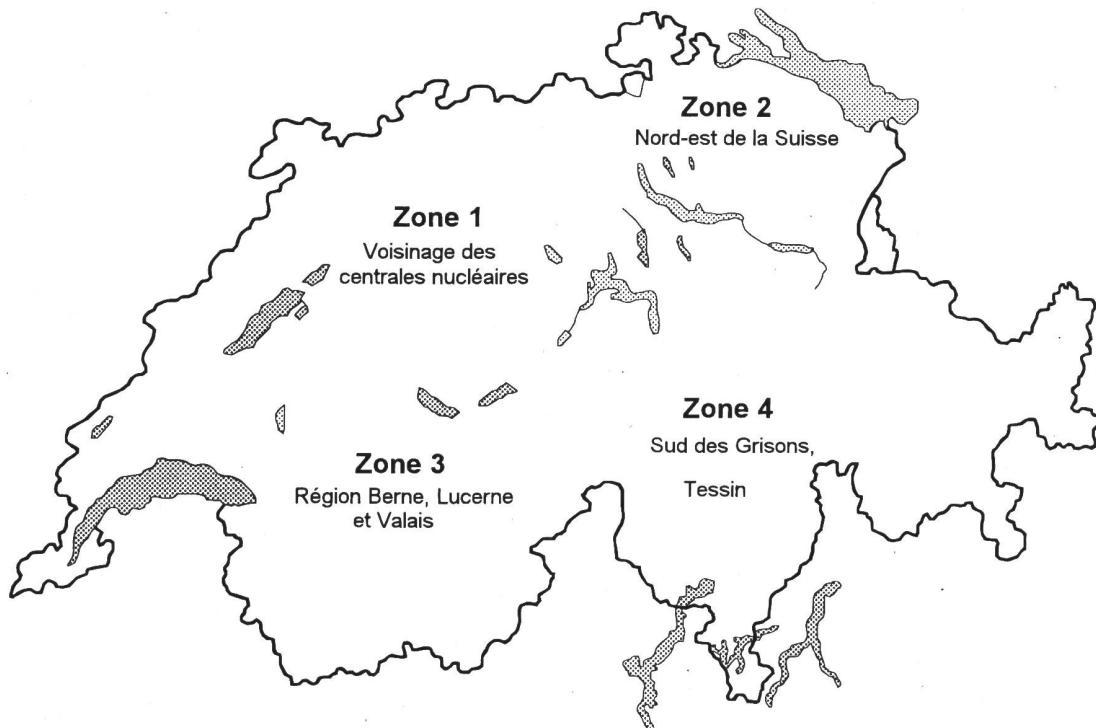
**W. Baur, M. Schibli** Division principale de la sécurité des installations nucléaires  
DSN, 5232 VILLIGEN-HSK

**M. Burger, F. Byrde** Laboratoire AC, 3700 SPIEZ

#### Résumé

Les équipes mobiles du laboratoire AC, de la DSN et de la SUER ont examiné par spectrométrie gamma *in situ* en 1995, 78 sites répartis dans les zones de la figure 1. La méthode de mesure et d'évaluation utilisée en Suisse est conforme aux dernières recommandations du rapport ICRU 53 [1]. Les débits de dose ambiante enregistrés 1 m au-dessus du sol ont été compris entre 80 et 200 nSv/h. Les données en Sievert se basent sur une conversion des Röntgen (mesurés) selon:  $1 \mu\text{R}/\text{h} = 10 \text{nSv}/\text{h}$ . La contribution **naturelle**, qui représente selon les sites 60 à 99% du débit de dose global, prédomine. La part **artificielle**, due essentiellement au  $^{137}\text{Cs}$  de Tchernobyl, s'échelonne de quelques pour-cent pour le Plateau suisse à 40% dans les sites les plus touchés du sud du Tessin, de certaines vallées du Simplon et des Grisons. Le comportement des contaminations dans les sols suisses fait partie d'une étude radioécologique, dont une première synthèse [2] a été publiée. En plus de la décroissance liée au périodes des radionucléides en question, cette étude confirme un recul additionnel de l'impact des contaminations sur l'exposition externe, attribuable au transfert des radionucléides artificiels dans les couches plus profondes du sol.

Fig. 1: Zones d'examens *in situ* 1995



### 3.3.1. ZONE 1: Plateau suisse (voisinage des centrales nucléaires: DSN/SUER)

Depuis 1984, la DSN et la SUER contrôlent annuellement 4 sites du voisinage de chaque installation nucléaire par spectrométrie gamma in situ. La DSN a étendu l'exploitation de cette méthode de surveillance aux stations du réseau MADUK (57 au total) afin de suivre périodiquement l'évolution des niveaux spectrométriques par rapport aux valeurs de référence déterminées en 1993. Sur la base des contrôles 1995, les concentrations (Bq/kg in situ) des radionucléides artificiels n'ont indiqué aucune augmentation par rapport à l'année précédente. Par conséquent l'exploitation des installations nucléaires suisses n'a entraîné, sur la période de surveillance, aucune déposition ou accumulation de radionucléides gamma susceptibles de porter préjudice à l'environnement examiné et à la population qui y réside. Le tableau 1 résume les concentrations naturelles et artificielles évaluées par spectrométrie gamma in situ en 1995 sur la base d'une distribution uniforme des radionucléides dans le sol.

Tableau 1: Activités in situ en Bq/kg

Concentrations in situ en Bq/kg frais	Moyennes naturelles			Domaines artificiels		
	$^{40}\text{K}$	$^{232}\text{Th}$	$^{238}\text{U}$	$^{60}\text{Co}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$
KKB/PSI (11 sites)	330±60	24±4	30±5	< 0.5	< 0.5-1.1	17-44
KKG (12 sites)	320±40	21±3	28±5	< 0.5	< 0.5	11-23
KKL (11 sites)	350±70	21±3	30±5	< 0.5	< 0.5	7-35
KKM (11 sites)	480±70	21±4	30±5	< 0.5-1.2	< 0.5-1.4	5-27

On remarque une teneur accrue de  $^{40}\text{K}$  naturel dans les sols du voisinage de Mühleberg (présence d'engrais), dont certains montrent encore des traces du rejet KKM 1986 au niveau du  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  et  $^{137}\text{Cs}$ . Sinon les activités des isotopes du césium redonnent l'image des retombées de Tchernobyl avec des concentrations plus élevées vers le nord-est. Le tableau 2 résume les contributions correspondantes au débit de dose ambiante 1 m au-dessus du sol.

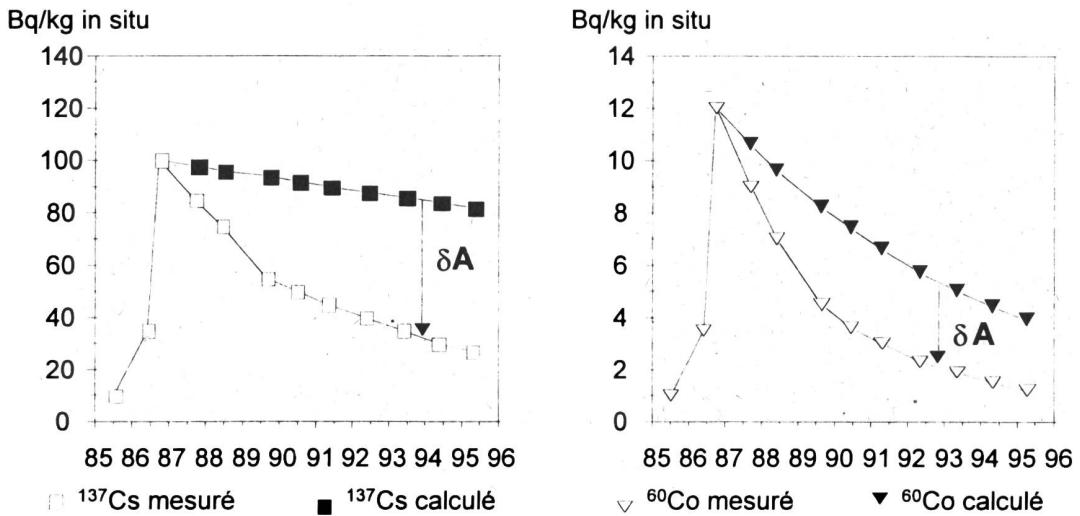
Tableau 2: Contributions au débit de dose ambiante en nSv/h (avec 1  $\mu\text{R}/\text{h}$  = 10 nSv/h)

Débit de dose ambiante en nSv/h	Terrestre	Cosmique	Naturel	Artificiel	Total in situ	Chambre d'ionisation
KKB/PSI (11 sites)	42±5	43±1	85±6	5±2	90±6	90±7
KKG (12 sites)	40±4	43±1	83±4	3±1	86±4	87±8
KKL (11 sites)	41±5	42±1	83±5	4±1	87±5	87±7
KKM (11 sites)	46±6	45±1	91±6	3±1	94±6	95±7

La comparaison MADUK-chambre d'ionisation RSS confirme le rapport moyen MADUK/RSS =  $1.17 \pm 0.04$

L'étude du comportement des radionucléides artificiels dans le sol est illustrée dans l'exemple de la figure 2. La différence  $\delta A$  entre l'activité théorique  $A_{th}$  tenant compte de la décroissance radioactive et l'activité mesurée  $A_{me}$  traduit le transfert du radionucléide en question dans le sol.

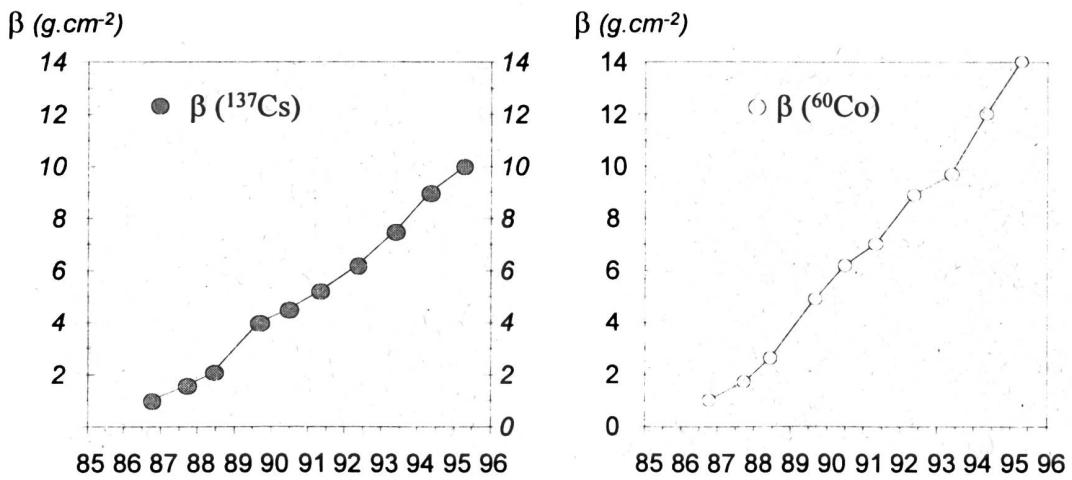
**Figure 2: Evolution de l'activité  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{60}\text{Co}$  à Horn Weide (KKM)**



Le comportement des radionucléides artificiels dans le sol peut être caractérisé par le paramètre  $\beta$  ( $\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$ ) comme l'illustre la fig. 3. Ce paramètre désigne la relaxation massique par unité de surface dans le modèle de distribution exponentielle de l'activité selon la profondeur [1]. Le tableau ci-après indique pour le  $^{137}\text{Cs}$  l'évolution du facteur de conversion  $F_\beta$  ( $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$  in situ en  $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$ ) en fonction du paramètre  $\beta$ .

$\beta(\text{g} \cdot \text{cm}^{-2})$	0	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	10	20	30	40	50
$F_\beta (\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}/\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1})$	30	53	67	80	90	103	160	260	360	460	560

**Figure 3: Comportement du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{60}\text{Co}$  à Horn Weide (KKM)**



On constate une plus grande mobilité pour le transfert du  $^{60}\text{Co}$  par rapport au  $^{137}\text{Cs}$ . Ainsi l'inventaire en  $\text{Bq}/\text{m}^2$  du  $^{137}\text{Cs}$  resp. du  $^{60}\text{Co}$  présent dans le sol à Ufem Horn s'obtient en multipliant les activités  $\text{Bq}/\text{kg}$  in situ mesurées en 1995 (fig. 2) par 160 pour le césium resp. 215 pour le cobalt. L'augmentation de  $\delta A$  d'un an sur l'autre confirme qu'aucune nouvelle déposition n'a eu lieu durant la période du suivi.

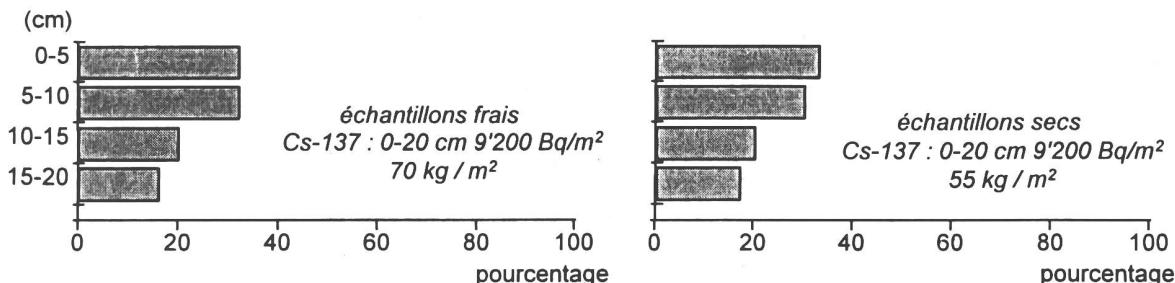
### 3.3.2. ZONE 2: Nord-est de la Suisse (SUER)

Le tableau 3 rend compte des activités in situ mesurées en 1995 dans le nord-est de la Suisse. La distribution de l'activité  $^{137}\text{Cs}$  déterminée à Arenenberg (figure 4) montre une bonne concordance entre les résultats des échantillons frais et séchés, si l'on tient compte des  $\text{kg}/\text{m}^2$  respectifs.

Tableau 3: Activités in situ en  $\text{Bq}/\text{kg}$

Concentrations in situ en $\text{Bq}/\text{kg}$ frais	Radionucléides naturels			Radionucléides artificiels		
	$^{40}\text{K}$	$^{232}\text{Th}$	$^{238}\text{U}$	$^{125}\text{Sb}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$
Arenenberg / TG	310±20	18±2	28±5	< 2.4	1.1±0.3	37±2
Bargen / SH	250±20	27±3	30±5	< 3.4	1.9±0.4	61±4
Hallau / SH	320±20	20±3	35±5	< 3.1	0.8±0.3	32±2
Dübendorf / ZH	190±15	18±2	28±5	< 2.8	0.6±0.3	25±2
Weiach / ZH	495±35	33±3	32±5	< 3.1	< 0.8	18±2

Figure 4: Inventaire et distribution de l'activité  $^{137}\text{Cs}$  à Arenenberg (23.6.95) dans des profils de 0-20 cm



Les analyses de l'IRA ont donné 2.3  $\text{Bq}/\text{kg}$  de  $^{90}\text{Sr}$  dans les profils respectifs correspondant à un inventaire  $^{90}\text{Sr}$  de 500  $\text{Bq}/\text{m}^2$  dans la couche 0-20 cm. La restitution de l'inventaire  $^{137}\text{Cs}$  ( $9200 \text{ Bq}/\text{m}^2$ ) à partir des mesures in situ implique une relaxation massique par unité de surface  $\beta = 18 \cdot \text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$  en 1995. En utilisant le rapport d'activité  $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$  voisin de 30 en 1995, on peut estimer que environ 2000  $\text{Bq}/\text{m}^2$   $^{137}\text{Cs}$  proviennent encore de la retombée des essais nucléaires et 7000  $\text{Bq}/\text{m}^2$  de l'accident de Tchernobyl. Le tableau 4 résume les contributions correspondantes au débit de dose ambiante 1 m au-dessus du sol.

Tableau 4: Contributions au débit de dose ambiante en  $\text{nSv}/\text{h}$  (avec 1  $\mu\text{R}/\text{h} = 10 \text{ nSv}/\text{h}$ )

Débit de dose ambiante en $\text{nSv}/\text{h}$	Terrestre	Cosmique	Naturel	Artificiel	Total in situ	Chambre d'ionisation
Arenenberg / TG	37±4	44±2	81±5	6±1	87±5	85±5
Bargen / SH	41±4	47±2	88±5	10±1	98±5	94±5
Hallau / SH	42±4	46±2	88±5	5±1	93±5	93±5
Dübendorf / ZH	32±3	44±2	76±5	4±1	80±5	80±5
Weiach / ZH	55±5	44±2	99±5	3±1	102±5	109±5

### 3.3.3. ZONE 3: Suisse centrale et Valais (AC Spiez / SUER)

Les résultats 1995 des mesures in situ du laboratoire AC Spiez et de la SUER font l'objet des tableaux 5 et 6.

Tableau 5: Activités in situ en Bq/kg

Concentrations in situ Bq/kg frais	Radionucléides naturels			Radionucléides artificiels		
	<sup>40</sup> K	<sup>232</sup> Th	<sup>238</sup> U	<sup>125</sup> Sb	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs
Novel Grand Pré / VS	190±15	14±2	25±5	< 2.7	0.6±0.3	24±2
L'A Neuve / VS	250±20	16±2	40±5	< 3.5	1.7±0.3	66±4
Mauvoisin / VS	460±30	35±2	35±5	< 3.2	< 0.8	8.4±0.9
Zinal / VS	410±30	22±2	25±5	< 2.7	< 0.8	39±2
Mattmark / VS	250±20	18±2	35±5	< 3.1	2.5±0.4	90±5
Zeuzier / VS	370±25	25±2	30±5	< 2.8	< 0.8	33±2
Blatten Fafteralp / VS	675±45	32±2	35±5	< 3.4	< 1.0	44±3
Simplon Spittel / VS	360±25	21±2	40±5	< 3.1	5.3±0.6	210±10
Simplon Hospiz / VS	410±40	30±3	40±5	< 4.0	4.1±0.7	150±15
Simplon Dorf / VS	630±60	45±3	50±5	< 4.0	5.7±0.8	190±20
Gondo / VS	900±90	50±4	70±5	< 5.0	14±2	460±50
Bällega Gondo / VS	660±70	45±3	60±5	< 5.0	7.3±0.9	280±30
Biella Gondo / VS	560±60	45±3	50±5	< 5.0	7.4±0.9	240±20
Zwischbergen / VS	435±30	20±2	50±5	< 5.8	9.2±0.7	335±20
Brienz / BE	540±40	34±2	40±5	< 3.9	< 1.0	35±2
Lucerne / LU	380±25	21±2	30±5	< 2.4	< 0.7	22±2
Diesse - Fahrni - Thun / BE	240±40	20±3	25±5	< 3.0	< 0.7	14±2

Tableau 6: Contributions au débit de dose ambiante 1 m au-dessus du sol en nSv/h ( $1\mu\text{R}/\text{h} = 10 \text{nSv}/\text{h}$ )

Débit de dose ambiante	Terrestre	Cosmique	Naturel	Artificiel	Calcul	Mesure
Novel Grand Pré / VS	28±3	52±3	80±5	4±1	84±5	80±5
L'A Neuve / VS	39±4	68±3	107±5	11±1	118±5	120±5
Mauvoisin / VS	56±5	76±4	132±5	1.3±0.2	133±5	130±5
Zinal / VS	42±4	70±4	112±5	6±1	118±5	111±5
Mattmark / VS	37±4	82±4	119±5	15±1	134±5	120±5
Zeuzier / VS	44±4	73±4	117±5	5±1	122±5	115±5
Blatten Fafteralp / VS	64±5	72±4	136±5	7±1	143±5	148±5
Simplon Spittel / VS	46±4	74±4	120±5	36±2	156±6	140±6
Simplon Hospiz / VS	54±5	79±4	133±6	26±3	159±7	140±10
Simplon Dorf / VS	77±7	62±3	139±8	33±3	172±8	160±10
Gondo / VS	100±10	50±3	150±10	80±8	230±10	200±10
Bällega Gondo / VS	82±8	58±3	140±8	48±5	188±9	160±10
Biella Gondo / VS	74±7	68±3	142±8	42±4	184±9	175±10
Zwischbergen / VS	53±5	62±3	115±5	58±4	173±7	155±10
Brienz / BE	62±5	46±2	108±5	6±1	114±5	119±5
Lucerne / LU	42±4	44±2	86±5	4±1	90±5	89±5
Diesse - Fahrni - Thun / BE	34±3	46±2	80±4	2±1	82±5	80±5

On constate une plus forte déposition  $^{137}\text{Cs}$  dans la région du Simplon. Pour ces sites du Valais, le calcul *in situ* tend à surestimer la contribution artificielle au débit de dose par rapport à la mesure avec chambre d'ionisation, en raison de l'hypothèse d'une distribution homogène des radionucléides artificiels dans le sol.

### 3.3.4. ZONE 4: Tessin et Grisons (SUER)

Le Tessin et les vallées sud des Grisons figurant parmi les régions les plus touchées par l'accident au réacteur de Tchernobyl sont plus particulièrement examinés, afin d'y suivre le comportement de la contamination et de l'exposition du public qui en résulte. Les résultats 1995 qui s'y rapportent font l'objet des tableaux 7 et 8.

Tableau 7: Activités *in situ* en Bq/kg

Concentrations <i>in situ</i> en Bq/kg frais	Radionucléides naturels			Radionucléides artificiels		
	$^{40}\text{K}$	$^{232}\text{Th}$	$^{238}\text{U}$	$^{125}\text{Sb}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$
Caslano / TI	540±40	32±2	55±5	3.1±2.4	7.0±0.7	230±15
Lugano / TI	580±40	35±3	40±5	< 3.3	0.7±0.4	24±2
Stabio / TI	490±30	24±2	35±5	5.8±2.6	9.1±0.7	310±20
Magadino / TI	640±40	40±2	70±5	< 4.5	2.0±0.5	75±5
Caneggio / TI	180±15	12±1	20±5	< 4.0	4.1±0.4	155±10
Piotta (Ritom) / TI	470±30	34±3	35±5	< 4.7	3.9±0.4	130±7
Mesocco (Ronca) / GR	450±30	27±2	30±5	< 5.2	6.0±0.6	235±15
Hinterrhein / GR	450±30	27±2	45±5	< 5.4	6.8±0.6	230±15
Siat / GR	520±40	36±3	75±5	< 4.3	< 1.2	13±1

Tableau 8: Contributions au débit de dose ambiante 1 m au-dessus du sol en nSv/h ( $1 \mu\text{R}/\text{h} = 10 \text{nSv}/\text{h}$ )

Débit de dose ambiante en nSv/h	Terrestre	Cosmique	Naturel	Artificiel	Total <i>in situ</i>	Chambre d'ionisation
Caslano / TI	67±4	41±2	108±5	40±3	148±5	135±5
Lugano / TI	64±4	41±2	105±5	4±1	109±5	115±5
Stabio / TI	51±4	42±2	93±5	54±4	147±5	138±5
Magadino / TI	83±5	40±2	123±5	13±1	136±5	133±5
Caneggio / TI	24±4	46±2	70±5	27±2	97±5	90±5
Piotta (Ritom) / TI	56±4	75±4	131±5	23±2	154±5	147±5
Mesocco (Ronca) / GR	49±4	50±3	99±5	40±3	139±5	128±5
Hinterrhein / GR	56±4	68±4	124±5	40±3	164±5	156±7
Siat / GR	79±5	61±2	140±5	2±1	142±5	150±5

Les figures 5 et 6 résument le comportement du  $^{137}\text{Cs}$  dans les sites de Caslano et Hinterrhein sur la base de l'évolution du paramètre  $\beta$ . On constate que pour une activité *in situ* apparemment égale en 1995 (230 Bq/kg), l'inventaire ( $\text{Bq}/\text{m}^2 \ ^{137}\text{Cs}$ ) est plus important à Caslano, en raison d'un transfert plus rapide du césium qu'à Hinterrhein.

Figure 5: Comportement du  $^{137}\text{Cs}$  dans le sol de Caslano

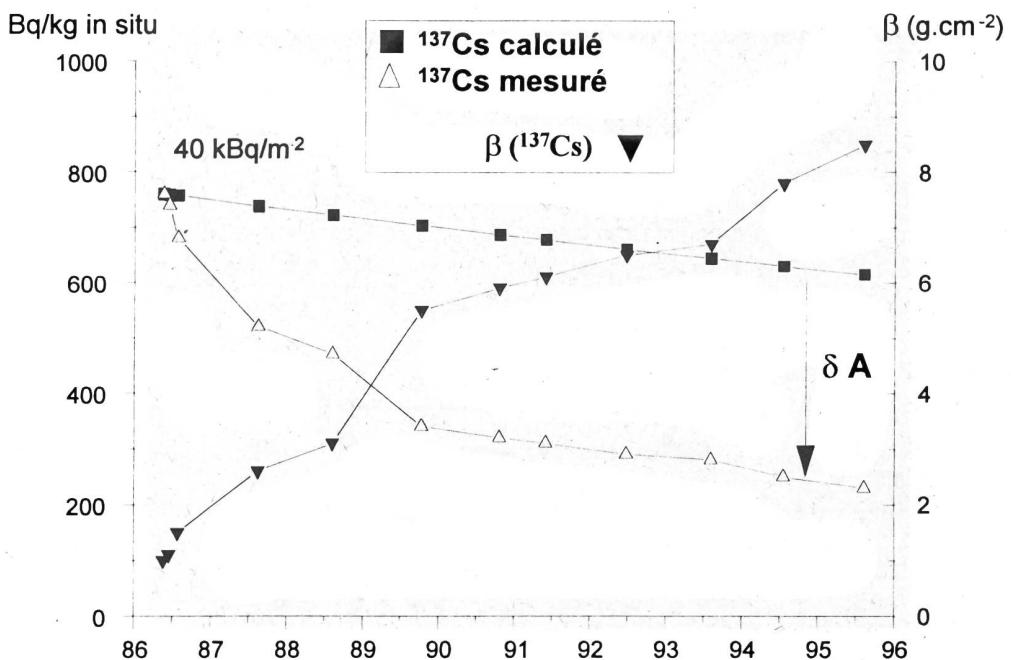
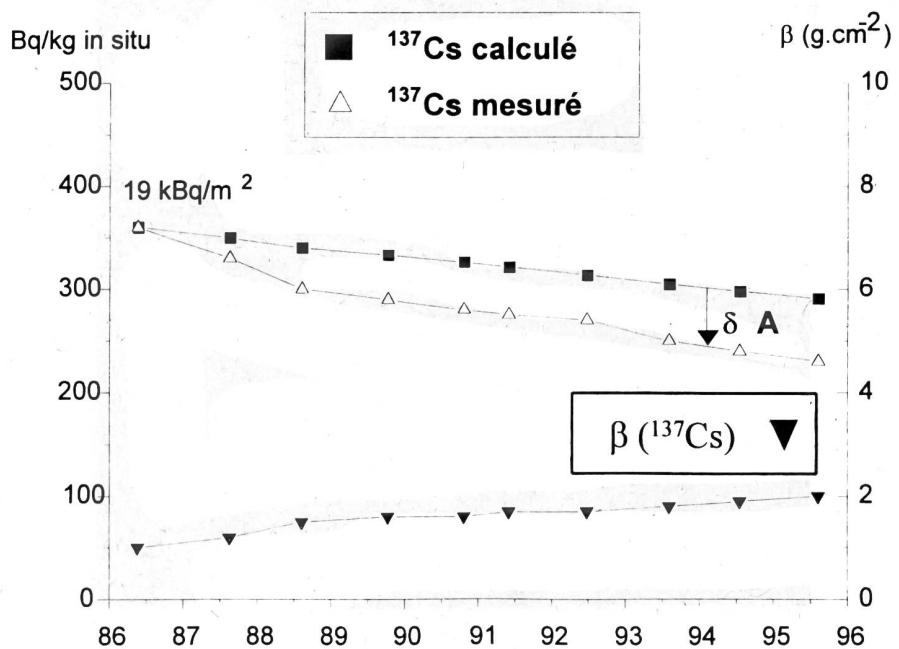


Figure 6: Comportement du  $^{137}\text{Cs}$  dans le sol de Hinterrhein

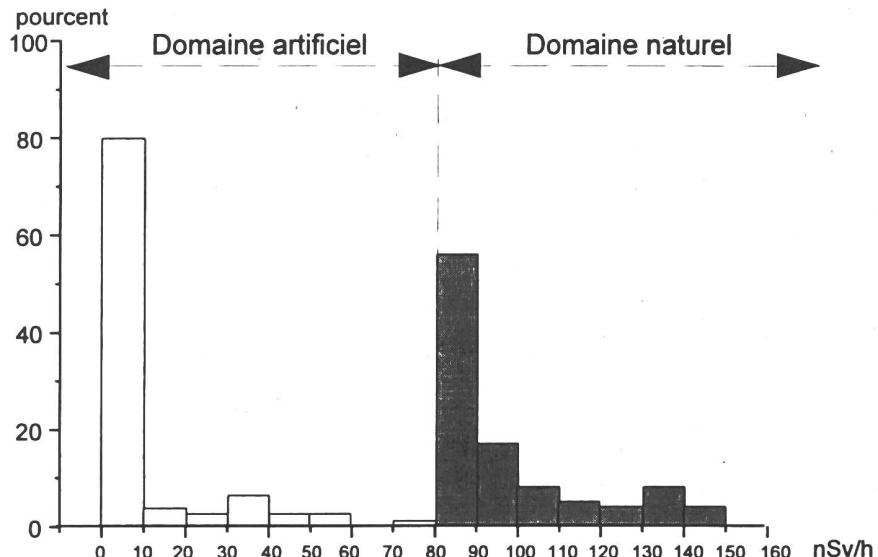


Aux 230 Bq/kg  $^{137}\text{Cs}$  déterminés par spectrométrie gamma in situ en 1995 (tab. 7) correspondent près de 32000 Bq/m<sup>2</sup> (230 x 140) à Caslano respectivement 15000 Bq/m<sup>2</sup> (230 x 67) à Hinterrhein. Cette différence de l'ordre d'un facteur 2 s'explique par l'évolution respective du transfert dans les 2 sites, soit environ 1  $\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$  par an à Caslano et 0.1  $\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$  par an à Hinterrhein. Chaque site peut ainsi être caractérisé du point de vue du comportement des contaminations et de leur devenir.

## Conclusions

Les équipes mobiles du laboratoire AC de Spiez, de la DSN et de la SUER disposent actuellement d'un équipement de mesure et d'évaluation in situ conforme aux dernières recommandations ICRU-53 [1]. L'exploitation de cette technique de mesure en 1995 n'a signalé aucune augmentation des niveaux artificiels de rayonnements gamma sur le territoire suisse. Sur la base des sites examinés en 1995, l'impact radiologique sur la population, traduit au niveau de l'exposition externe annuelle 1 m au-dessus du sol (avec  $1 \mu\text{R}/\text{h} = 10 \text{nSv}/\text{h}$ ), indique, pour un séjour permanent, des doses comprises entre 0.7 et 1.7 mSv, dont la majeure partie incombe à l'irradiation naturelle (fig. 7). La contribution artificielle s'échelonne de 2 à 80 nSv/h tandis que la part naturelle varie d'environ 80 à 160 nSv/h. Les minimas correspondent aux sites du Plateau suisse, du Centre et du NE de la Suisse et les maximas à ceux du Tessin et de certaines vallées des Grisons et du Valais.

Figure 7: Distribution des débits de dose naturels et artificiels sur l'ensemble des sites examinés (1995)



L'étude du transfert du  $^{137}\text{Cs}$  dans les sols montre que la progression du paramètre de relaxation massique par unité de surface  $\beta(\text{g} \cdot \text{cm}^{-2})$  s'échelonne de  $0.1 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2}$  par an pour les sols où la migration est faible (forêt, humus) à plusieurs  $\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$  par an pour ceux au transfert favorable (sols cultivés, sols bruns sableux). L'interprétation des mesures in situ sur des nouveaux sites requiert néanmoins un examen approfondi des profils de sol, afin de déterminer l'inventaire ( $\text{Bq}/\text{m}^2$ ) artificiel de long terme ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ) et de distinguer son origine (essais nucléaires-Tchernobyl). Dans ce contexte l'historique et la typologie des sols constituent une information appréciable. La dernière comparaison internationale, à laquelle a pris part la SUER en République tchèque, montre une concordance moyenne des activités naturelles et artificielles de notre laboratoire par rapport à la moyenne des résultats des autres laboratoires pris en compte de  $1.02 \pm 0.04$ . Au niveau national, les intercomparaisons entre les 3 laboratoires suisses susmentionnés confirment une bonne cohérence des résultats et un bon degré opérationnel pour le cas d'intervention.

Enfin nous aimerais remercier toutes les personnes qui ont facilité la réalisation de nos mesures ainsi que Mme M. Gobet pour la mise en page de ce compte-rendu.

- [1] ICRU-Report 53 "Gamma-Ray Spectrometry in the Environment" Dec. 94, ISBN 0-913394-52-1.
- [2] Ch. Murith and A. Gurtner "Le sol, un témoin de notre patrimoine radioactif". Séminaire concernant l'impact sur l'environnement des radioéléments de longue période, Lucerne, 29.6.1995

## 3. 4. Die automatische Überwachung der Ortsdosen mit NADAM

**A. Leonardi, D. Rauber**    NAZ, Nationale Alarmzentrale, Eidg. Departement des Innern  
Postfach, 8044 ZÜRICH

### 3.4.1. Übersicht

*Das Netz für die automatische Ortsdosismessung und -alarmierung NADAM dient der grossräumigen und permanenten Überwachung der externen Strahlung. Auch 1995 konnte eine praktisch lückenlose Überwachung gewährleistet werden. In zwei Fällen wurden erhöhte Werte festgestellt, die durch Röntgenuntersuchungen verursacht wurden. Sonst wurden in der Berichtsperiode bis auf einzelnen technischen Störungen bei der Messung oder der Verbindung keine besonderen Vorfälle registriert.*

*1995 wurde das routinemässige Qualitätssicherungsprogramm für die NADAM-Sonden begonnen. Dabei wurde zunächst an ausgewählten Sonden eine eingehende Prüfung der physikalischen Eigenschaften durchgeführt und anschliessend die routinemässige Kontrolle der im Einsatz stehenden Sonden gestartet.*

*Um den direkten Vergleich der NADAM-Werte mit denen anderer Messnetze zu vereinfachen, wurde ab 1. 1. 1996 bei allen publizierten Daten eine Korrektur für den Eigennulleffekt der NADAM-Sonden eingeführt.*

### 3.4.2. Spezielle Ereignisse

Auch 1995 konnte das NADAM-Netz eine praktisch lückenlose grossräumige Überwachung gewährleisten. In der Berichtsperiode wurden keine Werte festgestellt, die auf eine erhöhte Strahlenbelastung der Bevölkerung schliessen liessen. Einige besondere Vorkomnisse, die zu Störungen oder zu einer Zunahme der Messwerte führten, werden im Folgenden kurz geschildert.

#### *Sonde Beznau, 24. und 25. 4. 1995: Erhöhte Werte bei Röntgenuntersuchungen*

Während des Stillstands des KKW Beznau 2 wurden in der Maschinenhalle Röntgenuntersuchungen durchgeführt. Diese Arbeiten, die vom Werk jeweils im voraus angekündigt wurden, hatten eine Erhöhung einzelner Zehnminutenwerte zur Folge.

#### *Sonde Gösgen, 3. 8. 1995: Erhöhte Werte bei Schweißnahtüberprüfungen in einem benachbarten Industriebetrieb*

In der Nähe des KKW Gösgen wurden am 3. August 1995 im Rahmen der Inbetriebnahme der benachbarten Abwassereinigungsanlage Röntgenprüfungen durchgeführt. Dies führte kurzfristig zu erhöhten Zehnminutenwerten sowohl bei der NADAM- als auch bei der nächstgelegenen MADUK-Sonde.

### 3.4.3. Erfahrungswerte und Mittelwerte

Die Erfahrungswerte wurden anhand der Messwerte 1995 überprüft. Eine Darstellung der Jahresmittelwerte sowie der extremen Wochenwerte für die einzelnen Stationen ist in Fig. 1 abgebildet. Auch dieses Jahr ergeben sich für mehrere Stationen leichte Änderungen. Für Sonden, deren Mittelwert 1995 um mehr als 5 nSv/h vom bisherigen Erfahrungsbereich abweicht, wurden entsprechende Anpassungen vorgenommen. Diese sind in der nachfolgenden Tabelle zusammengefasst.

Station	Erfahrungswerte <sup>a)</sup> 1994 [nSv/h]	Erfahrungswerte <sup>a)</sup> 1995 [nSv/h]	Neue Erfahrungs- bereiche <sup>a)</sup> [nSv/h]	Ursache der Änderung des Erfahrungswerts
Chasseral	107	97	80 - 120	unbekannt
Mühleberg	111	106	85 - 125	Sondenwechsel
Piotta	154	147	120 - 170	Tschernobyl
Wädenswil	110	116	85 - 130	unbekannt

<sup>a)</sup> unter Berücksichtigung des Eigennulleffekts

#### 3.4.4. Tschernobyl-Einfluss

In den letzten Jahren konnte in den Regionen, die 1986 stärker vom radioaktiven Niederschlag von Tschernobyl betroffen waren, eine kontinuierliche Abnahme der Ortsdosisleistung beobachtet werden. Sie ist in erster Linie durch den radioaktiven 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 (Fig. 2).

#### 3.4.5. Qualitätssicherung

Im Jahr 1995 wurde das Qualitätssicherungsprogramm für die NADAM-Sonden gestartet. In einer ersten Phase wurden die wesentlichen physikalischen Eigenschaften der NADAM-Sonden (Apparativer Nulleffekt, Kalibrierung, Linearität, Richtungs-, Energie- und Temperaturabhängigkeit) im Sinne einer Typenprüfung untersucht. Ein Teil dieser Messungen war bereits bei der Installation des Netzes durch die SUeR durchgeführt worden.

Das Programm wird nun durch eine jährliche Kontrolle ausgewählter Sonden im Sinne einer Qualitätsprüfung weitergeführt. Dabei werden jährlich an ca. 10 Sonden Eigennulleffekt, Kalibrierung und Linearität untersucht.

Die Typenprüfung hat das aus früheren Messungen bekannte Verhalten in den meisten Punkten (Kalibrierung, Richtungs-, Energie- und Temperaturabhängigkeit) bestätigt und bekräftigt somit, dass die NADAM-Sonden ihre Aufgaben im Rahmen der Überwachung zufriedenstellend erfüllen. Als nicht befriedigend erscheint einzig das nichtlineare Verhalten der Antwort im Bereich hoher Dosen. So wurden bereits innerhalb des von Hersteller spezifizierten Einsatzbereichs grösere Abweichungen gemessen als erwartet. Es wurde deshalb beschlossen, die Linearitätsmessungen im Rahmen der Qualitätsprüfung zu erweitern, und anstelle der ursprünglich vorgesehenen einfachen Kontrolle im höheren Dosisbereich mehrere Messpunkte aufzunehmen.

#### 3.4.6. Publikation

Die im Rahmen der Qualitätsprüfung durchgeführten Messungen bestätigen unter anderem auch die bisherigen Erkenntnisse in Bezug auf den apparativen Eigennulleffekt der NADAM-Sonden, der im Mittel 20 nSv/h beträgt.

Anders als bei den neueren Netzen wurde dieser bisher nicht subtrahiert, weil das NADAM-Netz vor allem als Alarmsmittel konzipiert wurde und in diesem Zusammenhang die ereignisbedingten Änderungen der Messwerte wichtiger sind als deren absolute Grösse. Mit der Inbetriebnahme des MADUK-Netzes in der Nahumgebung der Kernanlagen sowie dem vermehrten Datenaustausch mit ausländischen Netzen drängt sich diese Anpassung auch bei NADAM auf. Um den Vergleich mit anderen Messungen zu vereinfachen, wird deshalb bei den publizierten Daten vom 1. 1. 1996 an ein mittlerer Wert von 20 nSv/h für den Eigennulleffekt subtrahiert.

Dieses Vorgehen wurde auch für den vorliegenden Jahresbericht angewendet, wobei auch in Zukunft bei allen Datenangabe vermerkt werden wird, ob die Zahlenwerte mit oder ohne Korrektion zu verstehen sind.

## Jahresmittelwert 1995 nach Regionen

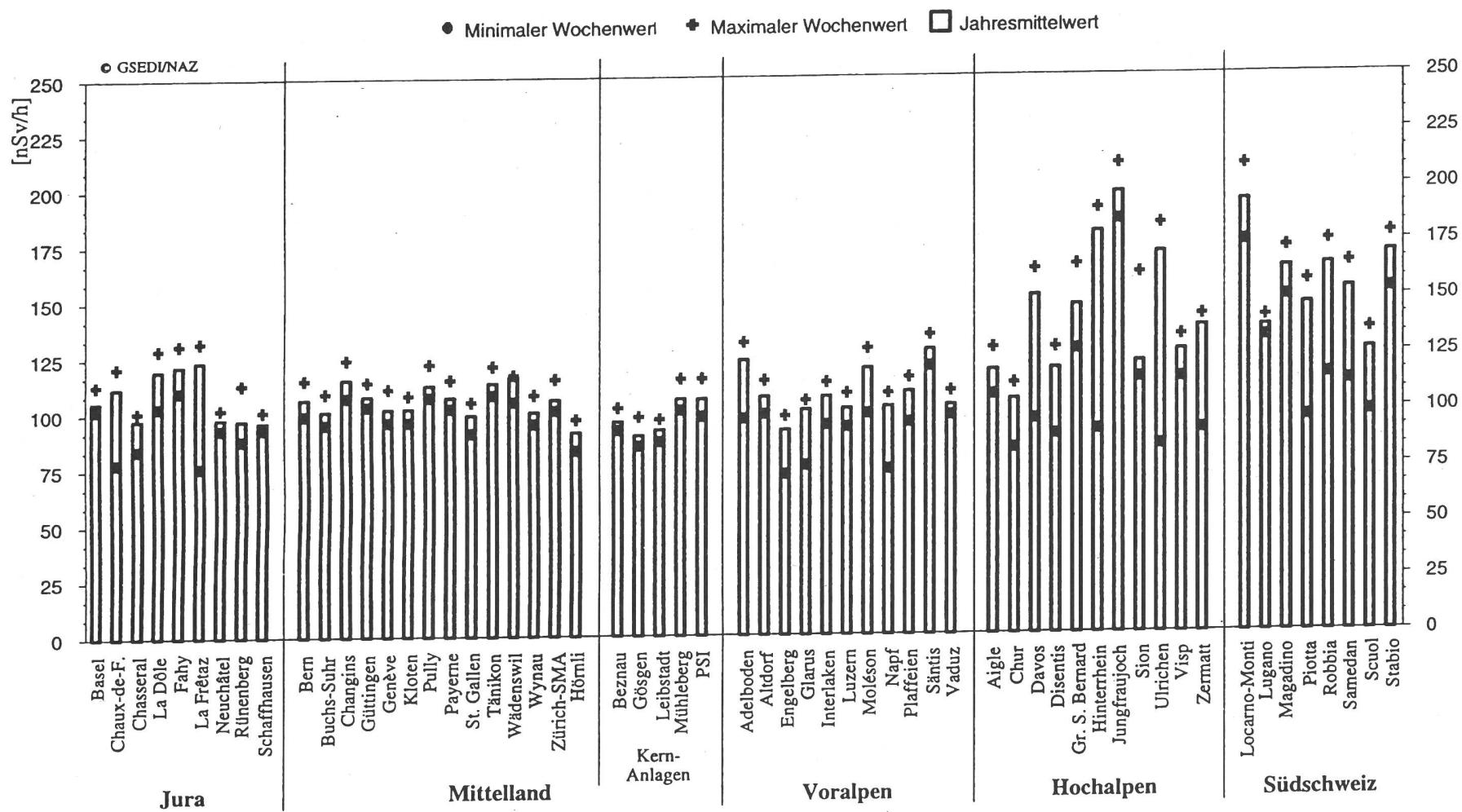
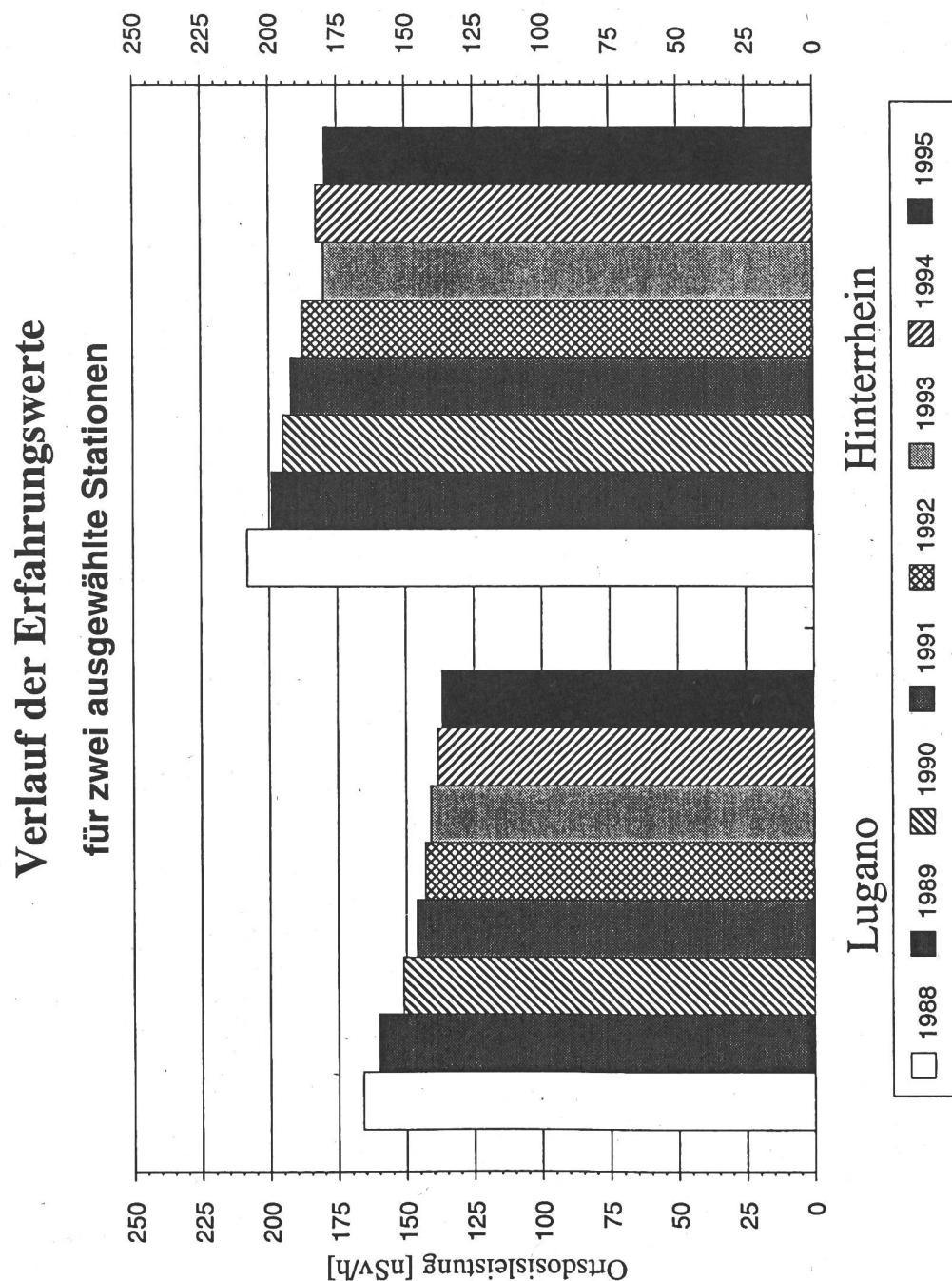


Fig. 1: Jahresmittelwerte der NADAM-Sonden 1995, aufgeteilt nach Regionen (unter Berücksichtigung des Eigennulleffekts). Die Ortsdosiseleistung variiert je nach Standort zwischen 90 - 205 nSv/h. Dies ist vor allem durch Unterschiede in der natürlichen Strahlung bedingt: einerseits hängt sie von Art und Zusammensetzung des Bodens ab, andererseits nimmt die Intensität der kosmischen Strahlung mit der Höhe zu. Der künstliche Beitrag durch den Tschernobylausfall und die Atombombentests ist heute praktisch vernachlässigbar.

**Fig. 2:** Verlauf der Erfahrungswerte der Stationen Lugano und Hinterrhein für die Periode 1988 - 1995 (unter Berücksichtigung des Eigennulleffekts). 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).



### 3.5. Aeroradiometrische Aufnahmen in der Umgebung der schweizerischen Kernanlagen

G. Schwarz<sup>1</sup>, L. Rybach<sup>2</sup>, Chr. Bärlocher<sup>2</sup>

- 1) Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen (HSK), 5232 VILLIGEN-HSK
- 2) Forschungsgruppe Geothermik und Radiometrie, Institut für Geophysik der ETH Hönggerberg, 8093 ZÜRICH

#### 3.5.1. Zusammenfassung

*Die Flüge des Jahres 1995 wurden im Rahmen der Übung ARM95 in der Zeit vom 24. bis 28. April 1995 durchgeführt. Sie dienten vor allem der Ausbildung, als Test für internationale Zusammenarbeit, der Interkalibration der französischen und schweizerischen Messsysteme und dem Training der Quellsuche.*

*Als Notfallübung wurden in der Nähe des PSI drei radioaktive Quellen ausgelegt. Um realistische Flugparameter bestimmen zu können, wurde das Gebiet in verschiedenen Flughöhen und mit unterschiedlichem Fluglinienabstand vermessen. Erstmals wurden die Daten auf einem Laptop direkt im Heliokopter ausgewertet, so dass bei der Landung bereits eine fertige aeroradiometrische Karte vorlag.*

*In einer gemeinsamen Übung mit dem französischen Aeroradiometrieteam HELINUC wurde ein Gebiet an der französischen Grenze im Jura vermessen. Anschliessend wurden auf dem Flugplatz Payerne Steigflüge für die Interkalibration der beiden Messgeräte durchgeführt. Die Zusammenarbeit zwischen den beiden Teams verlief ausgezeichnet. In einem Abkommen hat das französische Aeroradiometrie-Team die Unterstützung der Schweiz bei Notfällen zugesichert.*

*Im Rahmen der aeroradiometrischen Überwachung der Kernanlagen wurden auch die Kernkraftwerke Gösgen und Mühleberg vermessen.*

#### 3.5.2. Einleitung

In der Zeit von 1989 bis 1993 wurde die Umgebung der schweizerischen Kernanlagen jährlich aeroradiometrisch vermessen. Dazu wurde eine spezielle Methodik (Datenakquisition, Datenverarbeitung, Kartierung) entwickelt und angewandt.

Seit 1994 ist die Aeroradiometrie in die Einsatzorganisation Radioaktivität des Bundes integriert. Als mögliche Einsatzfälle stehen Transport- und Industrieunfälle mit radioaktivem Material, KKW-Störfälle und Satellitenabstürze im Vordergrund. Der Einsatz erfolgt unter der Regie der Nationale Alarmzentrale (NAZ). Unterhalt und die Bereitstellung des Messsystems werden weiterhin vom Institut für Geophysik der ETHZ übernommen.

#### 3.5.3. Messgeräte

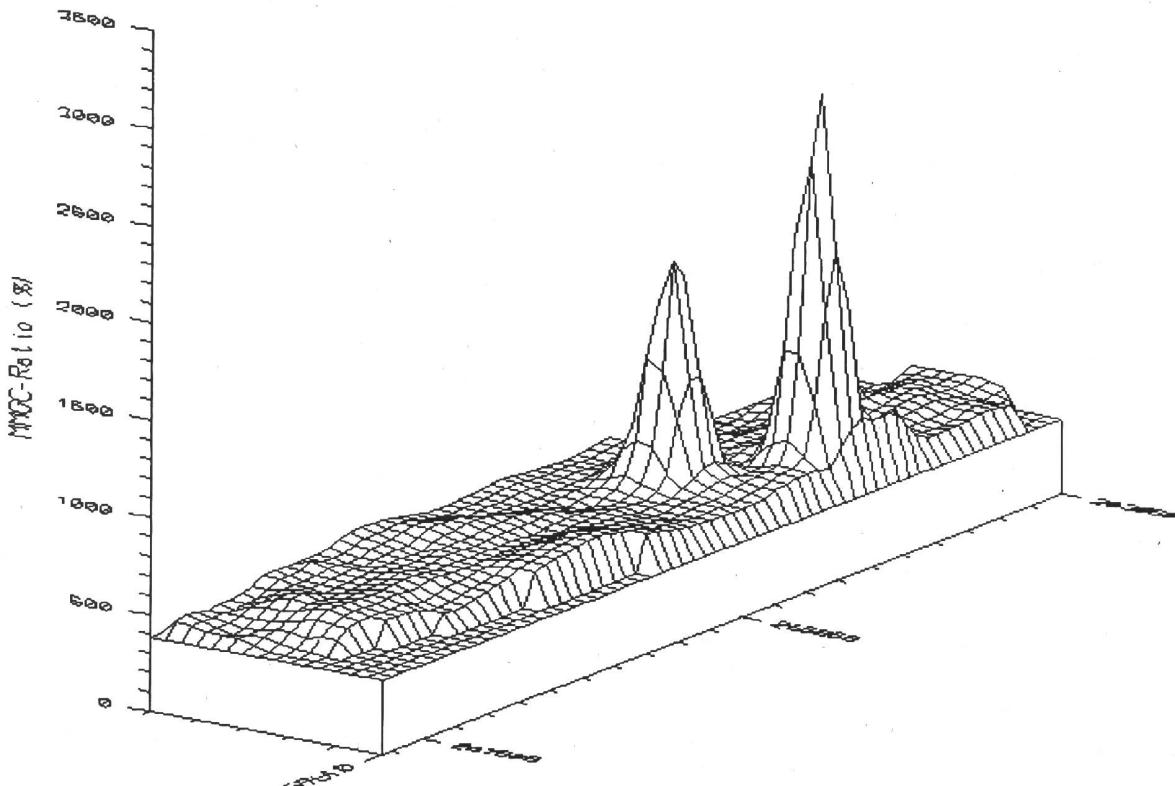
Um die Einsatzbereitschaft der Aeroradiometrie zu erhöhen, wurde 1995 vom Institut für Geophysik der ETHZ im Auftrag der NAZ ein zweites Messsystem gebaut. Es weist weniger Detektorleistung als das bisherige System auf und ist vor allem für Fälle mit starker Geländeversiegelung vorgesehen. Ansonsten enthält es die gleichen Komponenten. Dadurch ist sichergestellt, dass im Notfall immer eine Redundanz vorhanden ist.

### 3.5.4. Notfallübung 1995

Nach einem Flugzeugabsturz (auch Kleinflugzeuge), stellt sich oft die Frage nach einer möglichen radioaktiven Quelle an Bord. Die schnelle Überprüfung eines solchen Verdachtes stellt einen realistischen Einsatzfall für die Aeroradiometrie dar. Für die praktische Erprobung wurde von einem Flugzeugabsturz in unwegsamem Waldgebiet ausgegangen.

Im Unterwald in der Nähe von Würenlingen wurden vom PSI drei radioaktive Quellen ausgelegt. Die stärkste Quelle war eine Ir-192-Quelle mit 7.03 GBq Aktivität. Die beiden anderen Quellen waren Cs-137-Quellen mit Aktivitäten von 2.21 GBq bzw. 370 MBq (siehe Fig. 1).

Das Gebiet wurde zweimal vermessen. Im ersten Messflug wurde mit einem Fluglinienabstand von 250 m und einer Flughöhe von 120 m gearbeitet. Der zweite Flug erfolgte gleich anschliessend (ohne Zwischenlandung) mit einem Fluglinienabstand von 125 m in einer Flughöhe von 60 m.



Figur 1: 3D-Darstellung des MMGC-Ratios (%) des zweiten Suchfluges

Die Karte stellt den Blick nach Südosten dar. Die Maxima der beiden starken Quellen (Ir-192, 7.03 GBq und Cs-137, 2.21 GBq) treten deutlich hervor. Die schwache Quelle (Cs-137, 370 MBq) kann in der schwarzweiss Darstellung nicht identifiziert werden.

In Figur 1 ist der "MMGC-Ratio" des zweiten Suchfluges 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. Die beiden starken Quellen können auf allen Datensätzen identifiziert werden. Die dritte relativ schwache Quelle konnte jedoch nur im zweiten Suchflug eindeutig detektiert werden.

Um somit relativ schwache Quellen mit Aktivitäten von weniger als ein GBq in schwierigem Gelände (z.B. in Wald) sicher detektieren zu können, sollte eine Flughöhe von 60 m und ein Fluglinienabstand von 125 m gewählt werden.

Die Datenauswertung erfolgte während der Flüge auf einem mitgeführten Laptop. Die Auswertung des ersten Fluges konnte noch in der Luft abgeschlossen und über Funk an die Bodenmannschaft übermittelt werden. Die Messdaten des zweiten Fluges waren 5 Minuten nach der Landung ebenfalls aufgearbeitet.

### 3.5.5. Flugaufnahmen 1995

Die Messungen von 1995 erfolgten wie auch die Notfallübung, mit einem Super-Puma der Armee in der Zeit vom 25.4.1995 bis zum 28.4.1995. Neben der Quellsuche wurden drei weitere Messgebiete beflogen. Die Messflüge standen unter der Leitung von Dr. D. Frei (NAZ).

Im Auftrag der HSK wurden die beiden Messgebiete KKG und KKM bereits mehrmals vermessen. Auch 1995 wurden für die Messungen dieselben Flugparameter verwendet. Schliesslich wurde in einer gemeinsamen Übung mit dem französischen Aeroradiometrieteam HELINUC ein Gebiet an der französischen Grenze im Jura vermessen.

Beim KKM, das während der aeroradiometrischen Messungen im Betrieb war, konnte Anhand der N-16-Strahlung sehr gut detektiert werden. Diese Strahlung wird bei Siedewasserreaktoren durch das Aktivierungsprodukt N-16 erzeugt, welches im Betrieb durch die Frischdampfleitung ins Maschinenhaus gelangt. Da das Dach des Maschinenhauses vergleichsweise wenig abgeschirmt ist, kann die hochenergetische Gammastrahlung des N-16 aus der Luft gut detektiert werden.

Das KKG hingegen konnte aeroradiometrisch nicht detektiert werden. Im Messgebiet KKG konnte jedoch die Bestrahlungsquelle der STUDER Draht- und Kabelwerke AG nachgewiesen werden. Die Kunststoffe für die Kabelhüllen werden zur Verfestigung mit einer Co-60-Quelle bestrahlt. Durch die starke Abschirmung wird die Direktstrahlung vollständig absorbiert. Trotzdem ist die Quelle anhand der niedrigenergetischen Streustrahlung schwach erkennbar.

Sonst konnte ausserhalb der umzäunten Areale der Kernanlagen 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 sieben Jahre konstant geblieben.

In der gemeinsamen Übung mit dem französischen Aeroradiometrieteam HELINUC wurde ein Gebiet an der Grenze in der Gegend südlich von Porrentruy vermessen. Jedes Team hat dabei einen Geländestreifen auf seinem Territorium abgedeckt. Auf dem Flugplatz Payerne wurden später Steigflüge für die Interkalibration der Messgeräte durchgeführt. Die Resultate der Messungen sind in den Berichten Schwarz et al. (1995) und Bourgeois et al. (1995) zusammengestellt. Zudem hat das französische Aeroradiometrieteam die Unterstützung der Schweiz bei Notfällen in einem Abkommen zugesichert.

### 3.5.6. Perspektiven

Mit der französisch-schweizerischen Übung wurde ein erster Schritt zur aeroradiometrischen Zusammenarbeit mit den Nachbarstaaten realisiert. Die Schweiz wird sich auch am EU-Projekt "European Coordination of Environmental Airborne Gamma Ray Spectrometry (ECEAGS)" beteiligen. In Rahmen dieses Projektes werden Interkalibration und Methodik der Aeroradiometrie koordiniert. Das Projekt beginnt 1996 und dauert drei Jahre.

### 3.5.7. Literatur

BOURGEOIS, C., BRESSON, J., CHASTEL, R., CHIFFOT, T., GUILLOT, L., KRUAJITCH, JC., 1995: Exercice ARM95 Exercice Franco-Suisse; Résultats des mesures de cartographie  $\gamma$  aérienne et de spectrométrie  $\gamma$  in-situ. Interne Berichte CEA/VALDUC/SPR-EQUIPE HELINUC.

SCHWARZ, G.F, RYBACH, L., CHR. BAERLOCHER: 1995: Aeroradiometrische Messungen im Rahmen der Übung ARM95, Bericht für das Jahr 1995 zuhanden der Fachgruppe Aeroradiometrie (FAR). Interne Berichte, Institut für Geophysik ETHZ, Zürich.

## 3.6. Radioaktivität in aquatischen Systemen

J. Beer, A. Lück und Y. Weidmann

EAWAG, Abteilung Umweltphysik, 8600 DÜBENDORF

### 3.6.1. Zusammenfassung

In aquatischen Systemen wurden nur in einigen wenigen Proben künstliche Radionuklide nachgewiesen. In Flusssedimenten (Aare und Rhein) wurden Spuren (einige Bq/kg) von  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{60}\text{Co}$  festgestellt, von denen die zwei letztgenannten aus Kernanlagen stammen.

In einigen Wasserpflanzen wurden  $^{60}\text{Co}$  und  $^{137}\text{Cs}$  gefunden.

Spuren von  $^{137}\text{Cs}$  wurden in einem Felchen im Bielersee vor Ligerz gemessen.

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 gesunken und liegt mit 1.4 kBq/l unterhalb der maximal zulässigen Aktivität von 12 kBq/l.

Nach dem starken Anstieg der Tritium-Konzentration im Niederschlag von La Chaux-de-Fonds gegen Ende 1992 setzt sich die leicht sinkende Tendenz fort. 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 in der Nähe der Radiumchemie in Teufen zeigt ebenfalls einen Jahresgang mit Maxima kurz nach Jahresbeginn. Der Jahresniederschlag hat sich von 2.6 auf 6 GBq pro m<sup>2</sup> erhöht.

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

### 3.6.2. 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 und Leibstadt sowie das Paul Scherrer Institut. Die Überwachung erfolgt durch halbjährliche Stichproben. Untersucht werden Wasserproben aus dem jeweiligen Fluss ober- und unterhalb der Anlage, Plankton, Wasserpflanzen, Sediment und, falls möglich, Fische sowie Grundwasser aus der Umgebung.

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

Die ARA-Zürich wird kontinuierlich mittels wöchentlicher Sammelproben überwacht. Schliesslich werden im Rhein bei Rekingen/AG, Village-Neuf (unterhalb Basel) und Schmitter (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 (siehe Kap. 3.7.). Die Resultate haben dazu geführt, dass die Probenahme ab 1.1.96 nach einem neuen Plan erfolgt, der gegenüber dem alten zwei wesentliche Änderungen bringt: 1. Die Proben werden vermehrt kontinuierlich an gezielt ausgewählten Stellen gesammelt. 2. Durch die Aufarbeitung grösserer Probenmengen soll dafür gesorgt werden, dass im Normalfall die Konzentrationen der künstlichen Radionuklide bestimmt werden kann. Damit wird es möglich, die beteiligten Transportprozesse zu studieren und Budgets zu erstellen.

### **3.6.3. 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  $\alpha$ -Strahlen untersucht.  $^{90}\text{Sr}$  wird nur im Abwasser von Abfalldeponien gemessen. Alle Angaben von spezifischen Aktivitäten beziehen sich auf Trockengewichte.

### **3.6.4. Zusammenfassung der Ergebnisse**

#### **3.6.4.1. Kernanlagen**

Wasserproben aus den Flüssen Aare und Rhein sowie Grundwasserproben im Bereich von Kernanlagen zeigen keine Tritiumkonzentrationen, die über unserer Nachweisgrenze von 10 Bq/l liegen. Dies wird durch die Vergleichsmessungen des PSI und des Kernkraftwerks Leibstadt bestätigt, die Werte zwischen 3 und 6 Bq/l sowie < 3 Bq/l, resp. < 18.5 Bq/l liefern. Die Messung der künstlichen  $\gamma$ -aktiven Radionuklide im Wasser ergab nur Werte unterhalb der Nachweisgrenze, die in den meisten Fällen deutlich unter 1 Bq/l liegt.

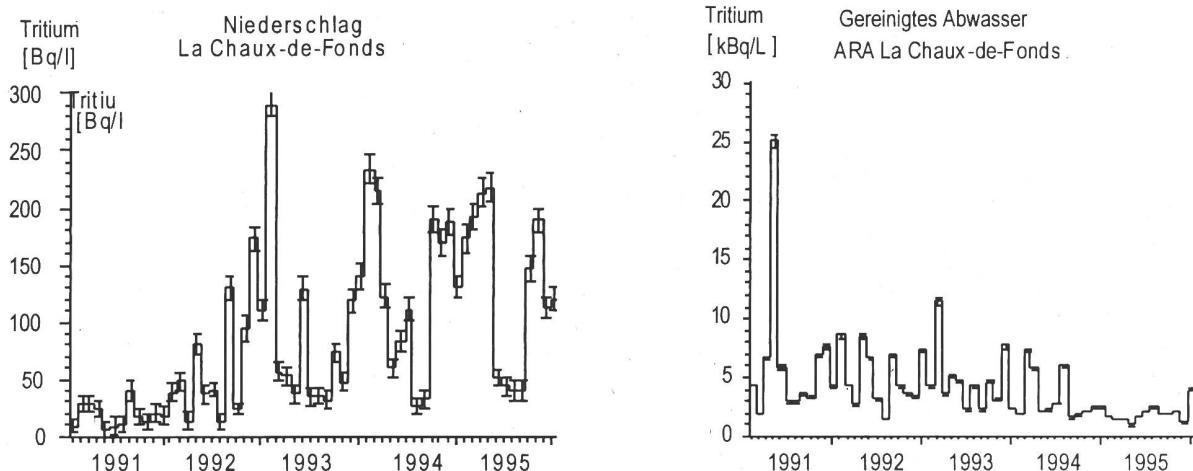
In den Sedimentproben aus der Umgebung von Kernanlagen dagegen wurden weiterhin künstliche Radionuklide gefunden. Es handelt sich dabei um  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{60}\text{Co}$ . Die Konzentrationen sind jedoch im allgemeinen tief und durchwegs kleiner als 20 Bq/kg.

Wasserpflanzen zeigen relativ häufig  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{60}\text{Co}$ . Die Konzentrationen sind vergleichbar mit denjenigen der Sedimente und überschreiten ebenfalls nie 20 Bq/kg. Auffällig sind die relativ hohen Konzentrationen von  $^7\text{Be}$ . Von den untersuchten Fischen aus Aare, Rhein und Bielersee zeigt nur ein Felchen aus dem Bielersee Spuren von  $^{137}\text{Cs}$ .

### 3.6.4.2. Isotopen-verarbeitende Betriebe

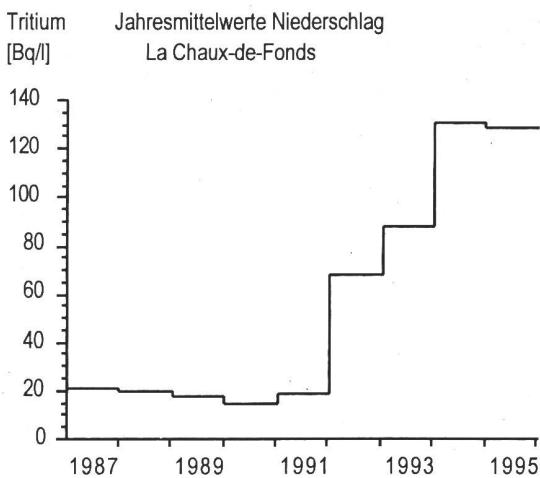
#### La Chaux-de-Fonds:

In Fig. 1 ist die Tritiumaktivität im Niederschlag (links) und im gereinigten Abwasser der ARA (rechts) für die Jahre 1991 bis 1995 dargestellt. Das deutliche saisonale Signal mit Maxima im Winter und Minima im Sommer setzt sich auch 1995 fort. In der längerfristigen Entwicklung interessant ist der markante Anstieg der Tritiumaktivität, der 1992 eingesetzt hat (Fig. 2).



**Fig. 1 :** Tritium im Niederschlag und in der ARA von La Chaux-de-Fonds

Im Gegensatz zum Niederschlag zeigt die Tritiumaktivität im Abwasser der ARA 1995 nur relativ geringe Schwankungen. Die Gesamtabgabe beträgt 15 TBq Tritium gegenüber 25 TBq im Jahr 1994. Insgesamt wurden laut SUVA 334 TBq Tritium in La Chaux-de-Fonds verarbeitet.



**Fig. 2**

Tritium-Jahresmittel in der ARA von La Chaux-de-Fonds

RC Tritec AG, Teufen / AR

Wie Fig. 3 zeigt, nahmen die Tritiumkonzentrationen im Regenwasser in der Nähe des Kamins der Radiumchemie in Teufen 1995 etwas zu. Insgesamt wurden 1995 6 GBq/m<sup>2</sup> deponiert gegenüber 2.6 im Jahr 1994

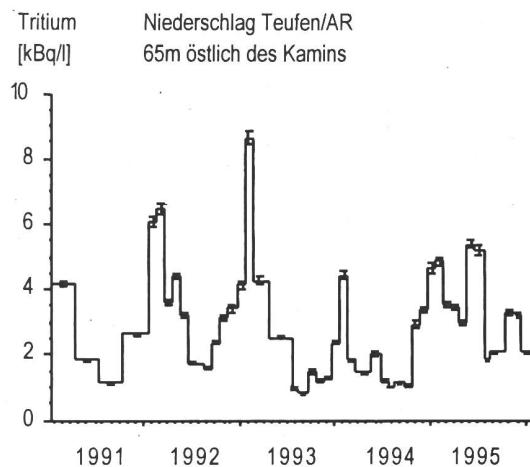


Fig. 3

Tritium im Niederschlag in der Nähe der RC Tritec AG, Teufen / AG

### 3.6.4.3. Deponien

Im Sickerwasser der ehemaligen Abfalldeponie Teufen sowie der Deponie von Stein/AR wurden  $\alpha$ -Strahler ( $<2$  Bq/l), Tritium (bis zu 5.3 kBq/l) sowie  $^{90}\text{Sr}$  (1 Bq/l) gemessen.  $\gamma$ -aktive Radionuklide konnten keine festgestellt werden.

### 3.6.4.4. Kläranlagen

Messungen am gereinigten Abwasser der ARA Zürich zeigen keine Tritiumwerte oberhalb der Nachweisgrenze von 10 Bq/l. Ebenfalls liegen keine künstlichen Radionuklide über den entsprechenden Nachweisgrenzen. Dies gilt insbesondere auch für das in Spitälern verwendete  $^{131}\text{I}$  (Nachweisgrenze: 0.2 Bq/l).

### 3.6.4.5. Oberflächengewässer

Im Rhein wurden an den Stationen Rekingen, Village Neuf und Diepoldsau abflussgewichtete Monatsproben erhoben. Figur 3 zeigt den Verlauf der Gesamt- $\alpha$ -Aktivität von Rekingen und Village Neuf über die letzten 5 Jahre. Beide Stationen zeigen im Gegensatz zum Vorjahr keine ausgeprägte Saisonalität mehr. Künstliche  $\gamma$ -aktive Radionuklide konnten keine festgestellt werden.

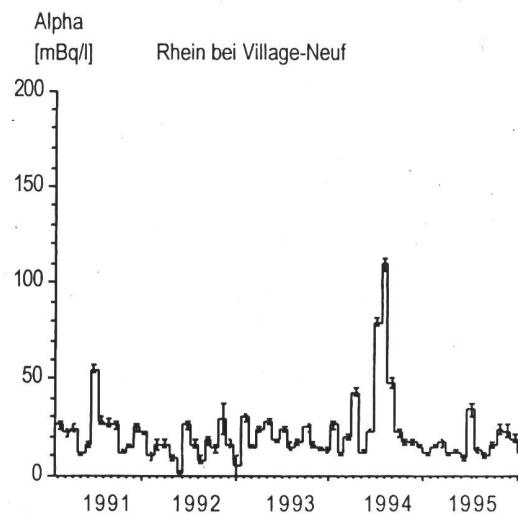
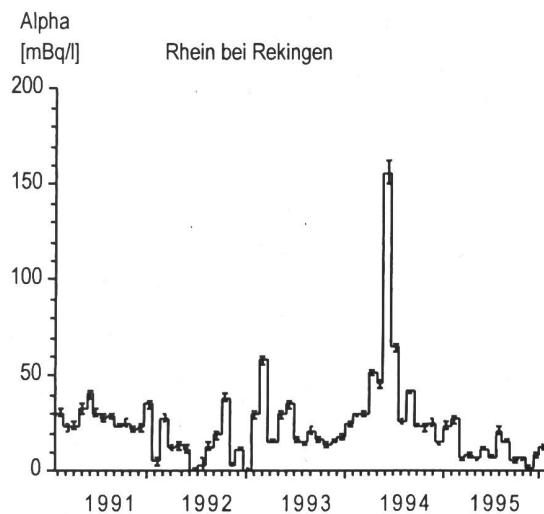


Fig. 4: Alpha-Aktivitäten im Rhein

## 3.7. Anpassung der Beprobungsstrategie an neue Kenntnisse bei der Radioaktivitätsüberwachung im aquatischen Milieu

Achim Albrecht, Yvo Weidmann, Alfred Lück, Daniel Kobler, Jürg Beer

EAWAG, Abteilung Umweltphysik, 8600 DÜBENDORF

### Zusammenfassung

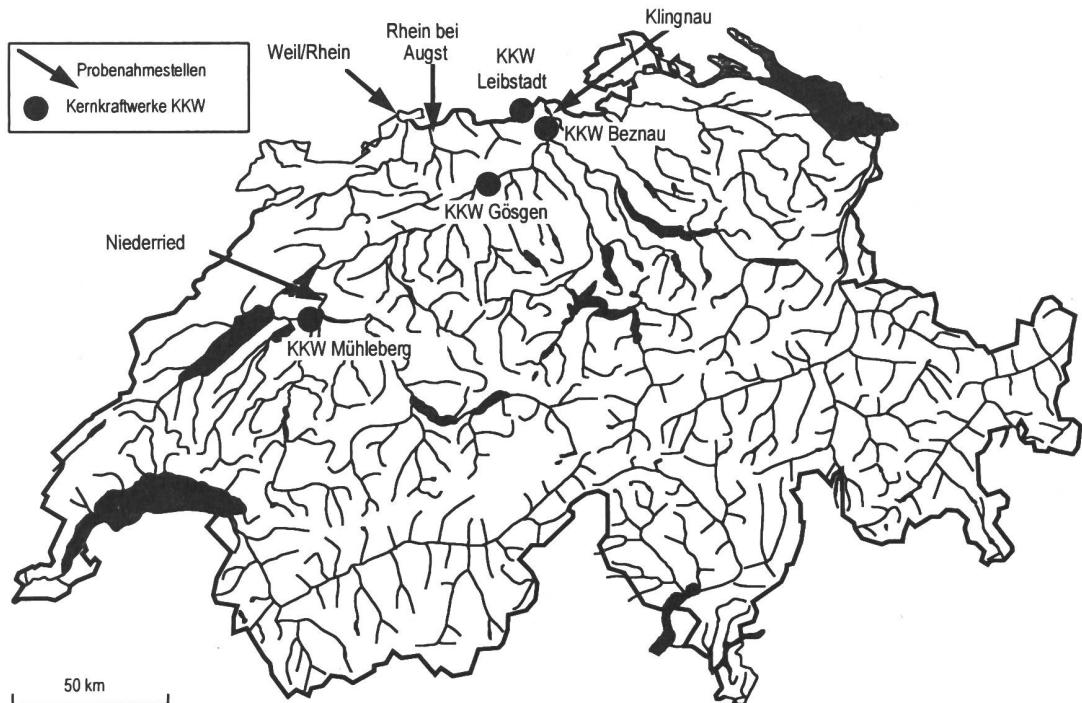
In dieser Arbeit wird das neue Konzept zur Kontrollbeprobung des aquatischen Milieu's durch die EAWAG vorgestellt. Dabei wird das Hauptaugenmerk auf die detaillierte Beschreibung der Methoden gelegt, die es erlauben sollen, auch die im Normalfall vorhandenen geringen Nuklidkonzentrationen zu messen und die beteiligten Transportprozesse zu studieren. Zusätzlich werden die Ergebnisse der Testprobenahmen von 1994/95 zusammengestellt und z.T. diskutiert. Es zeigt sich, dass die zur Kontrolle gesammelten Daten einen guten Einblick in die Verteilung anthropogener Radioaktivität innerhalb der Schweizer Gewässer liefern und geeignet scheinen, um spezielle Fragen des Radionuklidtransports in aquatischen Systemen genauer zu untersuchen. Dies gilt sowohl für den gelösten, wie auch den partikular gebundenen, sedimentierbaren Anteil, welche mittels Monatsmischproben, respektive Sedimentfallen erfasst werden.

### 3.7.1 Einführung

Die EAWAG hat seit der Gründung der Kommission zur Überwachung der Radioaktivität in der Schweiz im Jahre 1956 im Bereich des aquatischen Milieus Kontrollmessungen durchgeführt. Im September 1992 wurde zusätzlich gemeinsam mit der HSK eine Studie begonnen, welche sich mit dem Verhalten der mit dem Abwasser an Aare und Rhein abgegebenen metallischen Radionuklide beschäftigt. Diese Studie (Albrecht; 1995a, b) zeigt in Übereinstimmung mit rezenten Publikationen (Mundschchen; 1996a, b, c) dass sowohl der partikular gebundene wie auch der gelöste Anteil von Bedeutung sind. Der Prozess der Adsorption ist besonders für Übergangsmetalle (Kobalt, Zink) sehr langsam. So bleiben aufgrund der Studie der EAWAG nach 1-tägiger Kontaktzeit zwischen Partikeln und gelöst eingespeistem  $^{60}\text{Co}$  noch etwa 80% in Lösung. Demzufolge ist es für Kontrollmessungen auf dem Gebiet der Schweiz von Bedeutung, sowohl den partikulären, als auch den gelösten Radionuklidanteil zu erfassen.

Zur Kontrolle der Radionuklidemissionen der Kernkraftwerke an die Vorfluter ist es ebenfalls wünschenswert, den Gesamtabfluss von Radionukliden zu ermitteln, um zusätzlich Radionuklidbudgetierungen und -sedimentationsabschätzungen durchzuführen. Letztlich ist es sinnvoll, dass die bei Kontrollmessungen gesammelten Daten wissenschaftlich auswertbar sind und damit das Wissen auf dem Gebiet des Radionuklidtransports, der Adsorption und der Sedimentation erweitern.

Diese Arbeit gliedert sich in 2 Hauptabschnitte. Im Ersten werden die Methoden beschrieben, die die Erfassung und Messung sowohl des gelösten wie auch des partikular gebundenen Radionuklidanteils erlauben. Im Zweiten werden einige der in den Jahren 1994/95 gesammelten Ergebnisse zusammengefasst und diskutiert. Die Lokalitäten der verschiedenen Probenahmestellen können aus den Übersichtskarten der Abbildung 1 ersehen werden. Die Probenahmemethoden gliedern sich in (1) Sedimentfallen, (2) automatische Mischwasserprobenahme und (3) detaillierte Stichproben.



**Abbildung 1:** Übersichtskarte der Schweiz mit Lokalisierung der Schweizer Kernkraftwerke und der in diesem Bericht erwähnten Orte.

### 3.7.2. Methodenbeschreibung

#### 3.7.2.1. Sedimentfallen:

Bei dem an der EAWAG entworfenen und hergestellten System handelt sich um 20 Polyäthylenflaschen von je 500 ml Volumen, mit einem Halsdurchmesser von 4 cm und einem Bodendurchmesser von 7 cm. Diese sind auf einer 36 mal 44 cm grossen Kunststoffplatte befestigt. Die Flaschen können leicht aus dieser Halterung entnommen werden, was einen problemlosen Probenwechsel ermöglicht. Die Sedimentfalle hat ein Gesamtgewicht von ~12 kg, was ihre Stabilität selbst bei grosser Strömung gewährleistet. An die Sedimentfalle können Aluminiumflügel angebracht werden, die es erlauben, die Positionierung im Fluss zu kontrollieren.

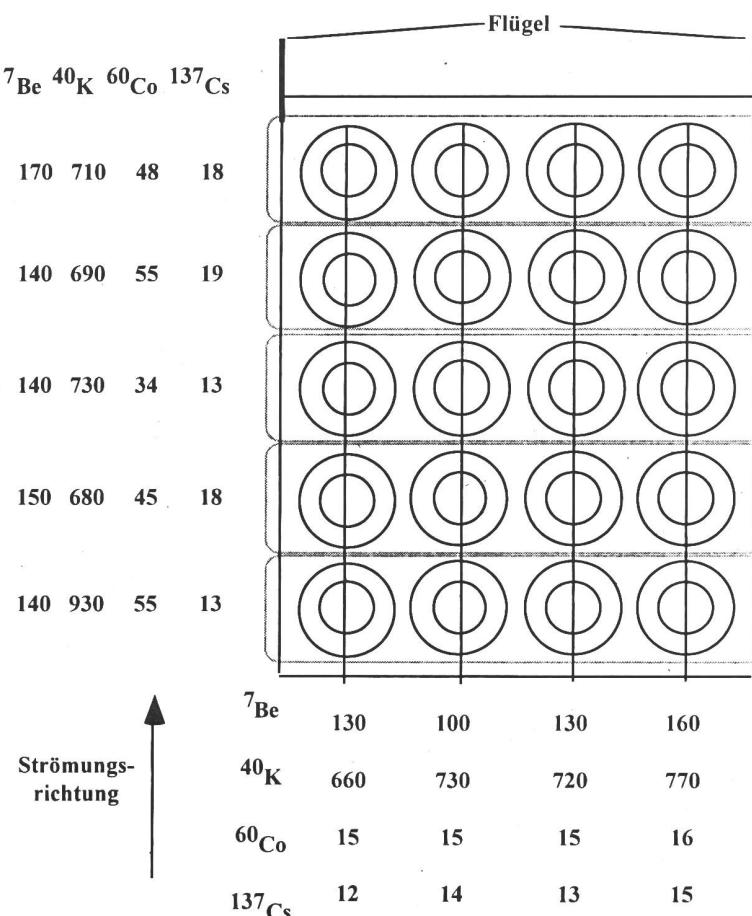
Die von uns benutzten Sedimentfallen basieren auf dem Prinzip der Maximalbeprobung. Dies bedeutet, dass suspendierte Partikel, welche in den Flaschen zur Ablagerung gelangen, selbst bei starker Zunahme der Turbulenz (z.B. Hochwassersituation) nur minimal resuspendiert werden. Bisher wurden Fallen unterhalb der Kernkraftwerke Mühleberg (Stausee Niederried), Gösgen und Beznau (Stausee Klingnau) und Leibstadt (Flusskraftwerk bei Augst) getestet (Abb. 1). Die Sedimentfallen werden an allen Lokalitäten für jeweils einen Monat in Sammelposition gebracht. Nach Bergung der Fallen wird zuerst die Sedimentmächtigkeit bestimmt, aus der die jährliche Sedimentationsrate berechnet wird (Tabelle 2).

Je nach Sedimentmasse wird aus mehreren Flaschen für Folgeanalysen eine Mischproben hergestellt. Zur Kontrolle der Homogenität der in den 20 verschiedenen Flaschen gesammelten Sedimentproben wurden Flaschen parallel und senkrecht zur Strömung als Sammelproben zusammengefasst und die Radionuklidaktivitäten individuell bestimmt. Abbildung 2 stellt skizzenhaft eine Sedimentfalle dar und verdeutlicht die Strategie der Mischprobenbildung, wie auch die Ergebnisse der  $\gamma$ -Testmessungen. Die Sedimente der Sammelperiode vom 6.12. bis 22.12.94 wurden als 5 Mischproben zusammengefasst, wobei die erste Probe aus den 4 Flaschen der 1.

Reihe besteht, die zweite aus den Proben der 2. Reihe, usw. (strömungssenkrechte Mischprobe). Strömungsparallele Proben wurden aus der Sammelprobe vom 22.12.94 bis 23.1.95 gemischt. Unabhängig von der Art der Mischproben liegen die Aktivitäten für  $^{60}\text{Co}$ , wie auch für  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^7\text{Be}$  und  $^{40}\text{K}$  innerhalb der Fehlergrenzen im vergleichbaren Rahmen. So variiert die  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität in strömungsparallelen Mischproben zwischen 13 und 19 Bq/kg, in strömungssenkrechte Mischproben zwischen 12 und 15 Bq/kg. Variationen für die natürlichen Radioisotope  $^7\text{Be}$  und  $^{40}\text{K}$  liegen zwischen 140 und 170 Bq/kg, respektive 690-930 Bq/kg bei strömungssenkrechter Beprobung und bei 100-160, respektive 660-770 Bq/kg bei strömungsparalleler Beprobung.

**Abbildung 2:**

Skizze einer aus 20 Polyäthylenflaschen bestehenden Sedimentfalle. Zur Evaluierung der Homogenitäten in Abhängigkeit zur Positionierung relativ zur Strömung wurden Mischproben erstellt und individuell gemessen. Die dargestellten Werte sind jeweils in Bq/kg, wobei die vertikal angeordneten Daten sich auf die Mischprobe vom 6.12.-22.12.94 und die horizontalen auf die Probe vom 22.12.94-23.1.95 beziehen.



Die Sedimentationsbedingungen im Randbereich scheinen daher von denjenigen im Zentralbereich nur geringfügig abzuweichen. Das Sediment jeder individuellen Flasche erlaubt demzufolge die Abschätzung der in dieser Flusszone abgelagerten Radioaktivität.

Nach Abdekantierung des überstehenden Wassers werden die Proben gefriergetrocknet und Aktivitäten mittels  $\gamma$ -Spektrometrie bestimmt und massenbezogen angegeben.

### 3.7.2.2. Mischwasserproben:

**Untere REWAG:** Die erste Lokalität zur Sammlung von Mischwasserproben befindet sich etwa 1 km unterhalb des Kernkraftwerks Mühleberg (Abb. 1). Hier wird von Seiten des KKM mittels automatischer Probenahme (Tropfsystem mit feststehender Scheibe) wöchentlich eine Aarewassersammelprobe entnommen. Das Sammeltolumen ist vom Abfluss abhängig und variiert zwischen 10 und 30 L. Das vom KKW für Kontrollzwecke nicht benutzte Wasser (etwa 90%) wird als 2-Monatssammelprobe zusammengefasst.

**Weil am Rhein:** Die vom Bundesland Baden-Württemberg betriebene Probenahmestation Weil am Rhein dient der Internationalen Kommission zum Schutz des Rheins und dem Schweizerischen Nationalen Daueruntersuchungsprogramm Fliessgewässer (NADUF). Aus einigen Dezimeter Höhe oberhalb der Flussohle werden entlang eines Querprofils an vier Stellen kontinuierlich Wasser entnommen. Von diesem Wasserstrom wird mit Hilfe eines Magnetventils regelmässig ein Anteil entnommen. Die Probenahme ist nicht abflussproportional. Das monatliche Gesamtvolume beläuft sich auf etwa 200 L.

Die Wasserproben von beiden Lokalitäten werden vor Ort mit einer Trägerlösung versetzt, die aus jeweils 40 ml konzentrierter Salpetersäure und bekannten Mengen von Fe-, Co-, Zn-, Be- und Pb-Salzen (ab 1996 auch Cs) besteht. Die somit erreichte recht hohe Salpetersäurekonzentration und der damit verbundene niedrige pH-Wert (<1) soll eine intensive Komplexierung der Übergangsmetalle verhindern. Die Proben werden nach mindestens einem Tag Equilibrierung durch Hinzugabe von Ammoniaklösung neutralisiert, wobei es zur Ausfällung von Eisenhydroxyd kommt, welches als Träger der metallischen Radionuklide dient. Das Hydroxyd kann mittels Dichtetrennung oder Filtration von der flüssigen Phase getrennt, dann lyophilisiert und  $\gamma$ -spektrometrisch gemessen werden. Die Effizienz der Fällung wird durch Messung der stabilen Metalle nach Wiederauflösung der Hydroxyde in 6M HCl mittels ICP-AES und Vergleich mit der als Träger hinzugefügten Metallmasse bestimmt werden. Die Aktivitäten werden in Bq/m<sup>3</sup> angegeben, was unter Heranziehung der Abflussraten eine Abschätzung der Radionuklidflüsse ermöglicht.

### 3.7.2.3. Detaillierte Stichproben:

Während dieser Stichproben soll sowohl die Gesamtaktivität der im Fluss gesammelten Radioaktivität bestimmt werden, sowie eine Aufteilung der Radioaktivität auf die im Fluss befindlichen Phasen. In Tabelle 1 sind die unterschiedlichen Phasen, sowie die angewandte Trennmethode aufgelistet.

**Tabelle 1: Zusammenfassung der während Stichproben durchgeföhrten Detailuntersuchungen**

Phase	Methode	Information
organische Partikel	Algennetz	40 $\mu\text{m}$ Trengrenze
gesamte suspendierte Partikel	Durchflusszentrifuge	0.5 $\mu\text{m}$ Trengrenze
Kolloide	Tangentialfiltration	0.5 $\mu\text{m}$ bis 5000 Dalton
kationisch gelöst	Säulentrennung	Kationentauscher
anionisch gelöst	Säulentrennung	Anionentauscher

**Organische Partikel:** Organische Partikel weisen eine Dichte von etwa 1.05 g/cm<sup>3</sup> auf. Bei den in Aare und Rhein gewöhnlich herrschenden Abflussgeschwindigkeiten (0.5 - 1 m/s) bleiben im Korngrößenbereich > 40  $\mu\text{m}$  vorwiegend organische Partikel in Suspension. Mineralische Partikel mit Dichten > 2 g/cm<sup>3</sup> sedimentieren unter diesen Bedingungen (Miller et al., 1977). Die wirkliche Trengrenze des Algennetzes kann mittels Einzelpartikelzählung, basierend auf Lasersensorik (Particle Measuring System Inc., Boulder CO) ermittelt werden. Diese Methode erlaubt es, die Anzahl wie auch die Grösse der in Suspension befindlichen Partikel zu bestim-

men. Abbildung 3 stellt die Messungen im Rohwasser und im nassen Partikelkonzentrat dar. Im Bereich kleiner Korngrößen sind die Konzentrationen etwa gleich, es kommt nicht zu einer Aufkonzentration. Diese findet ab etwa 20 µm statt und erreicht ihren Maximalwert bei 40 µm. Die Filtration mittels Algennetz erlaubt damit eine effiziente Aufkonzentration von Partikeln > 30 µm, was einer Aufkonzentration organischer Partikel entspricht.

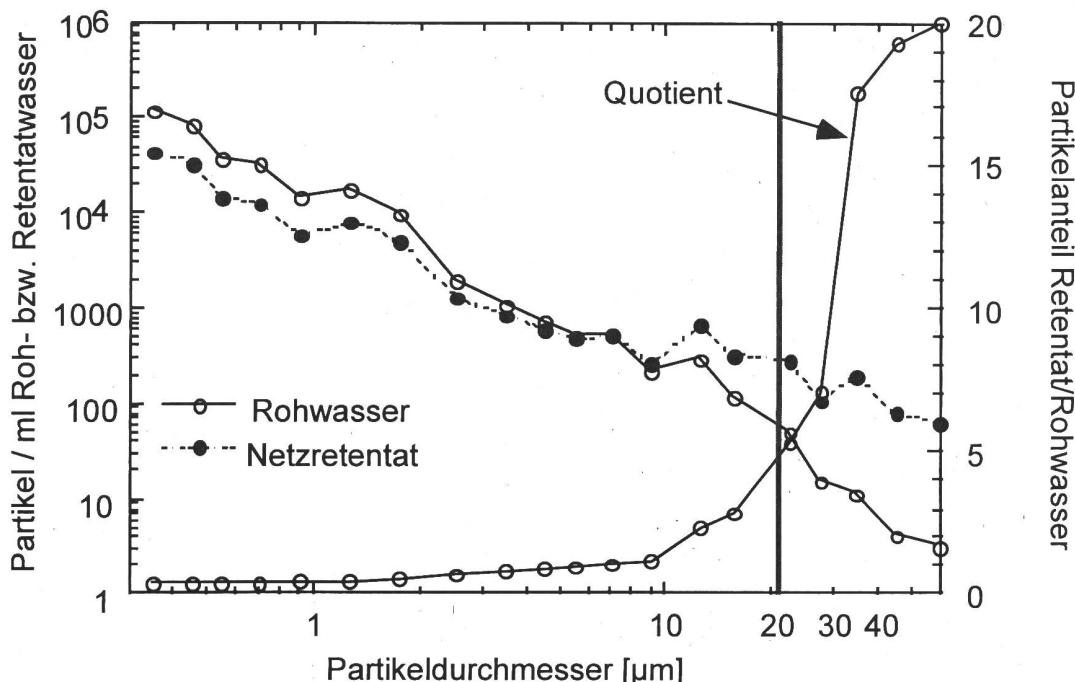
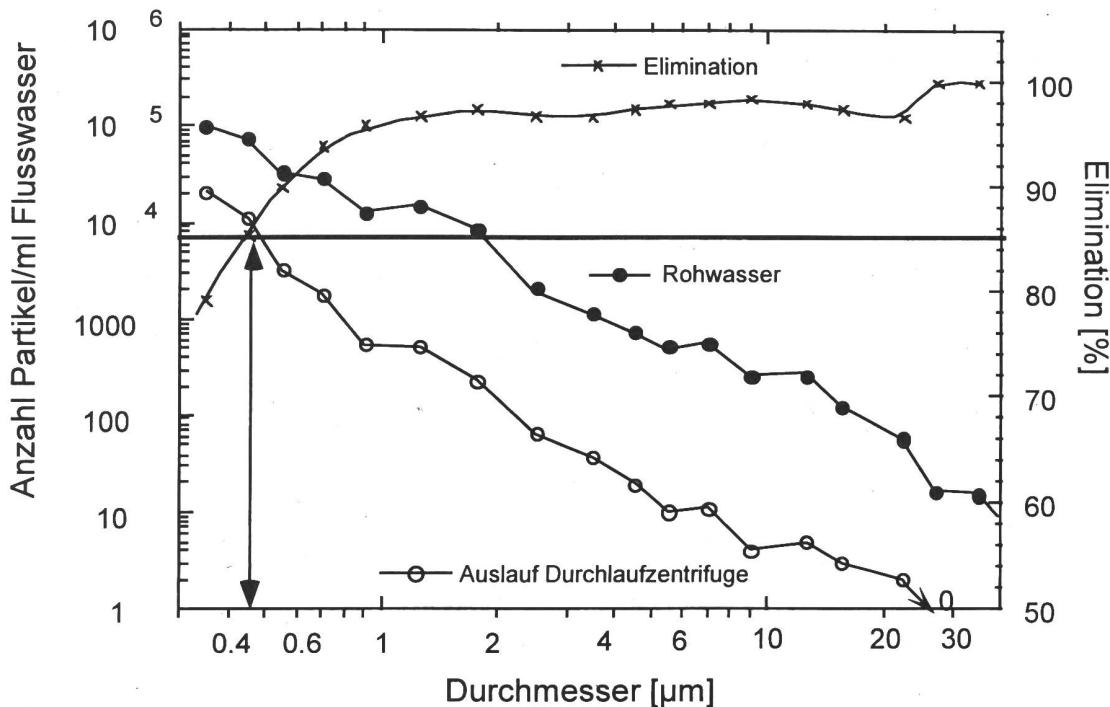


Abbildung 3: Ermittlung der Trengrenze des benutzten Algennetzes. Neben den Partikelkonzentrationen im Rohwasser und im Retentat ist der Quotient beider in % dargestellt. Erhöhte Quotienten zeigen den Beginn der Partikelabtrennung an, der bei etwa 20 µm einsetzt.

Das Partikelkonzentrat wird nach mehrstündiger Positionierung des Netzes in der Strömung ausgespült und gefriergetrocknet. Die Gesamtmasse wird direkt bestimmt. Das filtrierte Gesamtvolumen berechnet sich durch Multiplikation der im Fluss direkt mittels Induktionsströmungsmessung bestimmten Fliessgeschwindigkeit (Flo-Mate 2000, Marsh-McBirney) mit der Fläche der Netzöffnung (17.5 cm). Dies gestattet die Bestimmung von Partikelkonzentrationen und die Repräsentation der partikulären Radioaktivität sowohl volumen- als auch massenbezogen.

**Gesamte suspendierte Partikel:** Zur Abtrennung suspendierter Partikel wird eine Durchflusszentrifuge ('LE' der Firma CEPA, Lahn, Schwarzwald) benutzt, die es erlaubt, Durchflussrate und Drehzahl zu variieren. Bei Drehzahlen um 30,000 rpm (Umdrehungen pro Minute) und Durchflussraten zwischen 0.5 und 1 l/min liegt die Abtrenngrenze bei etwa 0.4-0.5 µm. Dies kann erneut mittels Einzelpartikelzählung getestet werden. Abbildung 4 zeigt den Unterschied zwischen dem aus der Aare bei Wynau (Abb. 1) am 29.11.95 entnommenen Rohwasser und dem zentrifugierten Wasser. Auf der Ordinate ist die Anzahl der Partikel pro ml, auf der Abszisse die Korngrösse aufgetragen. Die Partikelelimination durch die Zentrifugierung ist deutlich erkennbar und zusätzlich in % auf der rechten Ordinate ablesbar. Die Trengrenze der Durchflusszentrifuge, gültig für eine Elimination  $\geq 85\%$ , liegt im Fall der in Abb. 4 dargestellten Messung zwischen 0.4 und 0.5 µm.



**Abbildung 4:** Ermittlung der Trengrenze der Durchlaufzentrifuge unter Verwendung von Partikelanalyse im Rohwasser und im zentrifugierten Wasser. Die Partikelanzahl als Funktion des Durchmessers im Rohwasser und im Auslauf der Durchflusszentrifuge kann auf der linken Ordinate abgelesen werden, die Effizienz der Partikelabtrennung in % auf der rechten.

Dies deckt sich mit der international anerkannten Trengrenze von  $0.45 \mu\text{m}$  für suspendierte Partikel (Hurd and Spencer, 1991). Im Rotationszyylinder der Durchflusszentrifuge werden die Partikel an ein eingelegtes Teflonblatt gepresst. Nach Beendigung der Zentrifugierung wird dieses Teflonblatt herausgezogen und die Partikel heruntergespült und lyophilisiert. Die Partikeltrockenmasse wird direkt bestimmt, das Volumen des zentrifugierten Wassers wurde bereits im Gelände ermittelt. Nach  $\gamma$ -Spektrometrie besteht damit auch hier die Möglichkeit, die Radionuklidaktivitäten sowohl massen-, wie auch volumenbezogen anzugeben.

**Kolloide:** Das durchflusszentrifugierte Wasser, aus dem Partikel  $> 0.5 \mu\text{m}$  bereits abgetrennt wurden, wird mittels Tangentialfiltration weiterbehandelt. Während der Filtration werden Substanzen mit einem Molekulargewicht  $> 5000$  (entspricht 5000 Dalton = Molekulargewicht), kontinuierlich aufkonzentriert. Diese Substanzen werden nach der momentan geläufigsten operationellen Definition als Kolloide bezeichnet. Das Wasser fliesst im Membranfilter turbulent und tangential zu den Poren in einem Kreislauf. Wasser und darin gelöste Substanzen (d.h. Substanzen mit einem Molekulargewicht  $< 5000$ ) verlassen das System als Filtrat, hingegen nimmt im Retentat die Kolloidkonzentration kontinuierlich zu. Bei der jetzigen Geräteeinstellung liegt der Durchfluss bei etwa 0.5 l pro Minute. Die Veränderung des Durchflusses informiert über Prozesse, die innerhalb der Membran ablaufen und den Filtrationsprozess beeinflussen können. In den von uns durchgeföhrten Testfiltrationen blieb der Durchfluss in etwa gleich, was eine relative Konstanz der Filtration attestiert. Eine Abnahme der Durchflussrate würde auf eine Porenverengung, z.B. als Folge einer Huminstoffbeschichtung hinweisen. Am Ende einer Probenaufbereitung steht ein Retentat (Konzentrat) von 5 Liter einem Filtrat von 50 bis 150 L gegenüber. Das Volumen des Retentats wird per Eindampfen weiter eingeengt und letztlich getrocknet. Die darin vorhandene 'kolloidal gebundene' Radionuklidaktivität wird  $\gamma$ -spektrometrisch gemessen und bis dato in Bq pro Volumen angegeben, da die Kolloidmassenbestimmung noch nicht voll ausgereift ist.

**Kationisch und anionisch 'gelöster' Anteil:** Um den als gelöst definierbaren Anteil zu bestimmen, können die Radionuklide mittels Eisenhydroxydfällung (siehe Abschnitt 2) oder Ionentauscher angereichert werden. Letztere

**Kationisch und anionisch 'gelöster' Anteil:** Um den als gelöst definierbaren Anteil zu bestimmen, können die Radionuklide mittels Eisenhydroxydfällung (siehe Abschnitt 2) oder Ionentauscher angereichert werden. Letztere Methode basiert auf einer Eigenentwicklung von Säulensystemen, die mit Anionen- und Kationentauscherharzen gefüllt werden können und direkt an die Tangentialfiltration geschaltet werden. Zur Bestimmung der Austauscheffizienz werden jeweils zwei Säulensysteme hintereinandergeschaltet. Die Ionenchromatographie hat zum einen den Vorteil, dass die kationisch und anionisch gelösten Anteile voneinander getrennt werden können, und zum anderen, dass der Wassertransport ins Labor entfällt. Die Ionentauscherharze können ohne weitere Verarbeitung  $\gamma$ -spektrometrisch gemessen werden. Die Aktivitäten der Radionuklide werden jeweils in Bq/m<sup>3</sup> getauschtem Wasser angegeben. Die ionenchromatographische Methode steht im Augenblick in der Endphase der Entwicklung und soll im Laufe des Jahres 1996 die Eisenhydroxidfällung für die Bestimmung des 'gelösten' Radionuklidanteils ersetzen.

### 3.7.3. Resultate

#### 3.7.3.1. Sedimentfallen

In Tabelle 2 sind Sedimentationsraten und massenbezogene Aktivitäten der anthropogenen (<sup>60</sup>Co und <sup>137</sup>Cs), sowie der natürlichen Radionuklide (<sup>7</sup>Be, <sup>40</sup>K) angegeben. Die Sedimentationsraten zeigen enorme saisonale und lokale Schwankungen (10-340 cm/Jahr im Stausee Niederried).

**Tabelle 2:** Zusammenfassung der in den Sedimentfallen von Niederried (unterhalb KKW), Klingnau (unterhalb KKG und KKB) und Augst (unterhalb KKL) gemessenen Radionuklidaktivitäten

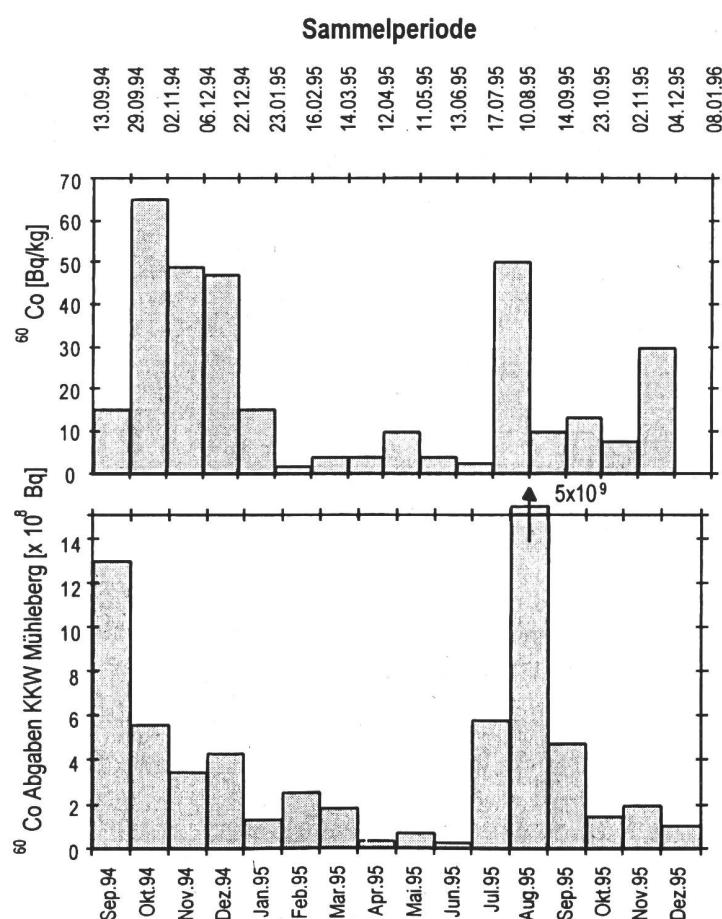
Nr.	Start	Ende	Sedi.-rate cm/Jahr	<sup>7</sup> Be Bq/kg	<sup>40</sup> K Bq/kg	<sup>54</sup> Mn Bq/kg	<sup>60</sup> Co Bq/kg	<sup>137</sup> Cs Bq/kg
<b>Niederried</b>								
828_01	13.9.94	29.9.94	77	90±10	400±25	1±1	15±1	5±1
828_02	29.9.94	2.11.94	13	245±25	470±45	< 1	65±4	15±2
828_03	2.11.94	6.12.94	10	200±30	650±60	< 1	49±3	18±3
828_04	6.12.94	22.12.94	21	150±50	750±125	< 2	47±5	16±5
828_05	22.12.94	23.1.95	21	130±25	720±70	< 1	15±2	14±3
828_06	23.1.95	16.2.95	256	65±15	420±35	< 1	1.4±0.4	5±1
828_07	16.2.95	14.3.95	22	45±15	360±30	< 1	4±1	5±1
828_08	14.3.95	12.4.95	39	80±15	450±40	< 1	4±1	7±1
828_09	12.4.95	11.5.95	46	50±10	460±40	< 1	10±1	5±1
828_10	11.5.95	13.6.95	339	20±10	450±35	< 1	4±1	3±1
828_11	13.6.95	17.7.95	197	60±5	460±40	0.4±0.2	2.4±0.2	9±1
828_12	17.7.95	10.8.95	33	170±40	460±50	20±3	50±5	11±2
828_13	10.8.95	14.9.95	45	85±15	480±35	< 1	10±1	4±1
828_14	14.9.95	23.10.95	20	87±54	470±40	3.5±1.4	13±1	7.4±1.3
828_15	23.10.95	2.11.95	56		410±30	< 0.4	7.4±0.9	8±1
828_16	2.11.95	4.12.95	24	180±10	580±50	4±1	30±2	20±1
828_17	4.12.95	8.1.96	336	19±12	420±30	< 0.4	< 0.5	5.0±1.0
<b>Klingnau</b>								
808_01	16.2.95	14.3.95	125	41±13	410±40	< 1	< 1	9±1
808_02	14.3.95	12.4.95	93	80±15	400±40	< 1	< 1	12±1
808_03	12.4.95	11.5.95	135	56±9	435±30	< 1	< 1	8±1
808_04	11.5.95	13.6.95	441	20±5	360±30	< 1	< 1	5±1
808_05	13.6.95	17.7.95	181	100±10	420±25	< 1	< 1	10±1

**Tabelle 2:** Fortsetzung

Nr.	Start	Ende	Sedi.-rate cm/Jahr	$^{7}\text{Be}$ Bq/kg	$^{40}\text{K}$ Bq/kg	$^{54}\text{Mn}$ Bq/kg	$^{60}\text{Co}$ Bq/kg	$^{137}\text{Cs}$ Bq/kg
<b>Augst</b>								
870_01	7.9.95	5.10.95	24		590±70	< 1.5	< 1.4	40±4
870_02	5.10.95	2.11.95	20	190±10	380±30	< 0.2	< 0.2	22±1
870_03	2.11.95	4.12.95	70	114±9	370±30	0.3±0.3	0.6±0.2	
870_04	4.12.95	8.1.96	288	80±5	390±30	< 0.1	< 0.1	19 *±1

\*  $^{134}\text{Cs} = 1.75 \text{ Bq/kg} (\pm 0.22)$ , in allen anderen Proben < 1 Bq/kg

$^{60}\text{Co}$  Aktivitäten variieren zwischen der Nachweisgrenze und 65 Bq/kg,  $^{137}\text{Cs}$  zwischen 3 und 60 Bq/kg,  $^{7}\text{Be}$  und  $^{40}\text{K}$  zwischen 19 und 275, respektive 360 und 1200 Bq/kg. Variationen von  $^{40}\text{K}$  reflektieren hauptsächlich die Konzentration an K-haltigen Mineralien (Kalifeldspat und Tone) und informieren demzufolge über Erosionsphänomene im Einzugsgebiet.  $^{7}\text{Be}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{60}\text{Co}$  sind an Partikel angelagert und folgen damit den z.T. bekannten Adsorptionsgesetzmäßigkeiten, wie z.B. dem Korngrösseneffekt.



**Abbildung 5:** oben: Aktivität von  $^{60}\text{Co}$  als Funktion der Zeit in Sedimenten des Stausees Niederried (unterhalb KKW Mühleberg); unten: Monatliche  $^{60}\text{Co}$ -Abgaben des KKW's Mühleberg an die Aare.

Für  $^{60}\text{Co}$ , dessen massgebende Quelle die Kernkraftwerke darstellen, spielt die Abgabe eine zusätzliche Rolle. Die monatliche  $^{60}\text{Co}$ -Abgabe durch das KKW Mühleberg während der Fallensammelperiode ist in Abbildung 6 graphisch dargestellt. Die Maxima während der Sommermonate sind typisch und hängen mit der jährlichen Revision des Kernkraftwerks zusammen. Ein Vergleich dieser monatlichen  $^{60}\text{Co}$ -Abgaben mit den im Stausee Niederried gemessenen Sedimentaktivitäten (Abb. 5) verdeutlicht eine gewisse Ähnlichkeit der Kurvenverläufe. Die Korrelation von Sedimentaktivitäten und Abgaben des KKW's kann durch unterschiedliche Sedimentationsraten beeinflusst werden, wobei mit Zunahme der Sedimentationsrate eine Verdünnung stattfindet. Aus diesem Grund soll in Zukunft neben der massenbezogenen Aktivität auch der Radionuklidfluss angegeben werden. Neben dem direkten Bezug zur Abgabe spielen weitere Faktoren eine Rolle, die auf das Adsorptionsverhalten einwirken. Ein Vergleich der  $^7\text{Be}$ - und  $^{60}\text{Co}$ -Aktivitäten (Abb. 6) zeigt eine Korrelation beider Radionuklide ( $R^2=0.83$ ) und unterstreicht die Bedeutung dieser für Metalle wichtigen, adsorptionssteuernden Faktoren, wie z.B. Korngrösse oder Mineralogie, die saisonalen Schwankungen unterworfen sind.

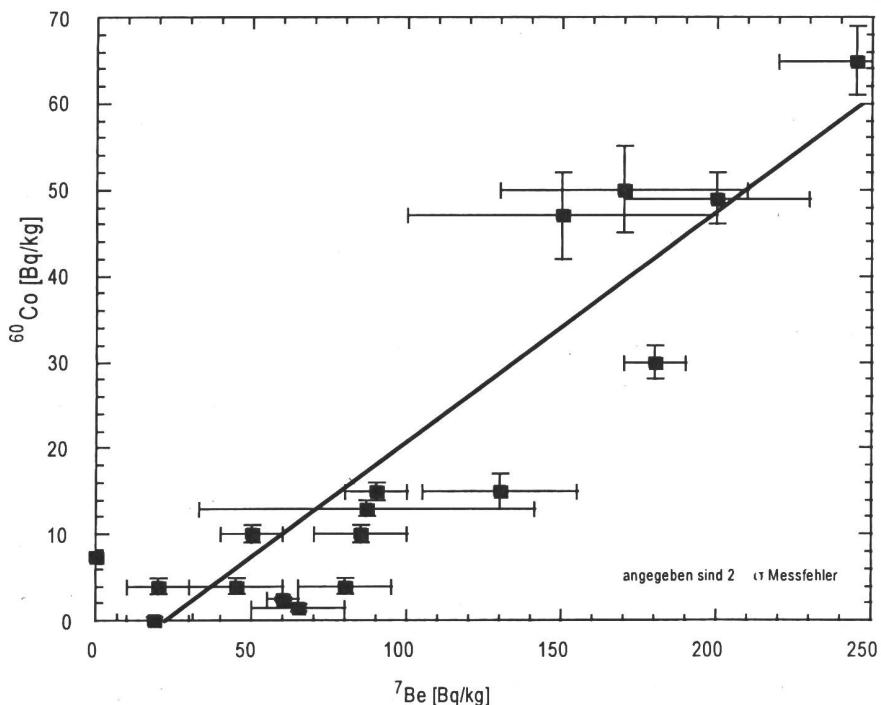


Abbildung 6:

Die Korrelation zwischen dem anthropogenen Radionuklid  $^{60}\text{Co}$  und dem natürlichen  $^7\text{Be}$  verdeutlicht die Bedeutung von adsorptionssteuernden Faktoren, die sich auf beide ähnlich auswirken.

Eine genauere Analyse dieser Faktoren wird gegenwärtig in einem gemeinsamen Forschungsprojekt von EAWAG und HSK genauer untersucht. Die Auswertung der Sedimentfallendaten von den Stauseen Klingnau und Augst wird wegen magerer Datendichte noch nicht vorangetrieben. Es kann jedoch bereits festgestellt werden, dass die  $^{60}\text{Co}$ -Aktivitäten im Durchschnitt unterhalb denjenigen des Stausee Niederried liegen (Tab. 2). Diese Differenz kann nicht durch unterschiedliche Abgaben der Kernkraftwerke erklärt werden, da z.B. die Jahresabgaben der KKW Mühleberg und Beznau für  $^{60}\text{Co}$  mit  $7.2 \times 10^9$  Bq und  $6.4 \times 10^9$  Bq in vergleichbarem Rahmen liegen. Der Grund für die geringere  $^{60}\text{Co}$ -Aktivitäten in den Flussabschnitten unterhalb des KKW Beznau muss in einer langsameren Adsorptionskinetik unterhalb Beznau liegen, was auf unterschiedlichen Flusschemismus oder unterschiedliche Spezifierung des abgegebenen  $^{60}\text{Co}$  hinweist. Auch dieser Punkt wird im EAWAG-HSK Folgeprojekt zur Zeit untersucht.

## (2) Mischwasserproben von Weil am Rhein

Trotz technischer Probleme, die während der Beprobung und Laborarbeiten des ersten Testjahres auftraten, lassen die gesammelten Daten erste Schlüsse zu und erlauben es, mit den in der Zukunft zu sammelnden Daten gesamtschweizerische Radionuklidinventare abzuschätzen. Zum einen ist es möglich, die  $^{60}\text{Co}$ -Aktivitäten des Rheinwassers beim Verlassen der Schweiz zu bestimmen. Der in Abb. 7 dargestellte Trend höherer Aktivitäten während der Sommermonate steht in Relation zu Abgaben der Kernkraftwerke.

Als Vergleichsbeispiel wird hier die  $^{60}\text{Co}$ -Abgabe durch das KKW Beznau herangezogen (Abb. 7). Die Ähnlichkeit der beiden Kurven ist markant, sollte jedoch noch mit Vorsicht interpretiert werden, da die volumenbezogenen Aktivitäten mit dem jeweiligen Monatsdurchschnitt der Rheinabflusswerte multipliziert werden müssen, die z.Z. noch nicht zur Verfügung stehen. Die Möglichkeiten der Auswertung der in Weil/Rhein gesammelten und zu sammelnden Proben scheinen sehr vielversprechend und dürften sowohl das Verständnis des aquatischen Radionuklidtransports, wie damit zusammenhängende radioökologische Fragen einer Antwort näher bringen.

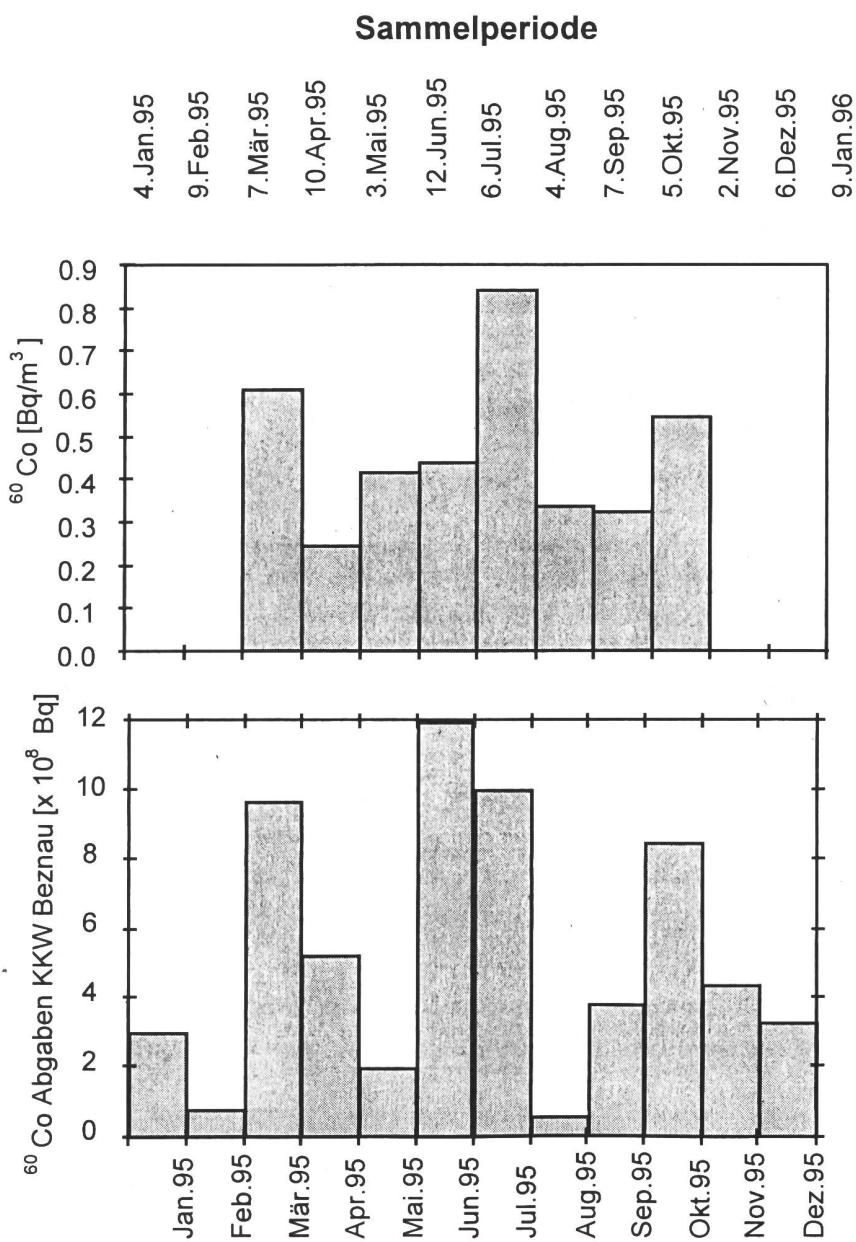


Abbildung 7:

oben:

Erste Ergebnisse der Mischwasserbeprobung von Weil/Rhein; dargestellt sind die volumenbezogenen Aktivitäten von  $^{60}\text{Co}$  als Funktion der Zeit für 1995

unten:

Flüssige  $^{60}\text{Co}$ -Abgaben an die Aare durch das KKW Beznau während 1995

## Danksagung

Unser besonderer Dank geht an die Mitarbeiter der Schweizerischen Kernkraftwerke und der im Flussabschnitt Aare/Bern und Rhein/Basel gelegenen Wasserkraftwerke für die geleistete logistische Unterstützung. Diese Studie wird gemeinsam vom BAG und der HSK finanziell unterstützt.

## Literaturnachweis

Albrecht, A., 1995, Das Verhalten von Radionukliden aus Kernanlagen in Aare und Rhein, EAWAG-HSK Forschungsprojekt, Sept. 1995, Abschlussbericht.

Albrecht, A., P. Reichert, J. Beer and A. Lück, 1995. Evaluation of the importance of reservoir sediments as sinks for reactor-derived radionuclides in riverine systems. *Journal of Environmental Radioactivity*. 28: 239-269.

Hurd, D.C. and D.W. Spencer, 1991 (Editoren), Marine particles: Analysis and Characterization, Geophysical Monograph 63, American Geophysical Union Washington.

Miller, M.C., I.N. McCave and P.D. Komar, 1977. Threshold of sediment motion under unidirectional currents. *Sedimentology*. 24: 507-527.

Mundschenk, H., 1996a. Occurrence and behaviour of radionuclides in the Moselle River-Part I: Entry of natural and artificial radionuclides. *J. Environ. Radioactivity*. 30: 199-213.

Mundschenk, H., 1996b. Occurrence and behaviour of radionuclides in the Moselle River-Part II: Distribution of radionuclides between aqueous phase and suspended matter. *J. Environ. Radioactivity*. 30: 215-232.

Mundschenk, H., 1996c. Occurrence and behaviour of radionuclides in the Moselle River-Part III: Dispersion of radionuclides along the river course. *J. Environ. Radioactivity*. 30: 233-251.

## 3.8. Natürliche Radionuklide im Wasser

### 3.8.1 Trinkwasser und Mineralwasser

H. Surbeck Sektion Überwachung der Radioaktivität (SUER), Gruppe Allgemeine Überwachung  
Bundesamt für Gesundheit, Ch. du Musée 3, 1700 FRIBOURG

Mit der neuen Strahlenschutzverordnung (StSV) sind Grenzwerte für Alpha-Strahler aus der Uran- und Thoriumreihe im Trinkwasser in der Verordnung über Fremd- und Inhaltsstoffe in Lebensmitteln (FIV) festgelegt worden<sup>1)</sup>. Der Vollzug der StSV im Bereich der Lebensmittel liegt zwar bei den Kantonen, aber die Kantonalen Laboratorien brauchen dazu Unterstützung. Eine Aufgabe der SUER ist dabei, mit Übersichtsmessungen in der Schweiz den Kantonen aufzuzeigen, wo Probleme mit Trinkwässern auftreten können und welche Radionuklide relevant sind. Eine Einführung zum Thema natürliche Radionuklide im Wasser befindet sich im BAG-Jahresbericht 1994 (Kap. 3.8.).

Fig. 1 zeigt eine Übersicht der Resultate für bis und mit 1995 gemessene Proben. Ein grosser Teil der Proben in Fig. 1b und 1c wurde auch im AC-Laboratorium Spiez gemessen. Der Vergleich der Resultate mit den Analysen der SUER fiel befriedigend aus. Man kann daher mit gutem Gewissen die, gegenüber den traditionellen radiochemischen Methoden wesentlich vereinfachten, Analysemethoden der SUER auch anderen Labors als Screening Methoden empfehlen. Werte nahe an der Limite sollten aber mit einer unabhängigen Methode bestätigt werden. Die Methoden der SUER wurden im BAG-Jahresbericht 1994 (Kap. 3.8.) beschrieben.

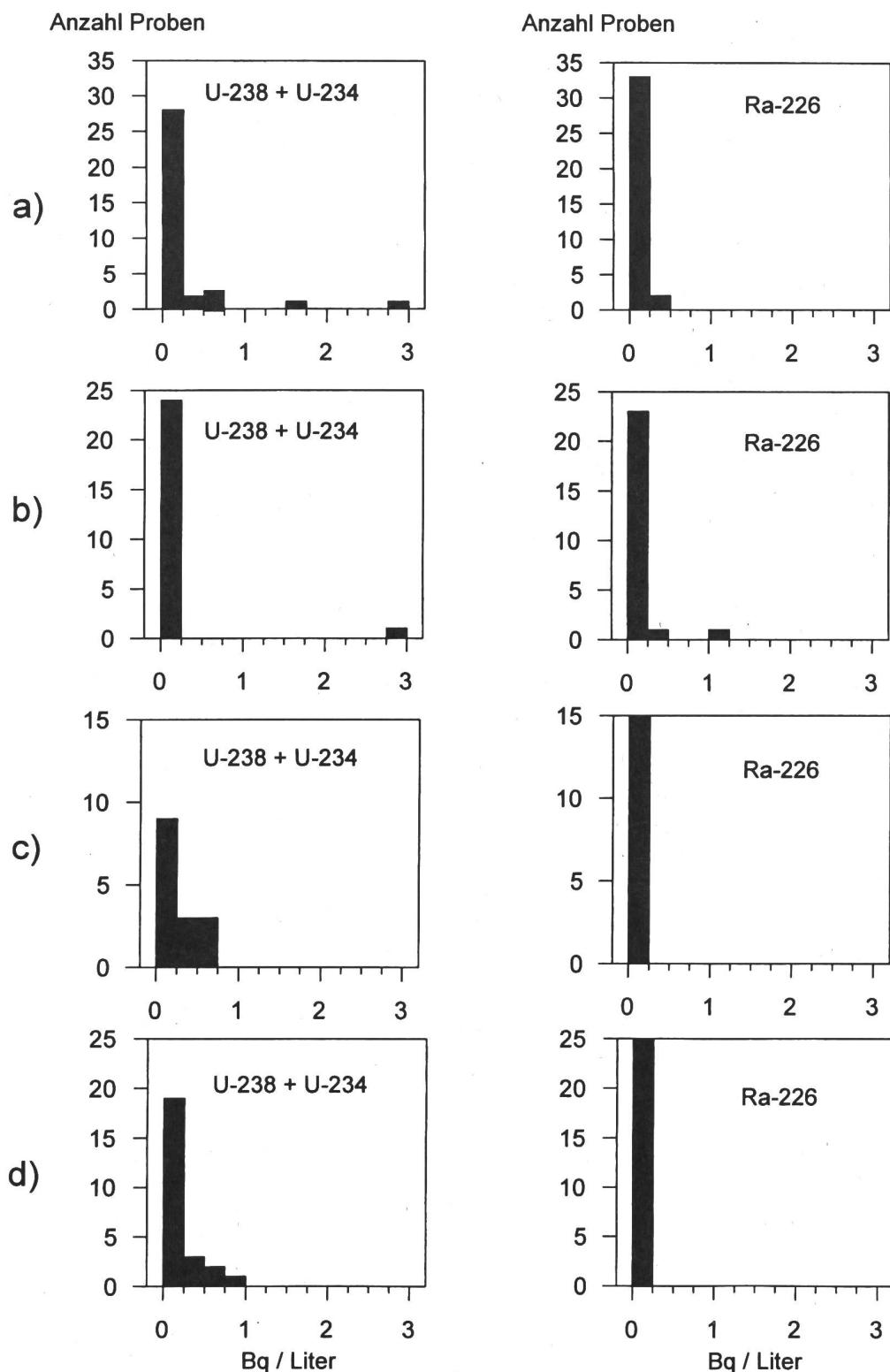
Zwei der von der SUER gemessenen und in Fig. 1b aufgeführten Proben importierte Mineralwässer überschreiten die Limite für natürliche Radionuklide der FIV. Im Fall des hohen  $^{226}\text{Ra}$ -Wertes wurde vom zuständigen kantonalen Labor noch eine amtliche Probe erhoben und bei der SUER gemessen. Eine Parallelmessung durch das AC-Laboratorium Spiez hat die Überschreitung des Grenzwertes bestätigt. Das zuständige Kantonale Labor hat dieses Mineralwasser im Mai 1996 aus dem Verkehr gezogen. Der Fall des hohen Uranwertes (ca. 3 Bq/Liter), der sich schon in der PSI-Serie 1989 gezeigt hatte (Fig. 1a), wird weiter untersucht. Das importierte Mineralwasser in Fig. 1a mit ca. 1.6 Bq  $^{238}\text{U}$  +  $^{234}\text{U}$  war in der Mess-Serie von 1995 nicht enthalten.

Eine hohe Urankonzentration, knapp unterhalb der Limite, wurde aber auch in einer Probe von einem öffentlichen Brunnen gefunden (Fig. 1d). Dieses Wasser wird nun, zusammen mit weiteren Wässern aus der Gegend, mehrmals jährlich beprobt, da sich bei anderen Quellen gezeigt hat, dass (zumindest für das Radon) die zeitlichen Konzentrations-Schwankungen sehr gross sein können.

Die bisherigen Probenahmorte für Grund- und Quellwässer wurden vor allem aufgrund erhöhter Werte bei einer früheren (chemischen) Analyse von Schweizer Wässern (Bärtschi und Keil NAGRA NTB 91-26) ausgewählt. Die Verteilung in Fig. 1d entspricht daher wohl kaum einer repräsentativen Verteilung der Aktivitäten in Schweizer Grund- und Quellwässern. Sie zeigt aber, dass auch bei Schweizer Trinkwässern Überschreitungen der Limite auftreten könnten. Es werden daher weitere Wässer beprobt, insbesondere auch solche, bei denen aufgrund der Geologie ein Verdacht auf erhöhte Radiumkonzentration besteht.

---

1) Für Alphateilchen emittierende Radionuklide der Uran- und Thoriumreihe gilt für flüssige Lebensmittel ein Grenzwert von 1 Bq/l (Summe der gemessenen Aktivitäten). Gemäss Strahlenschutzverordnung (StSV) führt der tägliche Konsum von 0.3 l eines Mineralwassers mit je 1 Bq/l zu folgenden Jahresdosen in mSv:  $^{238}\text{U}$ : 0.003;  $^{234}\text{U}$ : 0.003;  $^{226}\text{Ra}$ : 0.025.



**Fig.1 :** Häufigkeitsverteilung der Uran- und Radium-Aktivitäten in Mineral-, Grund- und Quellwässern.

- a) Schweizer- und Import-Mineralwässer (34 Proben, Messung PSI 1989),
- b) Importierte Mineralwässer (25 Proben, Messung SUER 1995),
- c) Schweizer Mineralwässer (15 Proben, Messung SUER 1994/95),
- d) Schweizer Grund- und Quellwässer (25 Proben, Messung SUER 1994/95)

### 3.8.2 Schwerpunktaktion 1995 an der Grenze

C. Bajo <sup>1)</sup> und M. Burger <sup>2)</sup>

1) Kantonales Laboratorium Aargau, Kunsthauseweg 24, 5000 AARAU

2) AC-Laboratorium Spiez, 3700 SPIEZ

Gemäss der neuen Strahlenschutzgesetzgebung wird die natürliche Radioaktivität (Radionuklide der Uran- und Thoriumreihe) von flüssigen Lebensmitteln durch einen Grenzwert von 1 Bq/kg (FIV) begrenzt. Da dieser Wert in der Grössenordnung der Konzentrationen, die in natürlichen Wässern vorkommen können, liegt, und da zu diesem Thema noch wenige Messungen vorliegen, hat sich das BAG, Abteilung Vollzug Lebensmittelrecht, für eine Schwerpunktaktion an der Grenze entschieden. Mit der Analytik solcher Nuklide sind nur wenige spezialisierte Labors vertraut, unter anderen das AC-Laboratorium Spiez, das die Messungen durchgeführt hat. Zu Vergleichszwecken wurden die Proben mit anderen Verfahren durch die SUER ebenfalls untersucht.

37 Mineralwasser-Proben wurden vom Zoll erhoben und mit 8 amtlichen Proben (davon 2 aus dem Aargau) ergänzt. Diese 45 Proben stammen aus 24 Quellen oder Fassungen und verteilen sich wie folgt: 1mal Slovenien, 2mal Aargau, 7mal Frankreich und 14mal Italien, wobei aus diesen letzten 2 Ländern die grössten Mengen importiert werden. Pro Quelle wurde eine Probe auf U-238, U-234, Th-230, Ra-226, Po-210, U-235, Th-232, Th-228 und Ra-224 untersucht. Die alphaspektrometrischen Messungen wurden nach radiochemischen Trennschritte durchgeführt <sup>1)</sup>.

Die Analysenergebnisse sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Weder Th-232 noch Th-230 konnten nachgewiesen werden (in allen Proben < 5 mBq/kg). U-235-Gehalte wurden in den uranhaltigen Proben gemessen und entsprechen dem Aktivitätenverhältnis von Natururan ( $U-235/U-238 = 0.046$ ). Die messbaren Alphastrahler der natürlichen Zerfallsketten stammen hauptsächlich aus der U-238-Kette und sind: U-238, U-234 und Ra-226. In der Gesamtbeurteilung ergibt sich, dass bei 7 der 24 untersuchten Proben die Summe der Alpha-Strahler grösser als 100 mBq/kg ist: 5 bestehen hauptsächlich (> 50 % der Summe) aus U-234 und U-238 und in 2 wurde ein signifikanter Anteil (> 15 % der Summe) aus der Th-232-Kette stammend festgestellt (Th-228 und Ra-224). Diese 2 Proben sind stark mineralisierte Mineralwässer (> 3 g/kg Gesamtmineralisation) und enthalten vor allem Ra-226 (> 50 % der Summe). Der Grenzwert wurde in keiner Probe überschritten.

---

1) Ein weiteres importiertes Mineralwasser wurde vom Kantonalen Laboratorium Neuenburg erhoben, und musste, da sein Gehalt an natürlichen Alpha-Strahlern der Uran- und Thorium-Zerfallsreihen bei 2.5 Bq/l lag, aus dem Verkehr gezogen werden.

**Mineralwasser: Schwerpunktaktion an der Grenze**

#	Ursprung	mBq/kg								U-234/ U-238
		U-238 <sup>1)</sup>	U-234 <sup>1)</sup>	Ra-226 <sup>1)</sup>	Po-210 <sup>1)</sup>	Th-228 <sup>1)</sup>	Ra-224 <sup>2)</sup>	Summe		
1	Slovenien	< 5	< 5	110±22	< 3	31±17	9±3	140±35		
4	Italien	19±2	18±3	< 20	< 3	< 5	< 6	< 100	0.95	
9	Italien	12±1	16±1	< 20	< 3	< 5	< 5	< 100	1.33	
13	France	29±3	128±10	< 20	< 3	6±2	7±3	160±20	4.41	
15	Italien	19±2	22±5	31±4	< 3	6±4	< 5	< 100	1.16	
16	Italien	69±2	64±5	< 20	< 3	< 5	< 5	130±15	0.93	
17	Italien	12±1	13±1	< 20	< 3	< 5	< 5	< 100	1.08	
18	Italien	8±1	7±2	< 20	< 3	6±3	< 5	< 100	0.88	
20	France	32±6	35±1	< 20	< 3	< 5	< 5	< 100	1.09	
21	Italien	< 5	< 5	< 20	< 3	< 5	< 5	< 100		
26	France	22±3	23±1	< 20	< 3	< 5	< 5	< 100	1.05	
27	France	8±1	37±2	20±1	< 3	5±1	< 5	< 100	4.63	
28	Italien	103±8	108±2	142±9	3.5±0.5	< 5	< 5	360±40	1.05	
29	France	15±2	41±8	< 20	< 3	< 5	< 5	< 100	2.73	
30	France	8±4	13±1	< 20	4.1±1.6	< 5	< 5	< 100	1.63	
31	Italien	15±1	17±3	< 20	< 3	< 5	< 5	< 100	1.13	
32	Italien	13±3	13±1	< 20	< 3	< 5	< 5	< 100	1.00	
33	Italien	58±1	73±4	< 20	< 3	< 5	< 5	130±15	1.26	
34	Aargau	< 5	< 5	< 20	< 3	< 5	< 5	< 100		
38	Aargau	< 5	< 5	45±12	< 3	< 5	< 10	< 100		
40	Italien	34±6	35±3	< 20	< 3	< 5	< 7	< 100	1.03	
43	Italien	< 5	< 5	< 20	< 3	< 5	< 9	< 100		
44	France	57±1	192±2	492±22	4.1±2.3	91±19	36±5	840±120	3.37	
47	Italien	104±8	131±1	177±16	< 3	< 5	< 5	420±50	1.26	

1) Messung AC-Labor, Spiez

2) Messung SUER, Fribourg

### 3.9. Vergleichende Untersuchungen der Einschwemmung von Cäsium-Radionukliden in den Lugarersee und den Bodensee

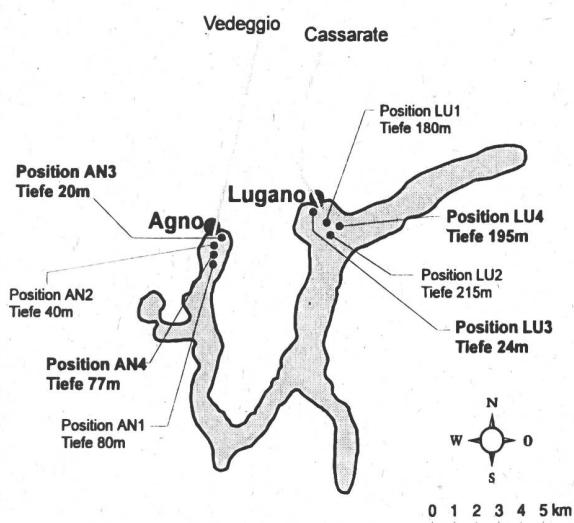
T. Klenk<sup>1)</sup>, E. Klemt<sup>1)</sup>, R. Miller<sup>1)</sup>, G. Zibold<sup>1)</sup>, M. Burger<sup>2)</sup>, A. Jakob<sup>2)</sup>

- 1) Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, IAF Radiometrie, Postfach 1261  
88241 WEINGARTEN, Deutschland
- 2) GR, AC-Laboratorium Spiez, Sektion Sicherheitsfragen, Zentrale Analytik und Radiochemie  
CH-3700 SPIEZ, Schweiz

#### 3.9.1. Einleitung

Die Tiefenverteilung von  $^{137}\text{Cs}$  im Sediment des Lugarersees, sowie dessen Rücklösung aus dem Sediment wurde 1994 im Mündungsbereich der Zuflüsse Cassarate und Vedeggio untersucht /1/. Um die Ergebnisse zu vervollständigen, wurde die Untersuchung 1995 auf 4 weitere ufernahe und uferferne Beprobungspositionen im Mündungsbereich der Zuflüsse ausgeweitet (s. Abb. 1). Die Untersuchungen gaben Aufschluß über den Eintrag von kontaminiertem Material durch die Zuflüsse in den Lugarersee, klärten die Bindungsverhältnisse des  $^{137}\text{Cs}$  im Sediment und gaben damit Anhaltspunkte für eine mögliche Rücklösung des  $^{137}\text{Cs}$  in das Seewasser. Um ein

besseres Verständnis des Transfers von Radionukliden in den See und damit letztendlich auch in die Nahrungskette des Menschen zu erhalten, bildete die Messung von Wasserproben aus Oberflächen- und Tiefenwasser des Sees, von Porenwasser aus dem Sediment und von Wasser aus den Zuflüssen einen neuen Schwerpunkt. Für eine spätere Modellierung der Grenzschicht Sediment-Wasser, wurden  $K_d$ -Werte, die Kationenaustauschkapazität und damit auch die Konzentration der Konkurrenzionen des Cs gemessen.



**Abb. 1:** Darstellung der Beprobungspositionen 1995 im Lugarer See (fett gedruckt). Die Probenahmeorte des Jahres 1994 sind ebenfalls eingetragen.

#### 3.9.2. Gelöstes $^{137}\text{Cs}$ im Wasser

Aus den Zuflüssen Cassarate und Vedeggio wurden jeweils zwei Wasserproben entnommen. Bis auf die erste Cassarate-Probe konnte bei allen Messungen die gleiche  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität von 3,8 mBq/l festgestellt werden (s. Tab. 1). Zum Zeitpunkt der ersten Probenahme aus dem Cassarate war der Wasserstand deutlich niedriger und die spezifische Aktivität um den Faktor 1,7 höher als während der folgenden Probenahmen. An den uferfernen Beprobungspositionen wurden aus Agno-Becken und Nordbecken des Lugarersees oberflächennah und grundnah Wasserproben entnommen. Die spezifische Aktivität des gelösten  $^{137}\text{Cs}$  im Wasser des Agno-Beckens zeigt für das oberflächennahe Wasser in etwa denselben Wert von rund 8 mBq/l wie für grundnah entnommenes Wasser aus 77 m Tiefe. Im Gegensatz dazu, ist die spezifische Aktivität von grundnah entnommenem Wasser aus dem Tiefenbecken vor Lugano (195 m) um einen Faktor 10 gegenüber der des Oberflächenwassers erhöht (3 mBq/l bzw. 34 mBq/l).

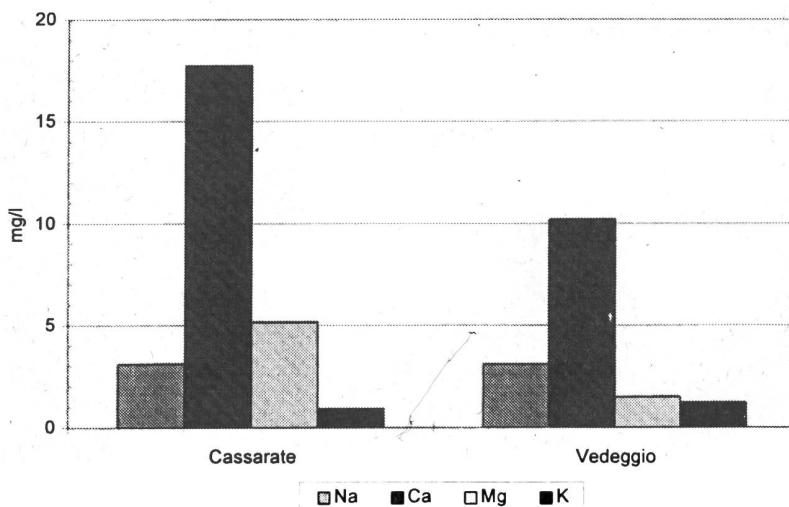
**Tab. 1:** Spezifische  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität von Wasser aus dem Lugarnersee und seinen Zuflüssen

Entnahmetiefe:	$^{137}\text{Cs}$ -Aktivität:				Probenahme:
<b>Flußwasser</b>					
Cassarate	6,5	mBq/l	+/-	12 %	17.05.1995
	3,8	mBq/l	+/-	19 %	13.06.1995
Vedeggio	3,8	mBq/l	+/-	17 %	14.06.1995
	3,8	mBq/l	+/-	19 %	21.07.1995
<b>Seewasser</b>					
Pos. AN4	Oberflächenwasser	8	mBq/l	+/-	9 %
	77m	7,6	mBq/l	+/-	10 %
Pos. LU4	Oberflächenwasser	3	mBq/l	+/-	3 %
	195m	33,7	mBq/l	+/-	6 %
<b>Porenwasser</b>					
Pos. AN3	Sediment aus 20m Tiefe	377	mBq/l	+/-	17 %
					20.07.1995

Die ständig anoxischen Bedingungen /2/ und die hohe  $\text{NH}_4^+$  Konzentration im Tiefenwasser begünstigen Rücklöseprozesse von Radiocäsium aus dem Sediment in das Seewasser und sind somit für diesen Effekt mitverantwortlich. Da aufgrund der großen Tiefe des Beckens die winterliche Zirkulation nur selten Einfluß auf die Durchmischung des Wasserkörpers nimmt /2/, findet am Seegrund wahrscheinlich auch eine Aufkonzentration von Stoffen statt. Im Gegensatz zum Lugarnersee liegt die  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität auch im Tiefenwasser des Bodensees heute unterhalb unserer Nachweisgrenze von 0,66 mBq/l /3/.

### 3.9.3. Konzentrationen der Konkurrenzionen von $^{137}\text{Cs}$

Alle Wasserproben wurden ionenchromatographisch auf die Konzentration der Kationen  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  und  $\text{K}^+$  untersucht. Die Konzentration des sich rasch zersetzen Ammonium-Stickstoff ( $\text{NH}_4^+$ ) wurde jeweils vor Ort photometrisch bestimmt.



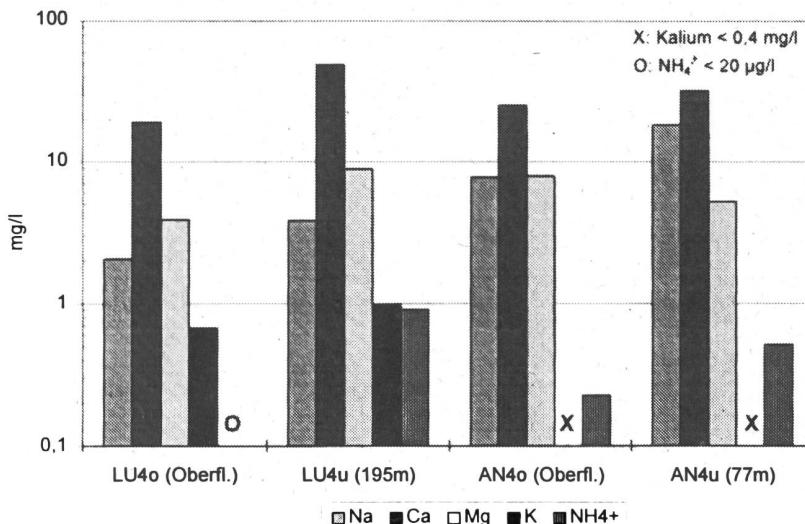
**Abb. 2:** Konzentrationen von  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  und  $\text{K}^+$  im Wasser der Zuflüsse Cassarate und Vedeggio

$\text{NH}_4^+$  ist bis auf die oberflächennahe Probe aus dem Nordbecken (Pos. LU4) überall nachweisbar. Die höchste Konzentration von über 900  $\mu\text{g/l}$  war im Tiefenwasser dieser Position meßbar. Wie die  $^{137}\text{Cs}$  Konzentration, nimmt dort also auch die  $\text{NH}_4^+$  Konzentration mit der Wassertiefe zu. Im Agno-Becken ist sie in 77 m Tiefe ungefähr doppelt so groß wie in der oberflächennahen Probe (0,23 mg/l bzw. 0,52 mg/l). Gleichzeitig unterscheiden sich dort die Konzentrationen der Kationen  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$  und  $\text{Mg}^{2+}$  für Oberflächennwasser und

Im Wasser der Zuflüsse Cassarate und Vedeggio liegt die  $\text{NH}_4^+$  Konzentration unterhalb der Nachweisgrenze von 20  $\mu\text{g/l}$ . Abb. 2 zeigt, daß  $\text{Ca}^{2+}$  mit 10 mg/l im Vedeggio und 18 mg/l im Cassarate jeweils das dominierende Kation ist. Die Konzentration von  $\text{K}^+$  ist in beiden Flüssen ähnlich. Sie beträgt 0,92 mg/l bzw. 1,23 mg/l.

Die Kationenkonzentrationen im Seewasser liegen insgesamt höher als in den Zuflüssen.  $\text{Ca}^{2+}$  ist wiederum das dominierende Kation.

Tiefenwasser nur gering; die Konzentrationen von K<sup>+</sup> liegen jeweils unterhalb der Nachweisgrenze von ca. 0,4 mg/l.



**Abb. 3:**  
Konzentrationen von Na<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, K<sup>+</sup> und NH<sub>4</sub><sup>+</sup> im Wasser des Lugarnersees

Cs<sup>+</sup> konkurriert mit den übrigen Kationen um Bindungsplätze im Sediment. Die wichtigsten Konkurrenzen auf selektive Bindungsplätze sind K<sup>+</sup> und NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, wobei NH<sub>4</sub><sup>+</sup> eine gegenüber K<sup>+</sup> 5-fach höhere Affinität zugeschrieben wird /4/. Im Tiefenwasser des Bodensees (240 m) wurden NH<sub>4</sub><sup>+</sup> Konzentrationen von < 100 µg/l und K<sup>+</sup> Konzentrationen von 0,8 mg/l gemessen /5/. Im Lugarnersee sind also insbesondere NH<sub>4</sub><sup>+</sup> aber auch K<sup>+</sup> Konkurrenten von Cs-Ionen für diese Bindungsplätze im Sediment, während im Bodensee Cs<sup>+</sup> hauptsächlich durch K<sup>+</sup> ausgetauscht wird.

### 3.9.4.- K<sub>d</sub>-Werte und Kationenaustauschkapazität

Für die ufernahe Position AN3 (Tiefe 20 m) wurden die K<sub>d</sub>-Werte und die Kationenaustauschkapazität ermittelt. Die K<sub>d</sub>-Werte wurden sowohl auf das gesamte in der Trockenmasse enthaltene Cs als auch auf das durch Extraktion austauschbare Cs (24 h mit 1-molarem CH<sub>3</sub>COONH<sub>4</sub>) bezogen:

$$K_d(\text{tot}) = \frac{Cs_{\text{tot}}}{Cs_w} = 3281 \text{ l/kg } (+/-21\%); \quad K_d(\text{ex}) = \frac{Cs_{\text{ex}}}{Cs_w} = 137 \text{ l/kg } (+/-21\%)$$

CS<sub>tot</sub> = <sup>137</sup>Cs Aktivität, bezogen auf die Trockenmasse des Sedimentes

CS<sub>ex</sub> = <sup>137</sup>Cs Aktivität im Überstand nach Extraktion (bezogen auf die ges. Trockenmasse)

CS<sub>w</sub> = spez. <sup>137</sup>Cs Aktivität im Porenwasser

$$\text{Anteil der austauschbaren } ^{137}\text{Cs-Fraktion: } \frac{Cs_{\text{ex}}}{Cs_{\text{tot}}} = \frac{K_d(\text{ex})}{K_d(\text{tot})} = (4,2 \pm 0,2) \%$$

Außer für Na<sup>+</sup> weist der Überstand nach der Sedimentextraktion 10-fache bis 100-fache Kationenkonzentrationen gegenüber dem Porenwasser auf. Die effektive Kationenaustauschkapazität (KAK) dieser Position wurde zu 226 mval/kg für die obersten 10 cm Sediment bestimmt. Die K<sub>d</sub>-Werte zeigen, daß <sup>137</sup>Cs im Porenwasser von Sediment des Agno-Beckens eine geringere Affinität zum Sediment besitzt als im Bodensee. Der Anteil, der durch NH<sub>4</sub><sup>+</sup> austauschbaren Cs-Fraktion und die KAK sind für Agno-Becken und Bodensee in etwa gleich.

### 3.9.5. Tiefenverteilung des Radiocäsiums im Sediment

#### Tiefenprofile aus dem Nordbecken

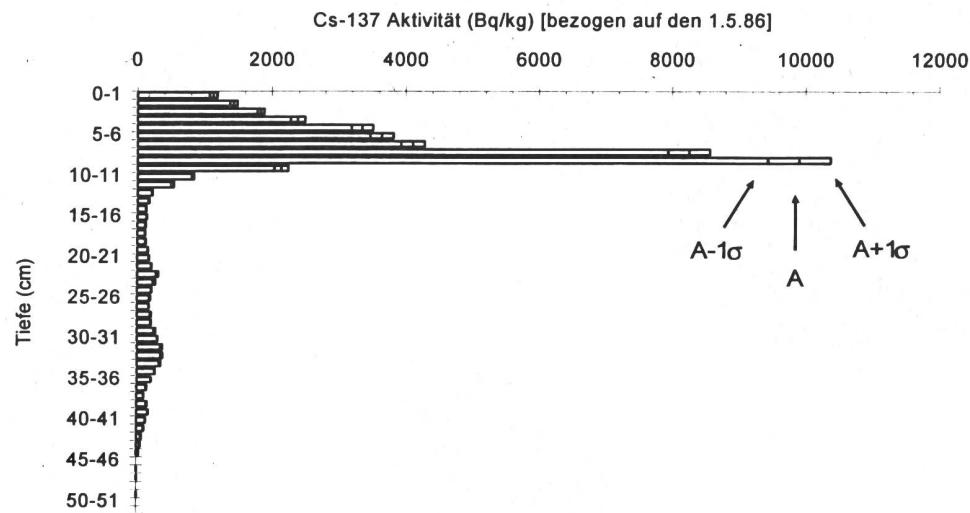


Abb. 4:  $^{137}\text{Cs}$ -Tiefenverteilung an der Pos. LU3 (vor Mündung Cassarate). Tiefe 24 m.

An der Position LU3 wurde ein Sedimentkern in unmittelbarer Nähe zur Flussmündung des Cassarate entnommen. Um weniger grobes Material zu erhalten und wegen des steil abfallenden Seebodens in Einströmrichtung wurde diese Position seitlich versetzt zur Mündung gewählt. Der Verlauf des Cs-Tiefenprofils zeigt das Tschernobylmaximum in 9 cm Tiefe mit einer sehr hohen spezifischen Aktivität des Materials von bis zu 10000 Bq/kg. Das Maximum ist unsymmetrisch und weist zur Sedimentoberfläche hin einen „Nachlauf“ auf, mit einer spezifischen Aktivität an der Sedimentoberfläche von rund 1100 Bq/kg. In einem Zwischenmaximum in 23 cm Tiefe kann das für den Tschernobylfallout typische  $^{134}\text{Cs}$  gemessen und somit diesem Ereignis zugeordnet werden. Zwei weitere Maxima in 33 cm und 40 cm Tiefe weisen kein  $^{134}\text{Cs}$  mehr auf und stammen daher aus dem Fallout der atmosphärischen Kernwaffentests. Es wurden Proben bis in 74 cm Tiefe untersucht. Unterhalb von 50 cm konnte kein Cs mehr nachgewiesen werden.

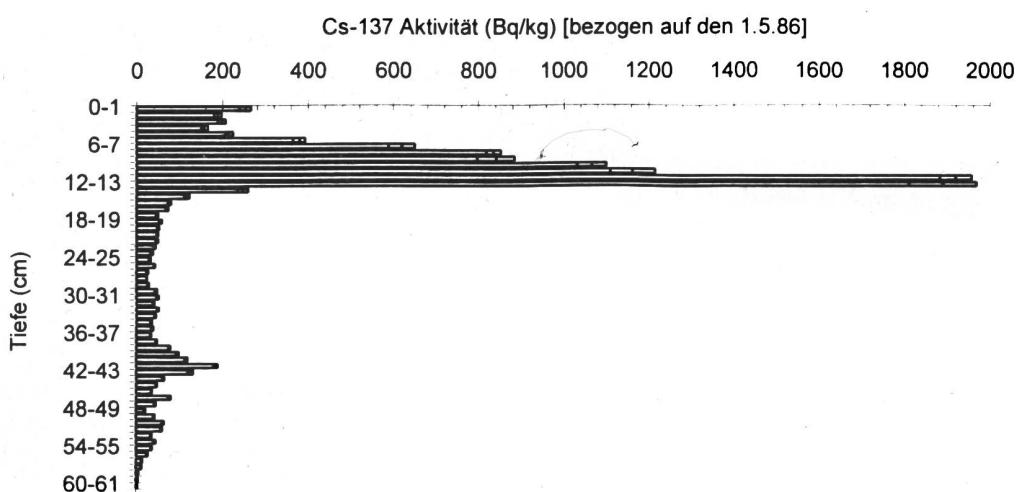
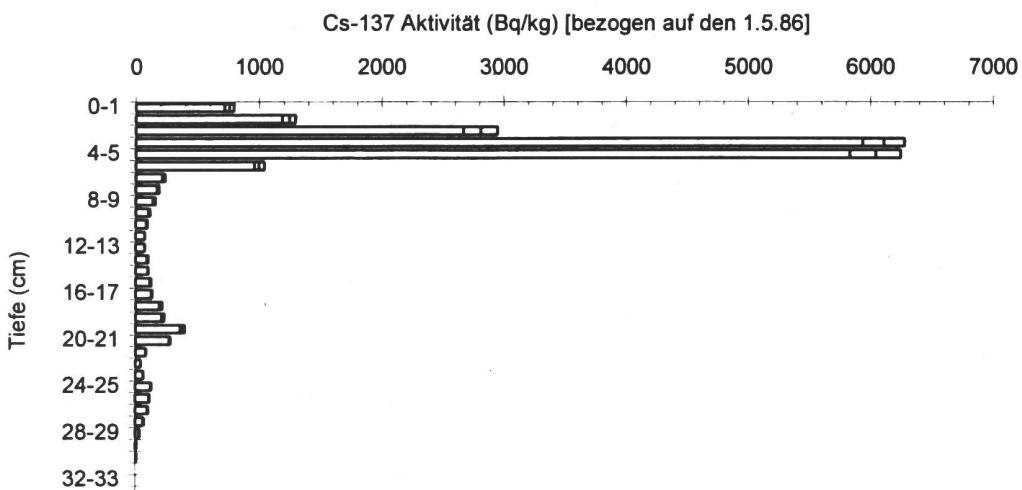


Abb. 5:  $^{137}\text{Cs}$ -Tiefenverteilung an der Position LU4 (uferfern). Tiefe 195 m.

Der Cs-Tiefenverlauf der uferfernen Position LU4 ist dem der Position LU3 qualitativ ähnlich. Die spezifische Aktivität des getrockneten Sediments liegt jedoch im Bereich des Tschernobylpeaks um einen Faktor 5 niedriger als an der ufernahen Position. Dieser Faktor entspricht in etwa der unterschiedlichen Dichte des Materials der Kerne in diesen Schichten. Im Bereich des Kernwaffentestcäsiums sind Maxima in 42 cm und 51 cm Tiefe erkennbar. Die Werte der spezifischen  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität liegen in etwa bei der Hälfte der für Position LU3 gemessenen Werte. Dieser Faktor 2 entspricht wiederum dem Dichteunterschied der Sedimente, der aufgrund von Kompaktierungseffekten mit zunehmender Sedimenttiefe kleiner wird. Im Bereich von 30 cm bis 33 cm ist Analog zu Position LU3 ein Zwischenmaximum abgebildet (in 23 cm Tiefe bei Position LU3). Eine nähere Untersuchung auf  $^{134}\text{Cs}$  aus dem Tschernobylfallout wurde dort nicht durchgeführt.

#### Tiefenprofile aus dem Becken vor Agno

Der Sedimentkern der Position AN4 stammt, wie der 1994 entnommene Kern der Position AN1 /1/, aus dem zentralen Agno-Becken. Durch die Nähe der beiden Beprobungspositionen sollte die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse und der Einfluß der Stauchung beim Stechen bzw. beim Ausstoßen der Kerne aus dem PVC-Rohr untersucht werden. Dies ist besonders wichtig hinsichtlich des hohen Wassergehaltes der obersten ca. 30 cm des Sedimentes an dieser Position. Das Material war mit Gasblasen durchsetzt; beim Bergen der Kerne trat Methangeruch auf. Der Tiefenverlauf der  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität zeigt deutlich voneinander abgegrenzte Maxima aus Tschernobyl- und Kernwaffentestfallout. Der Tschernobylpeak der spezifischen Aktivität in ca. 4 cm Tiefe nimmt zur Sedimentoberfläche hin auf einen Wert von rund 800 Bq/kg ab. Auch unterhalb von 4 cm ist Tschernobylcäsium bis in ca. 11 cm Tiefe zu finden. Die beiden Maxima in 20 cm und 26 cm Tiefe können dem Kernwaffentest-Fallout zugeordnet werden. Die Tiefenverteilungen an den Positionen AN1 und AN4 sind damit nahezu identisch.



**Abb. 6:**  $^{137}\text{Cs}$ -Tiefenverteilung an der Position AN4 (uferfern). Tiefe 77 m.

Der Sedimentkern der Position AN3 wurde in unmittelbarer Nähe der Vedeggio-Mündung aus ca. 20 m Tiefe entnommen. An der Sedimentoberfläche war ein ca. 5 mm dicker grüner Belag zu erkennen. Die oberen ca. 30 cm des Sedimentes waren schwarz gefärbt und wiesen eine wässrige Konsistenz auf. Eine Schichtung des Materials war nicht sichtbar. Der hohe Wasseranteil des Sediments erlaubte an dieser Position die Gewinnung einer ausreichenden Menge von Porenwasser, die für weitere Untersuchungen herangezogen wurde. Das Maximum von  $^{137}\text{Cs}$  aus dem Tschernobylfallout befindet sich in ca. 7 cm Tiefe. Trotz des verhältnismäßig hohen Wasseranteils des Sedimentes, ist ein an den Flanken steil abfallender Tschernobylpeak vorhanden. Die spezifischen Aktivitäten des Materials entsprechen in etwa jenen der uferfernen Position AN4. Im Gegensatz zur uferfernen Position, zeigt die Tiefenverteilung von  $^{137}\text{Cs}$  aus dem Kernwaffentestfallout kein deutliches Maximum. Das Material weist in einem Tiefenbereich von ca. 22 cm bis 30 cm eine weitgehende Konstanz der spezifischen

Aktivität auf. Unterhalb dieses Bereiches sind niedrige spezifische  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten von 3 Bq/kg bis 10 Bq/kg noch in eine Tiefe bis 51 cm meßbar.

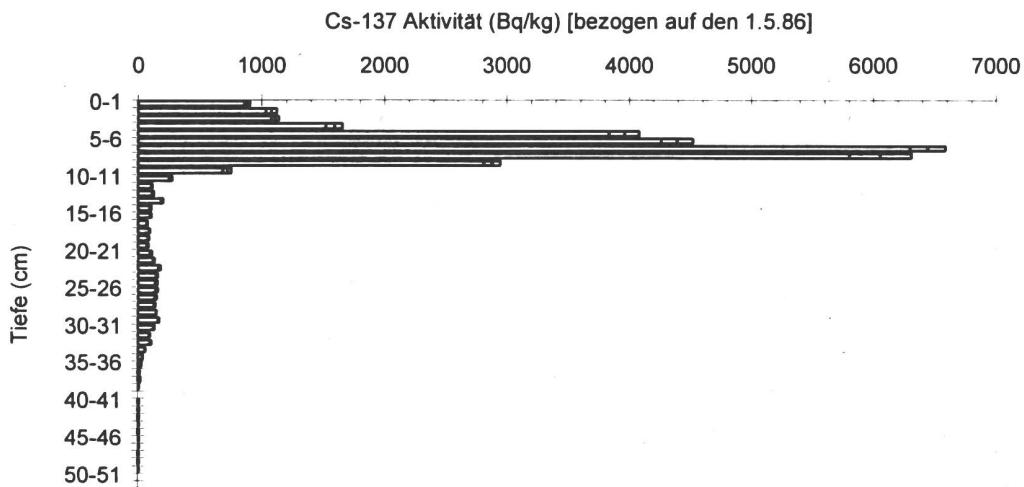


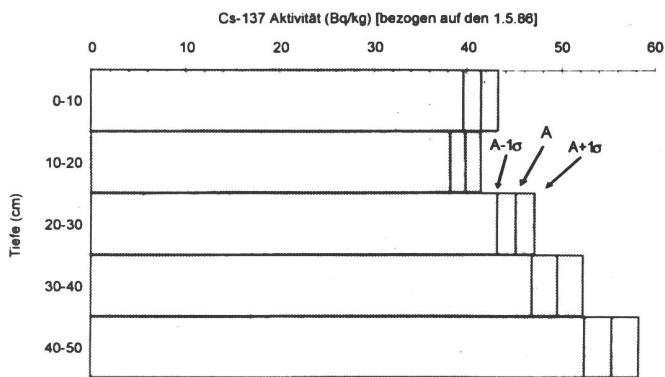
Abb. 7:  $^{137}\text{Cs}$ -Tiefenverteilung an der Pos. AN3 (vor Mündung Vedeggio). Tiefe 20 m.

Die Cs-Tiefenverläufe im Sediment aller im Jahre 1995 entnommenen Proben zeigen voneinander getrennte Maxima, die dem Tschernobyl-Fallout und den atmosphärischen Kernwaffentests zugeordnet werden können. Im Bereich des Kernwaffentest-Fallouts ist bei mehreren Positionen ein weiteres Maximum zu erkennen. Dies entspricht dem tatsächlichen zeitlichen Verlauf der Cs-Konzentration in der Atmosphäre, die im Jahre 1958 ein Zwischenmaximum erreichte [6]. Zur Datierung der Sedimente steht somit ein weiterer Zeitmarker zur Verfügung. Die spezifische  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität des Materials war, wie bei den 1994 untersuchten Kernen, bis zu einem Faktor 10 höher als im Bodensee. An den Cs-Tiefenverteilungen zeigt sich, daß durch den Cassarate grobes Material mit geringerer spezifischer Aktivität in südöstlicher Richtung eingetragen wird. An der Position LU4 unterscheidet sich der Cs-Tiefenverlauf durch eine niedrigere spezifische Aktivität und durch eine höhere Depositionsraten von den übrigen Profilen im Mündungsbereich des Cassarate. Daraus läßt sich erkennen, daß der Zufluß in diese Richtung einströmt. Im Gegensatz zum Nordbecken, kommt im gesamten Agno-Becken Material mit einer ähnlichen spezifischen Aktivität zur Sedimentation. Die  $^{137}\text{Cs}$ -Inventare steigen dort mit den Depositionsraten an.

#### $^{137}\text{Cs}$ im Flußsand des Cassarate

Als Beprobungsposition wurde eine, durch einen Fels von der direkten Flußströmung geschützte Sandbank gewählt. Durch die verlangsame Strömung setzte sich hinter dem Fels mehr Material ab als im direkten Flußlauf. Wegen des steinigen Untergrunds war die Länge des entnommenen Sedimentkerns aber auch dort auf ca. 50 cm begrenzt. Das grobkörnige Material wies eine spezifische  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität von 40 Bq/kg bis 50 Bq/kg auf. Es sind keine Maxima erkennbar, sondern mit zunehmender Sedimenttiefe steigt die spezifische Aktivität leicht an.

Die Sedimentierung des Flußandes des Cassarate ist wesentlich durch die lokalen Strömungsverhältnisse beeinflußt, die auch durch Niederschläge und daraus folgende Hoch- und Niedrigwasser bestimmt werden. Es ist deshalb nicht zu erwarten, daß der zeitlich begrenzte Eintrag aus Tschernobyl in der Sedimentierung erkennbar ist. Die spezifische  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität liegt um einen Faktor 100 niedriger als jene von Sediment aus dem Lugarnersee. Durch den leichten Anstieg der Cs-Konzentration mit zunehmender Sedimenttiefe, unterscheidet sich der Cs-Tiefenverlauf deutlich von dem des Seesediments. Vorstellbar wäre eine ursprünglich gleichmäßige Verteilung und anschließende Auswaschung des feinkörnigen und starker Cs-beladenen Materials nach unten bzw. in den Lugarnersee.



**Abb. 8:**  $^{137}\text{Cs}$  im Flußsand des Cassarate. Entnahmestelle Ferrera bei Canobbio, ca. 3,5 km vor der Flußmündung bei Lugano.

### Inventare und Depositionsraten

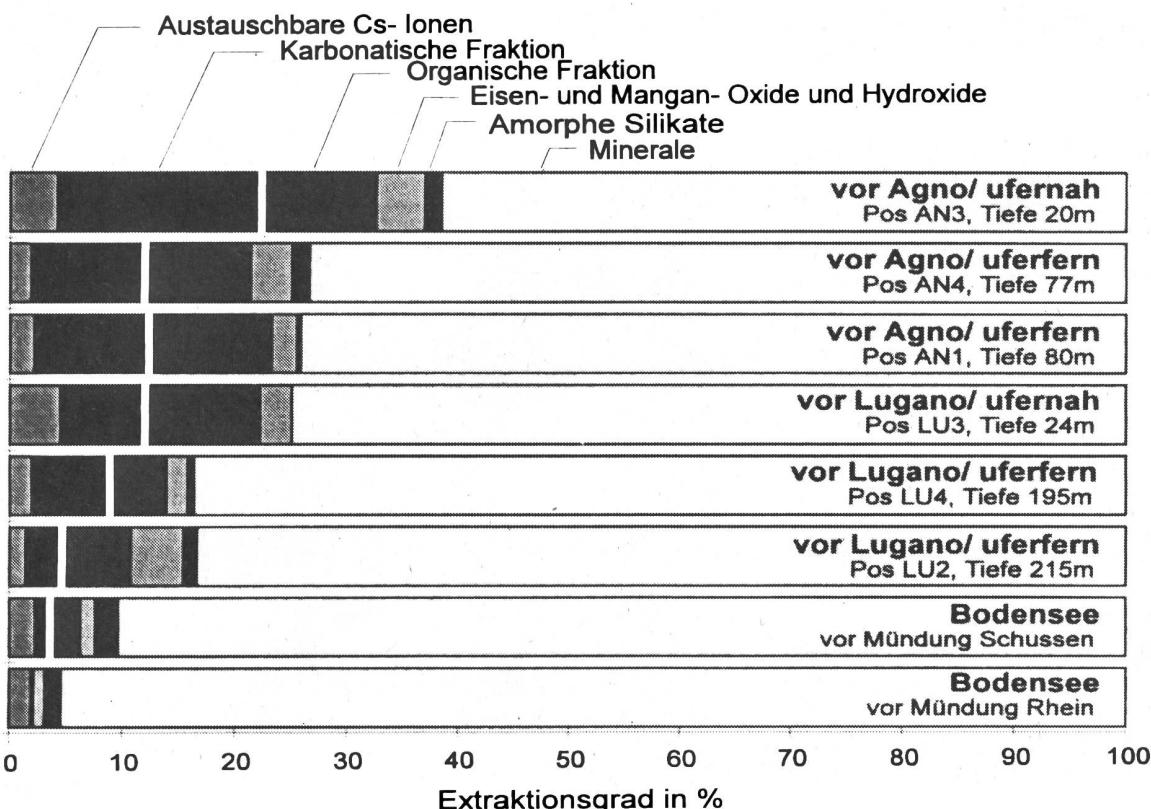
Alle Sedimentkerne waren lang genug, um das gesamte  $^{137}\text{Cs}$ -Inventar zu erfassen. Die Inventare aus dem Tschernobyl-Fallout liegen für die ufernahen Sedimente mit 106 kBq/m<sup>2</sup> bzw. 72 kBq/m<sup>2</sup> deutlich über dem im Mai 1986 direkt eingetragenen Inventar von 22 kBq/m<sup>2</sup> /7/. Bei den uferfernen Sedimenten nähern sich die Inventare an den Wert des direkten Eintrages an und liegen bei 22 kBq/m<sup>2</sup> bzw. 54 kBq/m<sup>2</sup>. Dies entspricht in etwa den 1994 ermittelten Ergebnissen /1/. Zusammen mit der hohen spezifischen Aktivität in den obersten Sedimentschichten bis 1000 Bq/kg, bestätigt dies den immer noch anhaltenden Eintrag von kontaminiertem Material durch die Zuflüsse.

**Tab. 2:** Inventare und Depositionsraten an den Beprobungspositionen im Lugarnersee. Die Tschernobyl-Inventare sind auf den 1.5.1986 und die Kernwaffentest-Inventare auf den 1.7.1963 zerfallskorrigiert. Die Fehler liegen bei etwa 5 %.

Position		AN3	AN4	LU3	LU4
Tschernobylcäsium	[kBq/m <sup>2</sup> ]	105,8	21,7	72,4	53,7
Kernwaffencäsium	[kBq/m <sup>2</sup> ]	19,4	12,4	36,9	13,1
Dep.-Rate 1986-95	[g/(cm <sup>2</sup> a)]	0,4	0,09	0,21	0,98
Dep.-Rate 1963-86	[g/(cm <sup>2</sup> a)]	0,28	0,14	0,31	0,68

### 3.9.6. Bindung von Radiocäsium an das Sediment

Auf die Sedimente aller 4 Beprobungspositionen wurde ein modifiziertes 5-stufiges Extraktionsverfahren nach Robbins /8/ angewandt. Aus dem Bereich des Maximums des Tschernobyl-Fallouts wurden jeweils ca. 100 g Feuchtsediment entnommen. Der Extraktionsgrad berechnet sich aus dem Verhältnis der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität der Überstände nach den einzelnen Extraktionsschritten zur Ausgangsaktivität des Sediments. Dabei sind Fehler bezüglich Materialverlust und Vollständigkeit der Extraktion schwer zu berücksichtigen, so daß nur relative Aussagen möglich sind. In den Proben aus dem Agno-Becken sind 62 % bzw. 73 % des Radiocäsiums durch die Extraktionsschritte nicht aus dem Sediment freigesetzt worden. Sie sind somit an die mineralische Fraktion des Sedimentes gebunden, die quasi-irreversible Bindungsplätze für Cs-Ionen anbietet /9/. In den Proben aus dem Nordbecken befinden sich 75 % bzw. 84 % des Radiocäsiums in dieser Fraktion (s. Abb. 9).



**Abb. 9:** Verteilung von  $^{137}\text{Cs}$  auf die einzelnen Fraktionen des Sediments in Lugarnersee und Bodensee /1/, /10/.

Betrachtet man den Anteil, des aus dem Sediment extrahierbaren  $^{137}\text{Cs}$  als Maß für dessen Rücklösbarkeit, so ergibt sich für die ufernahen Positionen aus dem Flachwasserbereich ein höheres Rücklösepotential als für die uferfernen. Weiterhin ist das Rücklösepotential im Agno-Becken höher als im Nordbecken. Insgesamt bestätigte sich der Befund von 1994, eines gegenüber dem Bodensee deutlich erhöhten Rücklösepotentials von  $^{137}\text{Cs}$ . Dort konnten durch Extraktionsversuche lediglich bis zu 10 % dieses Radionuklids freigesetzt werden /10/.

### 3.9.7. Zusammenfassung und Ausblick

Im Jahr 1995 wurden Wasserproben aus dem Lugarnersee und aus seinen Zuflüssen, Cassarate und Vedeggio, entnommen. Die spezifische  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität im Flußwasser lag bei 4 mBq/l. Im Agno-Becken des Lugarnersees zeigte sich für oberflächen- und grundnahe Wasser kein Unterschied in der Cs-Konzentration. Im Tiefenbecken vor Lugano wurde in 195 m Tiefe eine gegenüber dem Oberflächenwasser um den Faktor 10 erhöhte spezifische Aktivität gemessen. Mit Werten von 3 mBq/l bis 34 mBq/l liegt die  $^{137}\text{Cs}$  Kontamination des Seewassers auch 1995 noch deutlich über der des Bodensees. Die hohe grundnahe Aktivitätskonzentration im Lugarnersee lässt sich durch Rücklösung aus dem Sediment bzw. durch Aufkonzentration im Tiefenwasser des Sees deuten.

Die Messung der Kationenkonzentrationen im Seewasser zeigte, daß  $\text{NH}_4^+$  wichtigster Konkurrent von  $\text{Cs}^+$  auf selektive Bindungsplätze im Sediment ist. Im Bodensee ist die  $\text{NH}_4^+$  Konzentration niedriger, so daß dort  $\text{K}^+$  Hauptaustauschpartner von  $\text{Cs}^+$  ist.

Zusätzlich zu den bereits 1994 beprobten Positionen, wurden 1995 an 4 weiteren Positionen im Mündungsbereich der Zuflüsse Cassarate und Vedeggio Sedimentproben entnommen. Alle Sedimentkerne waren ausreichend lang, um das gesamte Cäsium aus dem Tschernobyl-Fallout und aus den atmosphärischen

Kernwaffentests zu erfassen. Die entsprechenden Maxima sind deutlich voneinander getrennt. Der **Kernwaffentest-Fallout** führte zu Haupt- und Nebenmaxima, die sich den Jahren 1963 und 1958 zuordnen lassen. Der bis heute anhaltende Eintrag von kontaminiertem Material durch die Zuflüsse Cassarate und Vedeggio konnte bestätigt werden. Aus der horizontalen Verteilung von <sup>137</sup>Cs im Sediment des Nordbeckens vor Lugano, lässt sich die Einströmrichtung des Cassarate erkennen.

Extraktionsversuche von <sup>137</sup>Cs aus dem Sediment, ergaben für ufernahe Positionen ein etwas höheres Rücklösepotential als für uferferne Positionen. Weiterhin ist das Rücklösepotential im Agno-Becken etwas höher als im Nordbecken. Im Sediment des Lagonersees liegt das Rücklösepotential damit um einen Faktor 2-8 über dem des Bodensee-Sediments.

In einem Folgeprojekt sollen die Untersuchungen auf weitere Becken des Lagonersees ausgedehnt werden. Sowohl im Nordbecken als auch an den neuen Beprobungspositionen, soll insbesondere die Cs-Konzentration im Porenwasser, K<sub>d</sub>-Werte und Kationenaustauschkapazität ermittelt werden. Dieses sind wichtige Parameter für eine Modellierung der Vorgänge in der Grenzschicht Sediment-Wasser.

Weiterhin soll die regelmäßige Entnahme von Wasserproben aus den Zuflüssen Informationen über eine Abhängigkeit der Cs-Einschwemmung von Jahreszeit und Witterungsbedingungen liefern.

### 3.9.8. Danksagung

Unser Dank gilt Dr. Alberto Barbieri und dem Laboratorio Studi Ambientali, Sezione Protezione Aria e Acque, 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 112895 der GR, AC-Laboratorium Spiez teilfinanziert. Es handelt sich um eine Zusammenfassung aus dem entsprechenden Jahresbericht /11/.

### 3.9.9. Literaturverzeichnis

- /1/ G. ZIBOLD, E. KLEMT, R. MILLER, T. KLENK: Tiefenverteilung und Transfer Boden-Pflanze von Cäsium-Radionukliden in Waldgebieten im südlichen Voralpengebiet und Vergleich zum nördlichen Voralpengebiet und Einschwemmung von Cäsium-Radionukliden in den Lagoner See und Vergleich zum Bodensee. Abschlußbericht Vertrag 108685, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, Weingarten, 1994.  
T. KLENK, E. KLEMT, R. MILLER, G. ZIBOLD, M. BURGER, A. JAKOB: Einschwemmung von Cäsium-Radionukliden in den Lagoner See und Vergleich zum Bodensee, Bundesamt für Gesundheitswesen (CH), Jahresbericht 1994, Fribourg, 1995, B.3.10
- /2/ F. NIESSEN: Sedimentologische, geophysikalische und geochemische Untersuchungen zur Entstehung und Ablagerungsgeschichte des Lagoner Sees, Zürich, 1987.
- /3/ S. KAMINSKI: noch nicht veröffentlichte Daten
- /4/ E. VALCKE: The behaviour dynamics of Radiocesium and Radiostrontium in soils rich in organic matter, Dissertation, Faculty of Agronomy, Katholieke Universiteit Leuven, 1993.
- /5/ A. KONOPLEV: Institute of Experimental Meteorology, Obninsk, Russia, Persönliche Mitteilung, Weingarten, 1995.

- /6/ H. BACHHUBER, K. BUNZL, W. SCHIMMACK, I GANS: The migration of Cs-137 and Sr-90 in multilayered soils: results from batch, column and fallout, Nuclear Technology 59, p. 291-301, 1982.
- /7/ J. CZARNECKI, F. CARTIER, P. HONEGGER, A ZURKINDEN: Bodenverstrahlung in der Schweiz aufgrund des Reaktorunfalls in Chernobyl, in: Radioaktivitätsmessungen in der Schweiz nach Tschemnobyl und ihre Wissenschaftliche Interpretation, Band I, Universität Bern, 1986.
- /8/ J.A. ROBBINS, 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.
- /9/ R.N.J. COMANS, M. HALLER, P. DE PRETER: Sorption of cesium on illite: Non-equilibrium behaviour and reversibility. Geochim. Cosmochim. Acta 55, p. 433-440, 1991.
- /10/ T. KLENK: Horizontale und vertikale Verteilung von Cäsium-Radionukliden in den Sedimenten des Bodensee-Obersees, Diplomarbeit, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, 1993.
- /11/ G. ZIBOLD, E. KLEMT, R. MILLER, T. KLENK: Vergleichende Untersuchungen über die Verteilung von Cäsium-Radionukliden in Waldgebieten im südlichen und nördlichen Voralpengebiet und Vergleichende Untersuchungen der Einschwemmung von Cäsium-Radionukliden in den Lugarnersee und den Bodensee. Abschlußbericht Vertrag 112895, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, Weingarten, 1995.

## 3.10. Radioaktivität in den Lebensmitteln

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

- 1) Sektion Überwachung der Radioaktivität, BAG, Ch. du Musée 3, 1700 FRIBOURG
- 2) Kantonales Laboratorium Aargau, Kunsthauseweg 24, 5000 AARAU
- 3) Kantonales Laboratorium Bern, Muesmaltstr. 19, 3000 BERN 9

### 3.10.1. Zusammenfassung

An der Radioaktivitätsüberwachung der Lebensmittel sind die kantonalen Laboratorien sowie Messstellen des Bundes beteiligt. In den Hauptnahrungsmitteln war 1995 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 1995 im Landesdurchschnitt Strahlendosen von einigen Tausendsteln mSv.

### 3.10.2. Messprogramm

Die Radioaktivität der Lebensmittel wird in Zusammenarbeit zwischen Kantonalen Laboratorien und Bundesstellen (BVET, IRA, PSI, AC-Lab, SUER/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 z.B. auch Fleisch, seit dem Reaktorunfall von Tschernobyl auch Wildfleisch, Wildpilze sowie gezielt bestimmte importierte Lebensmittel (z.B. Wildfleisch).

Für die Ergebnisse der Untersuchung von Mineralwässeren wird auf Kap. 3.8. verwiesen.

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

### 3.10.3. Ergebnisse der Überwachung; gültige Toleranz- und Grenzwerte

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. Für Radionuklide in Lebensmittel gelten gemäss Verordnung über Fremd- und Inhaltsstoffe (FIV) Toleranzwerte und Grenzwerte (vgl. Kap. 1.1.). Bei Wildfleisch und Wildpilze gilt für Caesiumisotope ein Toleranzwert von 600 Bq/kg, sowie ein Grenzwert von 1250 Bq/kg.

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

Milchproben werden in der Regel als Milchpulver gemessen und durch Multiplikation mit einem Faktor 8.1 auf Frischmilch umgerechnet (Trockensubstanzgehalt der Milch: 12.3 Gew.-%). Gesamthaft war die künstliche Radioaktivität in der Milch 1995 ähnlich tief wie im Vorjahr, wie aus dem Überblick in Tab. 1 zu entnehmen ist, auch wenn drei Proben knapp über dem Toleranzwert für Caesiumisotope lagen (siehe Fig. 1). Von den

Bündner Südtälern sind nur die Proben aus dem Misox und dem Bergell (siehe Fig. 3) ähnlich erhöht wie jene aus dem Tessin (siehe Fig. 2), während das Puschlav und das Calancatal nicht von den Werten der Alpennordseite abweichen. Bezuglich Strontium-90, siehe auch Kap. 3.12 (siehe Fig. 4).

Fig. 1: Cs-137 in der Kuhmilch Alpennordseite

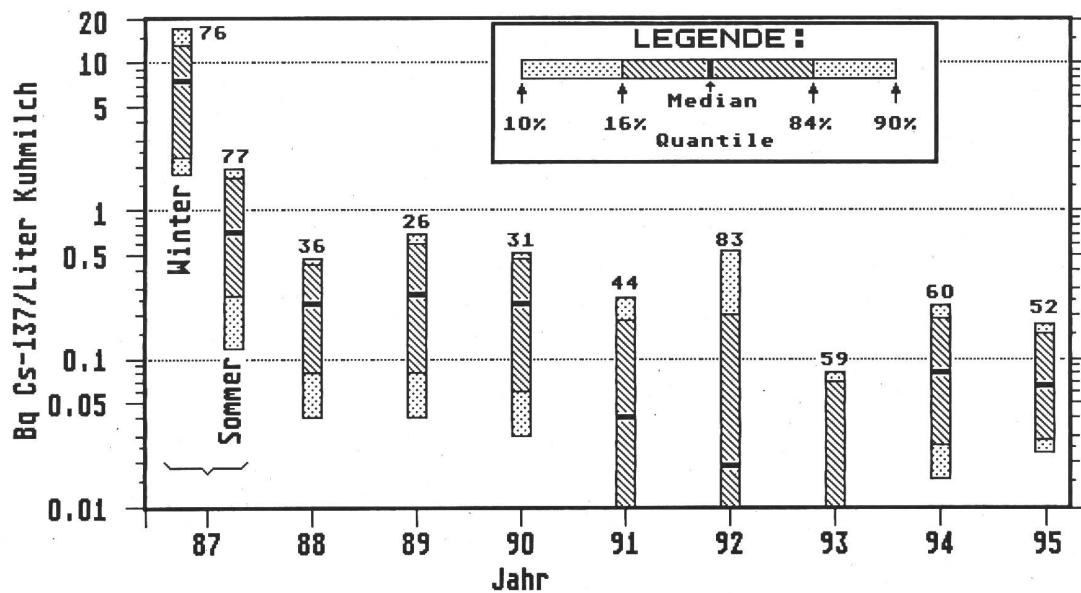
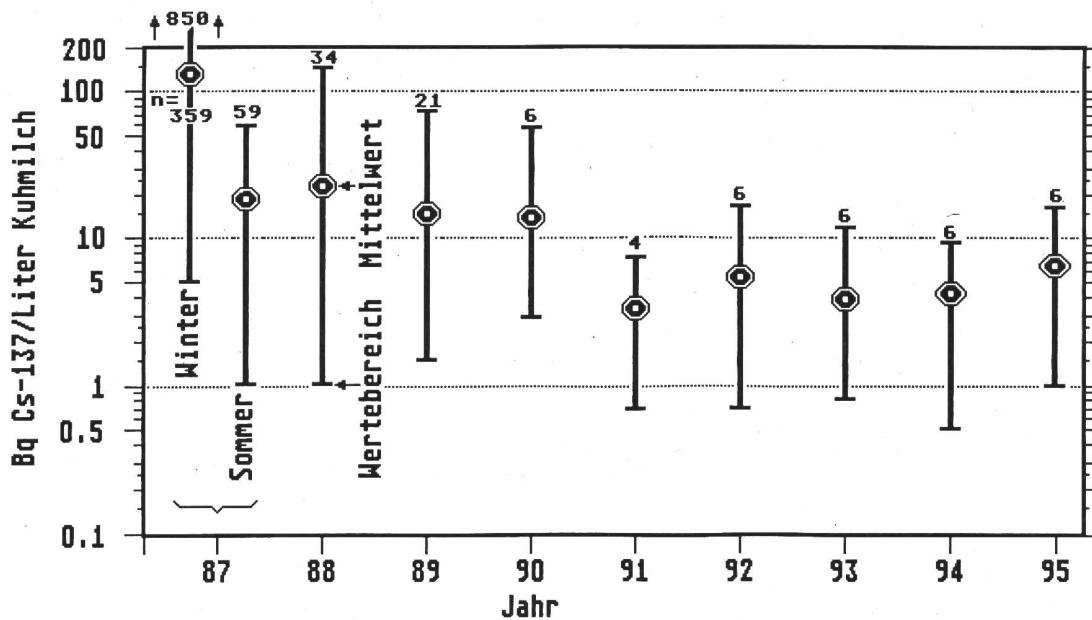


Fig. 2: Cs-137 in der Kuhmilch Tessin



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 der Milch, 1995

Region	Bq/Liter Caesium-137				Bq/Liter Strontium-90			
	n	Min	Mittelwert	Max	n	Min	Mittelwert	Max
Alpennordseite	52	0.023 <sup>1)</sup>	0.065 <sup>2)</sup>	0.17 <sup>3)</sup>	29	0.03	0.074	0.14
Mürren/BE	2	--	--	< 0.45	2	0.12	--	0.15
Tessin	6	1.0	6.9	17.0	3	0.21	0.38	0.49
Misox, Bergell	34	< 2	4.1	17.0	--	--	--	--
Davos/GR <sup>4)</sup>	2	--	--	0.3	2	0.27	--	0.44

1) 10% Quantil; 2) Median; 3) 90% Quantil; 4) nur Proben aus 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) sowie in der Umgebung der Kernanlagen. Die vierzehn 1995 untersuchten Proben ergaben alle weniger als 0.6 Bq/kg Caesium-137 bzw. Bq/kg Caesium-134 sowie zwischen 0.2 und 0.5 Bq/kg Strontium-90 (siehe auch Kap. 3.12.).

Die Konzentration des natürlichen Kalium-40 im Getreide lag im Durchschnitt bei  $141 \pm 6$  Bq/kg, entsprechend einem gesamten Kaliumgehalt von rund 4 g/kg.

24 durch das Kantonale Laboratorium GR untersuchte Proben von Schinken, Speck, Coppa, Salami und Pancetta ergaben sowohl für Caesium-137 wie auch für Caesium-134 durchwegs weniger als 2 Bq/kg. Weitere 8 Proben von Rind- und Schweinefleisch wurden vom Kantonale Laboratorium Aargau untersucht und ergaben für Caesium-134 und Caesium-137 je weniger als 1 Bq/kg.

Fig. 3: Cs-137 in der Kuhmilch Misox und Bergell / GR

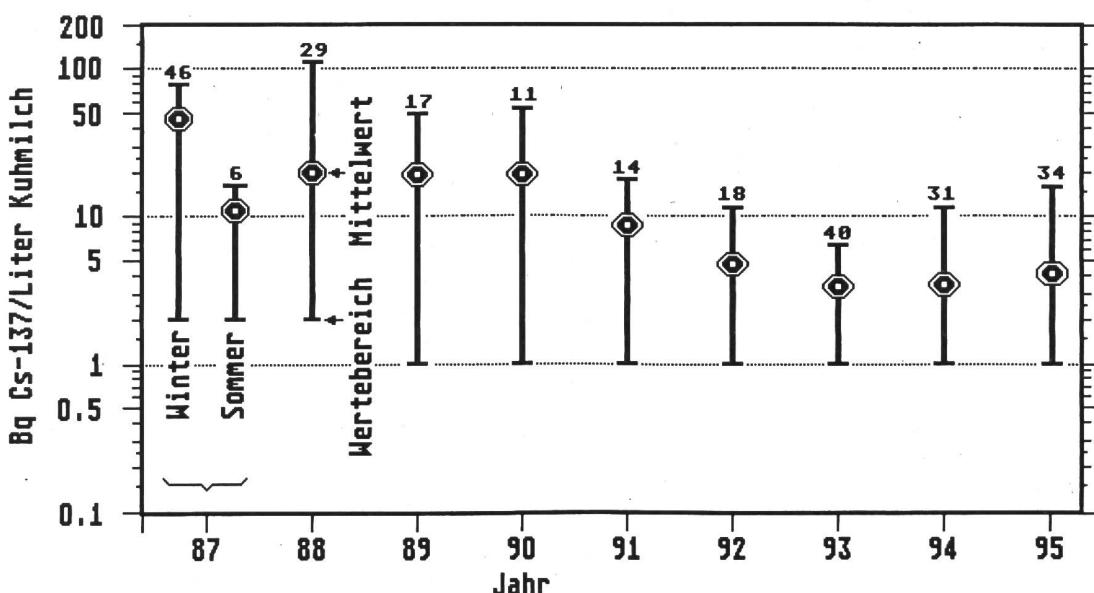
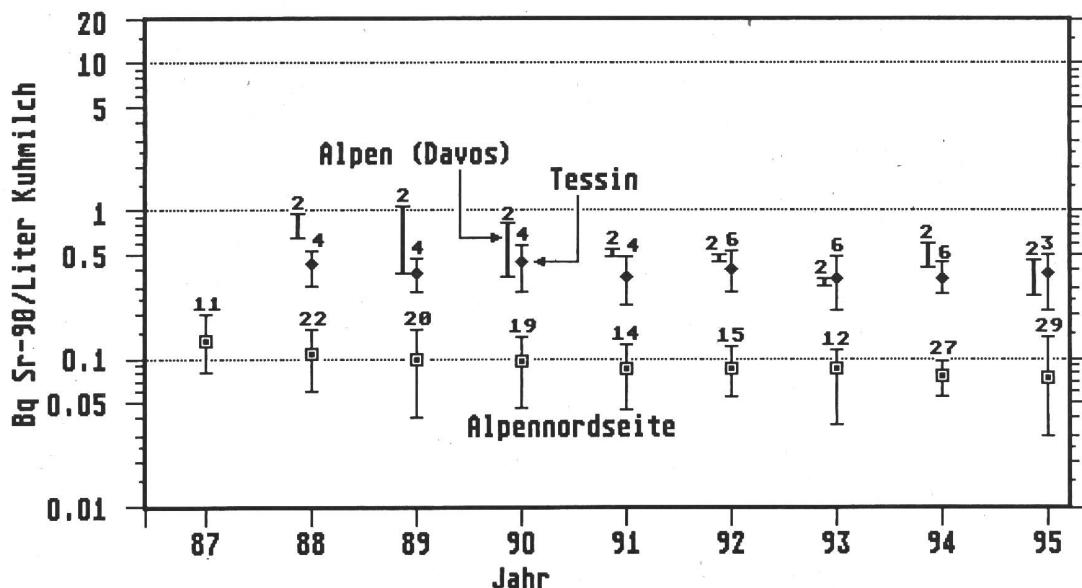


Fig. 4: Sr-90 in der Kuhmilch Alpennordseite



b) Wild

1995 wurden von den Grenztierärzten im Auftrag des Bundesamtes für Veterinärwesen (BVET; Dr. J. Schluep) an der Grenze 47 Proben von importiertem Wild für die Radioaktivitätsmessung erhoben und durch das kantonale Laboratorium BS und das Labor Dr. Matt in Schaan/FL untersucht; 10 weitere Proben wurden durch das kantonale Laboratorium ZH gemessen. Sie ergaben die Häufigkeitsverteilung gemäss Tabelle 2, wobei, wie schon 1994, 80 % der Werte unter 100 Bq/kg lagen. Keine der untersuchten Proben lag über dem Toleranzwert von 600 Bq/kg für Caesium-134 und Caesium-137 zusammen. Die Proben stammten aus: Österreich (30), Schweden (8), Polen (5), Deutschland (3), Lettland (2), Neuseeland (4), Ungarn, Kanada, Frankreich, Holland und China (je 1).

Tab: 2: Caesium-134 und -137 in importiertem Wildfleisch in Bq/kg, 1995

Bq/kg	< 10	10 - 100	100 - 600	> 600
Tierart	Anzahl	Anzahl	Anzahl	Anzahl
Reh	11	17	2	0
Hirsch	8	0	1	0
Gemse	1	4	4	0
Wildschwein	1	0	0	0
Hase	2	0	0	0
Ren	0	1	5	0
Total	23	22	12	0

Vom Kantonalen Laboratorium Graubünden wurden 28 Proben von einheimischem Wild untersucht. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3 enthalten. Dabei zeigte eine Gemseprobe aus dem Bergell einen Caesium-137-Wert von 378 Bq/kg. Keine der untersuchten Proben lag über dem Toleranzwert von 600 Bq/kg für Caesium-134 und Caesium-137 zusammen.

Tab: 3: Caesium-134 und -137 in Wildfleisch aus Graubünden 1995, in Bq/kg.

Bq/kg	< 10	10 - 100	100 - 600	> 600
Tierart	Anzahl	Anzahl	Anzahl	Anzahl
Reh	7	3	0	0
Hirsch	7	2	0	0
Gemse	5	3	1	0
Total	19	8	1	0

Bei einer durchschnittlichen Konsumrate von Wildfleisch in der Schweiz von höchstens 1 kg/Jahr ist der Dosisbeitrag durch Wildkonsum unbedeutend.

### c) Wildpilze

1995 wurden insgesamt 107 Proben von einheimischen Wildpilzen auf Radioaktivität untersucht (siehe Fig. 5).

Tab. 4: Caesium-137 in einheimischen Wildpilzen, 1995 (bez. auf Frischgewicht)

Pilzart	Region	n	$\geq$ TW	$\geq$ GW	Mittel Bq/kg	Minimum Bq/kg	Maximum Bq/kg
Maronenröhrlinge	Alpennordseite <sup>1)</sup>	11	1	0	266	22	616
Zigeunerpilze	Alpennordseite <sup>1)</sup>	11	4	2	564	179	1150
andere Röhrlinge	Alpennordseite <sup>1)</sup>	8	0	0	110	4	325
übrige Pilze	Alpennordseite <sup>1)</sup>	36	0	0	52	< 0.2	483
Maronenröhrlinge	Tessin	2	2	1	---	625	1610
andere Röhrlinge	Tessin	9	0	0	233	22	445
Schleierlinge	Tessin	4	1	1	970	55	3500
Ritterlinge	Tessin	10	1	1	224	6	1390
Stoppelpilze	Tessin	2	2	2	---	1521	5510
Pfifferlinge	Tessin	1	1	0	736	---	---
übrige Pilze	Tessin	13	0	0	43	4	243

1) Proben aus den Kantonen FR, BE, ZG, LU, ZH, AG.

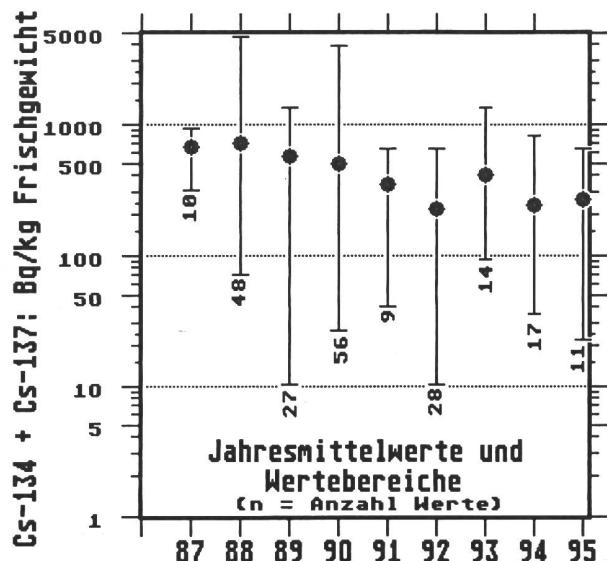
\* TW = Toleranzwert: 600 Bq/kg für Caesium-134 und Caesium-137 zusammen.

\*\*) GW = Grenzwert: 1250 Bq/kg für Caesium-134 und Caesium-137 zusammen.

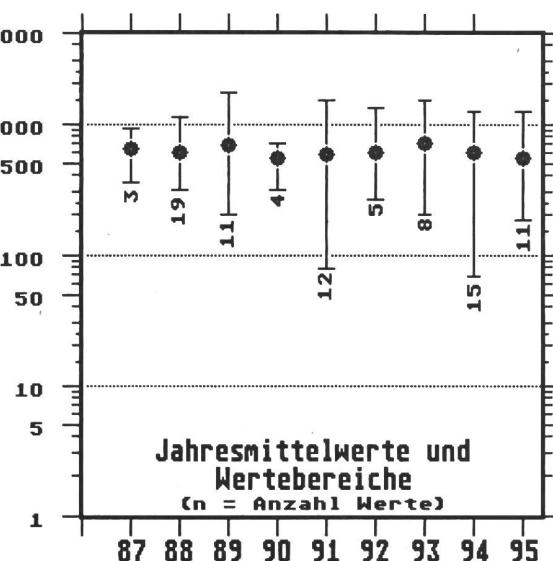
Vom Caesium-137-Gehalte der Pilze stammt ein teilweise erheblicher Anteil noch von den Kernwaffenausfall der 50er- bis 70er-Jahre. Bei den meistbelasteten Maronenröhrlingen und Zigeunerpilzen ist immer noch kein eindeutiger Rückgang der Aktivität feststellbar.

Von den Kantonalen Laboratorien VD (3), BE (37), GE (4) und ZH (17) wurde Proben importierter Pilze untersucht. Sie ergaben:

Fig. 5: Caesium in Maronenröhrlingen der Alpennordseite



Caesium in Zigeunerpilzen der Alpennordseite



Tab. 5: Caesium-137 in importieren Pilzen, 1995 (bez. auf Frischgewicht)

Pilzart	n	> TW	> GW	Mittel Bq/kg	Minimum Bq/kg	Maximum Bq/kg
Maronenröhrlinge	2	0	0	---	181	183
Zigeunerpilze	1	1	1	1167	---	---
Pfifferlinge	14	0	0	141	4	515
Morcheln	10	0	0	3	1	8
Steinpilze	11	0	0	48	1	130
Champignons	8	0	0	---	< 1	< 4
übrige Pilze	15	0	0	31	< 1	330

\*) TW = Toleranzwert: 600 Bq/kg für Caesium-134 und Caesium-137 zusammen.

\*\*) GW = Grenzwert: 1250 Bq/kg für Caesium-134 und Caesium-137 zusammen.

Berücksichtigt man die geringen Konsumraten von frischen Wildpilzen, dann sind die Strahlendosen durch Pilzkonsum unbedeutend. Hier sei auch auf eine Empfehlung des Kantonalen Labors Aargau verwiesen, pro Person und pro Woche nicht mehr als 250 g (Frischgewicht) Wildpilze zu konsumieren.

#### d) Fische aus dem Langensee

1995 wurden, in Zusammenarbeit mit dem Kantonsveterinär und dem Kantonalen Laboratorium des Tessins 14 Proben verschiedener Fische aus dem Langensee auf Radioaktivität untersucht (Proben erhoben 1993). Sie ergaben für Caesium-134 durchwegs weniger als 3 Bq/kg; beim Caesium-137 lagen die Werte zwischen 4 und 24 Bq/kg, mit einem Mittelwert von 11 Bq/kg. Die Werte sind rund ein Faktor 3 tiefer, als vergleichbare Messwerte aus dem stärker belasteten Lugarnersee (siehe Bericht 1994, Kap. 3.11.).

e) **Weitere Lebensmittel und diverse Proben**

Im Berichtsjahr wurden Proben von importierten Mineralwässern auf natürliche Alpha-Strahler untersucht (siehe Kap. 3.8.), um die Einhaltung des Grenzwertes gemäss FIV zu überprüfen. Bei dieser Serie handelt es sich um die am häufigsten verkauften, importierten Mineralwässer in der Schweiz. Sie ergaben keinen Wert über dem entsprechenden Grenzwert für  $\alpha$ -Strahler.

11 Proben von Schokolade, untersucht am Kantonalen Laboratorium Aargau ergaben für Caesium-134 und Caesium-137 je weniger als 2 Bq/kg. Weitere, meist importierte Lebensmittel wurden vom Kantonalen Laboratorium GE untersucht. Sie ergaben für Caesium-137 die folgenden Messwerte in Bq/kg (in Klammern: Anzahl Proben): natürliche Essenzen (4): <1; Lebensmittel-Aromen (3): < 5; aromatische Kräuter (7): 3 bis 14; Schokolade (3): < 6; Tabak (2): < 6; Milchpulver aus Finnland (5): 26 bis 50.

**3.10.4. Bewertung und Interpretation**

Die Bestimmung der Strahlenexposition der Bevölkerung durch Caesium-137 und Caesium-134 in Lebensmitteln ist nur als grobe Schätzung möglich, da die Aktivitätsmesswerte heute meist unter der Messgrenze liegen 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) 1995, wie im Vorjahr, bei 0.002-0.003 mSv pro Jahr. Die Strahlenexposition durch Strontium-90 in der Nahrung (siehe auch Kap. 3.12.) dürfte 1995 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. Darin inbegriffen ist der Beitrag durch Plutonium-239 und Plutonium-240 von 0.000025 mSv/Jahr.

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 von, Uran, Radium und Thorium (0.04 mSv) bzw. Blei-210 und Polonium-210 (0.12 mSv) sowie von den kosmogenen Radionukliden H-3 (Tritium), Beryllium-7, Kohlenstoff-14, Natrium-22 (0.015 mSv) und vom Rubidium-87 (0.006 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 zum Vergleich 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 1995 sowie den internen Berichten der übrigen Laboratorien entnommen. All' diesen Stellen sei für das Überlassen der Daten und die wertvolle Mitarbeit bestens gedankt.

## 3.11. Mesures de strontium-90 dans le sol, l'herbe, le lait, le froment, les vertèbres et les dents

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

Institut de radiophysique appliquée  
Centre Universitaire, 1015 LAUSANNE

### 3.11.1. Résumé

En 1995, 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. En particulier, on n'a pas encore constaté d'augmentation significative de l'activité du strontium-90 dans les dents de lait d'enfants nés après 1986. En plaine, on a mesuré, en 1995, 0,7 à 6,4 Bq/kg de strontium-90 dans le sol, 0,7 à 6,5 Bq/kg dans l'herbe, 0,03 à 0,39 Bq/l dans le lait et 0,28 à 0,50 Bq/kg dans le blé.

### 3.11.2. 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.

Les déterminations de strontium-90 ont porté, en 1995, 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), Rodi (TI), Sessa (TI) et Sissach (BL), ainsi qu'aux points d'altitude suivants: Davos (GR), Mürren (BE) et Rasa (TI). Des échantillons de lait ont été collectés à 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, 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 respectifs.

### 3.11.3. Résultats de la surveillance

A titre de comparaison, les résultats de la surveillance du strontium-90 en 1994 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. Dans le lait de Mühlberg, 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 1995 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.

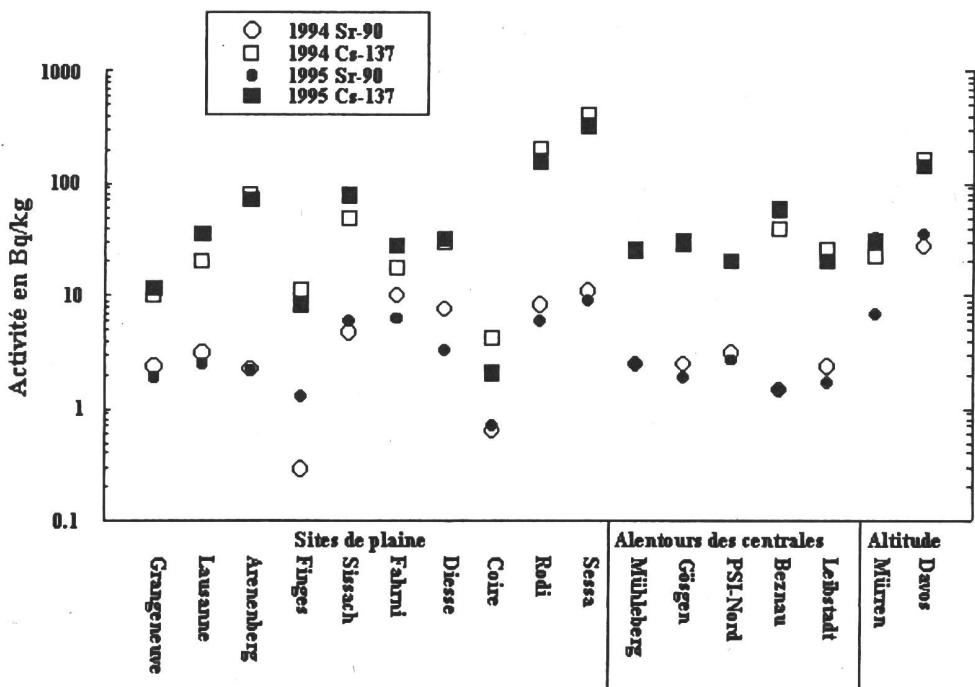
Les résultats de mesure restent comparables à ceux des années précédentes. Les sites en altitude présentent des activités plus élevées qu'en plaine. Comme précédemment, on constate d'importantes fluctuations de l'activité du strontium-90 dans l'herbe d'une saison à l'autre, particulièrement à Davos et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

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

	1994	1995
Sites proches des centrales nucléaires et du PSI	1,5 - 3,2	1,5 - 2,8
Sites de plaine	0,3 - 11,2	0,7 - 6,4
Sites en altitude		
Davos (GR)	28,9 ± 0,7	35,2 ± 0,7
Mürren (BE)	31,9 ± 2,2	7,0 ± 0,6

\* matière sèche

Figure 1: Concentration radioactive du strontium-90 et du césium-137 dans les sols en 1994 et 1995



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 dans les sols du strontium plus grande que celle du césium, ainsi que par l'apport dû à l'accident de Tchernobyl. Comme le montre la figure 1, l'activité en strontium-90 et césium-137 du sol au voisinage des sites de centrales nucléaires ne diffère pas des autres sites de plaine (cf. également 3.13.4, fig. 1).

A Sessa, les activités en strontium-90 et en césium-137 dans l'herbe sont plus élevées que dans les autres sites de plaine, où l'activité du césium-137 reste en général en-dessous de la limite de détection.

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

	1994	1995
		1,5 - 5,2
Sites proches des centrales nucléaires et du PSI	1,2 - 7,5	1,5 - 5,2
Sites de plaine Exception: Sessa /TI	0,9 - 11,2 $26,8 \pm 0,5$	0,75 - 3,4 $15,4 \pm 0,3$
Sites en altitude Davos (GR) été automne Mürren (BE)	42,4 $\pm$ 0,5 15,3 $\pm$ 0,4 20,0 $\pm$ 1,4	8,0 $\pm$ 0,3 23,8 $\pm$ 0,5 12,9 $\pm$ 1,0

### **Froment**

Les activités en strontium-90 mesurées en 1995 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 0,28 et 0,50 Bq/kg (0,33 et 0,54 Bq/kg en 1994) et confirment les valeurs mesurées les années précédentes.

### **Lait**

Le tableau 3 présente les résultats des analyses de strontium-90 dans le lait, qui restent comparables aux valeurs mesurées les années précédentes. On ne constate aucune augmentation de l'activité en strontium-90 du lait dans l'environnement des centrales nucléaires.

A Sessa et Rodi, qui constituent des exceptions pour les sites en plaine, ainsi que dans les points en altitude de Davos et Mürren, les activités en strontium-90 du lait sont plus élevées et reflètent celles de l'herbe. 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)**

	1994	1995
Sites proches des centrales nucléaires et du PSI moyenne	0,04 - 0,10 0,07±0,01	0,06 - 0,09 0,07±0,01
Sites de plaine moyenne	0,03 - 0,16 0,07 ± 0,03 0,42 ± 0,02 0,87 ± 0,01	0,03 - 0,14 0,08 ± 0,02 0,40 ± 0,04 0,30 ± 0,01
Exception: Sessa (TI) Rodi (TI)		
Canton du Jura moyenne	0,07 - 0,12 0,09 ± 0,01	0,06 - 0,11 0,08 ± 0,02
Sites en altitude: Davos (GR) Mürren (BE) Rasa (TI)	été automne	0,60 ± 0,03 0,41 ± 0,02 0,06 ± 0,01 0,36 ± 0,02 0,37 ± 0,02
		0,44 ± 0,01 0,27 ± 0,02 0,12 ± 0,01 0,49 ± 0,02 0,49 ± 0,02

### **Vertèbres**

Le tableau 4 présente les résultats d'analyses de strontium-90 dans les vertèbres d'adultes décédés en 1995, ainsi qu'en 1994 à titre comparatif. La teneur moyenne de strontium dans les os correspond à une dose effective d'environ 0,002 mSv/année. A partir de 1995, les prélèvements de vertèbres ne se font plus qu'à Lausanne, Zürich, au Tessin et en Valais. Le nombre restreint d'échantillons collectés ne permet pas de mettre en évidence, chez les adultes, des différences significatives entre régions, sexes ou classes d'âge. Aucune augmentation de la concentration en strontium-90 dans les squelettes d'adultes en Suisse n'a pu être à ce jour mise en évidence

à la suite de l'accident de Tchernobyl et on peut d'ores et déjà estimer qu'aucun effet ne pourra être décelé, du fait de l'élimination du strontium par l'organisme.

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

Région	Année de décès			
	1994		1995	
Tessin	0,032 ± 0,007	[10]	0,019 ± 0,001	[7]
Lausanne	0,022 ± 0,005	[11]	0,021 ± 0,003	[8]
St. Gall	0,029 ± 0,005	[7]		
Valais	0,027 ± 0,007	[8]	0,020 ± 0,003	[6]
Bâle	0,023 ± 0,004	[9]		
Zürich	0,023 ± 0,006	[8]	0,018 ± 0,001	[7]
<b>Moyenne générale</b>	<b>0,026 ± 0,002</b>	<b>[53]</b>	<b>0,020 ± 0,001</b>	<b>[28]</b>

[ ] = 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 après les retombées des années soixante. Ce nivelingement peut s'expliquer par l'uniformisation de la production alimentaire sur l'ensemble du territoire suisse.

#### **Dents de lait**

A partir de 1995, les récoltes de dents effectuées jusqu'à présent à Lausanne et Zürich ont été étendues à d'autres villes des cantons respectifs afin d'accroître le nombre de dents pour mieux cerner l'effet des rejets de Tchernobyl. Le tableau 5 présente, pour chaque région, les moyennes des activités en strontium-90 des dents de lait collectées en 1995, comparées à celles de 1994. Aucun effet significatif dû à l'année de naissance, l'âge des enfants, ou la région de collection n'a été constaté. Les analyses de dents d'enfants nés à partir de 1986 sont encore trop peu nombreuses pour mettre en évidence une augmentation significative de l'activité en strontium-90 imputable à l'accident de Tchernobyl. Ces déterminations méritent d'être poursuivies ces prochaines années. En effet, le strontium-90 se fixe dans les couronnes de dents principalement dans les 6 mois qui précèdent et les 6 mois qui suivent la naissance de l'enfant. Comme on l'a constaté à la suite des essais nucléaires atmosphériques des années soixante, l'activité en strontium-90 des dents de lait constitue un indicateur de la contamination des denrées alimentaires à l'époque de la naissance de l'enfant.

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

Ville	Années de naissance	1994	Années de naissance	1995
Lausanne	1981-1985	0,047 ± 0,012	1)	1)
	1986	0,074 ± 0,011		
Tessin	1980-1985	0,052 ± 0,009	1980 - 1985	0,048 ± 0,015
	1986-1988	0,055 ± 0,008	1986 - 1988	0,051 ± 0,025
St. Gall	1980-1985	0,040 ± 0,009	1980 - 1985	0,037 ± 0,014
			1986 - 1989	0,040 ± 0,009
Valais	1979-1985	0,055 ± 0,016	1979 - 1985	0,056 ± 0,029
	1986-1988	0,049 ± 0,012	1986 - 1990	0,034 ± 0,007
Zürich	1981-1985	0,044 ± 0,012	1980 - 1985	0,035 ± 0,019
	1986	0,028 ± 0,003	1986 - 1987	0,060 ± 0,007
Moyennes	Avant 1986	0,048 ± 0,005	Avant 1986	0,045 ± 0,008
	Dès 1986	0,052 ± 0,017	Dès 1986	0,044 ± 0,010

1) récolte de dents insuffisante

### 3.11.4. Facteurs de transfert

Les facteurs de transfert sol-herbe, rapportés à la masse, et herbe-lait, rapportés à la teneur en calcium, déterminés sur les sites où des échantillons de sol, d'herbe et de lait ont été prélevés simultanément, sont du même ordre de grandeur que les années précédentes. Les valeurs moyennes des facteurs de transfert mesurés de 1990 à 1995 à Grangeneuve, Lausanne, Arenenberg, Finges, Coire et Davos sont de  $1,7 \pm 0,4$  pour le transfert sol-herbe et de  $0,19 \pm 0,05$  pour le transfert herbe-lait. On observe cependant de grandes fluctuations dans le temps ainsi qu'entre sites de prélèvement, imputables aux conditions météorologiques, aux types de sols, aux variétés d'herbe, à la saison, etc. [4].

### 3.11.5. Conclusions

Les déterminations de strontium-90 effectuées en Suisse en 1995 dans le sol, l'herbe, le lait, le blé et le squelette humain ont donné des résultats comparables à ceux mesurés depuis 1989, lorsque les effets de l'accident de Tchernobyl n'étaient plus perceptibles dans la chaîne alimentaire. De même, les activités en strontium-90 dans le sol, l'herbe et le lait les plus élevées ont été mesurées en montagne (Mürren, Davos), ainsi qu'à Sessa, alors que les facteurs de transfert restent comparables à ceux mesurés en plaine. Leurs moyennes, pour les années 1990 à 1995, se situent respectivement vers 1,7 pour le transfert sol-herbe et vers 0,2 pour le transfert herbe-lait. Il n'a pas encore été possible de mettre en évidence une augmentation de la concentration du strontium-90 dans les dents d'enfants nés à partir de 1986, même au Tessin, région la plus touchée par l'accident de Tchernobyl. Dans les sols, les activités en strontium-90 sont environ 10 fois plus faibles que celles du césum-137. Comme pour le strontium-90, l'activité en césum-137 des sols de montagne est plus élevée qu'en plaine. Dans la plupart des autres échantillons (herbe, blé, etc.), l'activité en césum-137 est inférieure à la limite de détection.

### **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 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 N°. 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.

## 3.12. Mesures de plutonium dans le sol, les sédiments, l'eau et l'air

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

Institut de radiophysique appliquée  
Centre Universitaire, 1015 LAUSANNE

### 3.12.1. Résumé

Les déterminations de plutonium-239/240 ainsi que celles du plutonium-238 effectuées en 1995 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. Ils confirment les valeurs mesurées en 1994. L'activité en plutonium-239 était, en 1995, comprise entre 0,2 et 1,7 Bq/kg dans le sol, entre 0,02 et 0,2 Bq/kg dans les sédiments; dans l'air prélevé à Fribourg au moyen d'un filtre aérosol, on a mesuré 1,2  $\pm$  0,2 nBq/m<sup>3</sup>.

### 3.12.2. 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 deux nucléides ne peuvent être distingués par spectrométrie alpha (voir tableau 1); 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].

Tableau 1: Caractéristiques des principaux isotopes du plutonium

Isotope	Période (a)	Emission	Energie (keV)	%
Pu-238	87,7	$\alpha$	5499	71,0
			5456	28,8
Pu-239	2,41 E+4	$\alpha$	5157	73,0
			5144	15,1
			5106	11,7
Pu-240	6,56 E+3	$\alpha$	5168	72,9
			5124	27,0
Pu-241	14,89	$\beta$	$E_{\beta}^{\text{max}} = 20$	--
Pu-242	3,73 E+5	$\alpha$	4901	76,5
			4856	23,5

La surveillance du plutonium-239 dans l'environnement est nécessaire à cause de sa radiotoxicité 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 et aux points de prélèvement les plus représentatifs de l'environnement.

### 3.12.3. Méthode de séparation chimique du plutonium

Pour déterminer le plutonium-238 et 239 dans l'environnement, il est nécessaire d'engager dans l'analyse une grande masse d'échantillon (30-50 g de sol par exemple), puis d'effectuer une séparation chimique pour éliminer

dans sa totalité la matrice de l'échantillon, ainsi que les radionuclides qui pourraient interférer dans la mesure par spectrométrie alpha du plutonium-238, 239 et 242 (par exemple Am-241, Th-228). Le plutonium-242, absent de l'environnement, est utilisé comme traceur afin de tenir compte des pertes inévitables lors de la séparation chimique.

La méthode de séparation chimique utilisée [2] est relativement rapide et suffisamment spécifique et sensible pour mesurer même le Pu-238 dans les sols. 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 .

### 3.12.4. Résultats de la surveillance

Les déterminations de plutonium effectuées dans l'environnement en 1995 ont porté sur les mêmes types d'échantillons qu'en 1994: sol, sédiments, eaux de fleuve, ainsi qu'un filtre aérosol. Les marges d'erreur indiquent l'incertitude de comptage uniquement.

#### Sol

Le plutonium a été déterminé dans des sols typiques du territoire suisse prélevés en 1995 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 2 et à la figure 1; cette dernière permet de comparer les activités en strontium-90, césium-137 et plutonium-239 des sols.

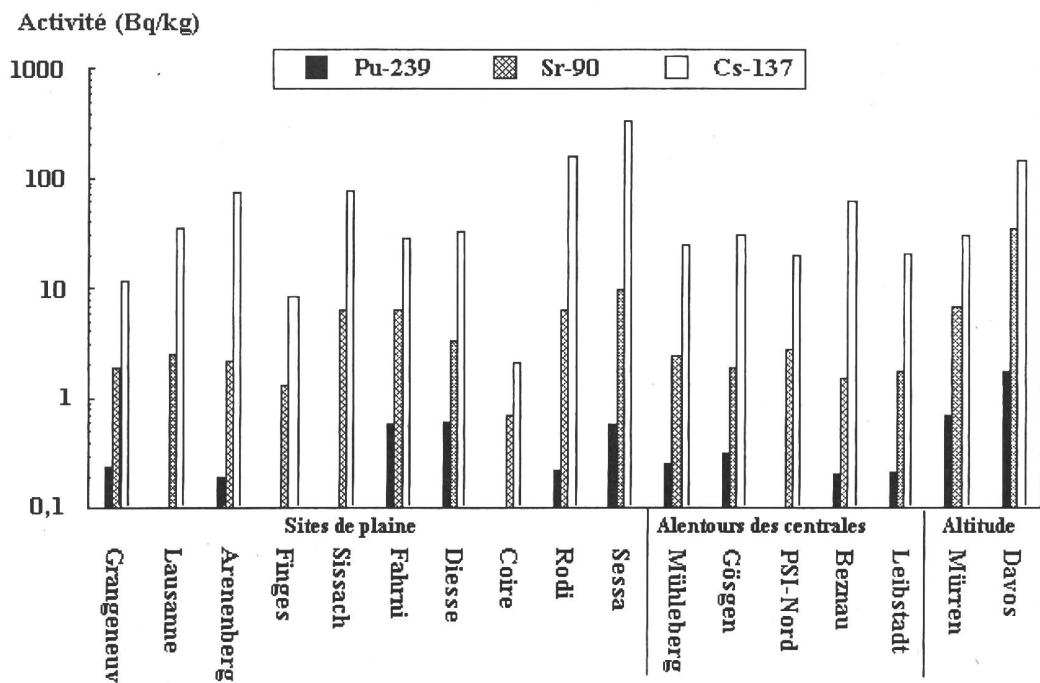
On ne constate pas de différence significative de l'activité en plutonium-239 dans le sol entre les sites des centrales nucléaires et les autres points situés en plaine. A Sessa, la concentration en plutonium-239 est toutefois plus élevée, de même que celle du césium-137 et du strontium-90. L'activité du plutonium est aussi plus élevée dans les sols de montagne, en particulier à Davos, où elle atteint 1,7 Bq/kg. Ces fluctuations de l'activité du plutonium-239 reflètent 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 2: Concentration en plutonium dans le sol en 1995 (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 / BE	0,26±0,02	0,035±0,012	0,11±0,02
Gösgen / SO	0,32±0,03	0,033±0,010	0,17±0,04
Leibstadt / AG	0,21±0,02	0,052±0,016	0,12±0,03
Beznau / AG	0,20±0,02	0,046±0,016	0,09±0,02
<b>Sites en plaine:</b>			
Grangeneuve / FR	0,23±0,02	0,033±0,012	0,12±0,03
Arenenberg / TG	0,20±0,02	0,026±0,010	0,09±0,02
Fahrm / BE	0,59±0,05	0,039±0,010	0,09±0,02
Rodi / TI	0,23±0,02	0,049±0,015	0,04±0,01
Sessa / TI	0,59±0,06	0,040±0,010	0,06±0,01
<b>Sites en altitude:</b>			
Diesse / BE	0,61±0,05	0,033±0,009	0,18±0,03
Mürren / BE	0,70±0,06	0,020±0,006	0,10±0,02
Davos / GR	1,70±0,14	0,037±0,007	0,05±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 ( $0,10 \pm 0,03$ ) s'expliquent par la période plus courte du strontium-90 (28,5 ans), 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 1995



De même, le rapport  $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  (Moyenne:  $0,04 \pm 0,01$ ) 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, souvent proche de la limite de détermination. 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 3 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 Pu-238/Pu-239 est sensiblement le même, caractéristique des retombées. On ne constate pas d'augmentation significative de l'activité de ce nucléide, ni du rapport Pu-238/Pu-239 en aval des centrales nucléaires. Les prélèvements au moyen de trappes à sédiments permettent d'obtenir des échantillons plus reproductibles et plus représentatifs qu'un prélèvement à la surface du sédiment. A Niederried, l'activité en plutonium-239 dans les 2 prélèvements effectués en 1994 et 1995 au moyen de trappes confirme les résultats obtenus en 1994 sur les sédiments prélevés par la méthode habituelle, tant à Wohlen qu'à Niederried (respectivement 0,15 et 0,13 Bq/kg). Ceci confirme que les activités mesurées ne sont pas liées aux rejets de la centrale de Mühleberg.

De même, les activités en plutonium-239 mesurées en 1994 et 1995 en amont et en aval des centrales de Gösgen et Leibstadt, sont comparables.

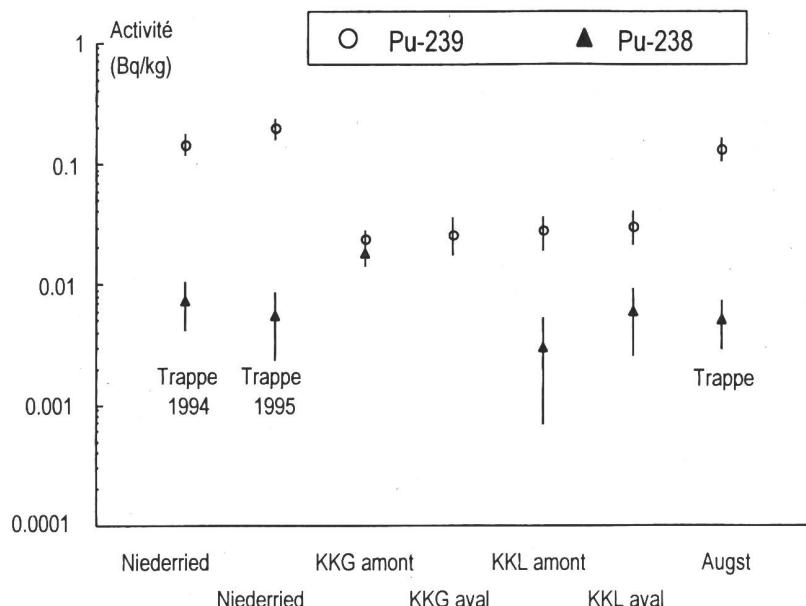
Les activités de Pu-239 mesurées apparaissent plus liées aux conditions locales de sédimentation qu'à l'activité de l'eau du fleuve.

Tableau 3: Concentration en plutonium-239 dans des sédiments en 1995

	Concentration (Pu-239: Bq/kg)	Rapport Pu-238/Pu-239
<b>Centrales nucléaires:</b>		
<b>Site de Mühleberg</b>		
Lac de Niederried (trappe)	0,20±0,02	0,028±0,011
<b>Site de Gösgen</b>		
Aare en amont de la centrale	0,024±0,004	0,74±0,27
Aare en aval de la centrale	0,027±0,005	< 0,10
<b>Site de Leibstadt</b>		
Rhin en amont de la centrale	0,028±0,004	0,107±0,058
Rhin en aval de la centrale	0,031±0,005	0,191± 0,084
Rhin à Augst (trappe)	0,13±0,01	0,038±0,012

Le rapport Pu-238/Pu-239 de l'échantillon de sédiment prélevé en amont de la centrale de Gösgen, exceptionnellement élevé (0,74), reste inexpliqué, alors que dans tous les autres échantillons de sols et de sédiments mesurés, le rapport Pu-238/Pu-239 est inférieur à 0,2 (moyenne:  $0,05 \pm 0,02$ ) 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 1995



### **Eau du Rhin et du Rhône**

Les résultats figurent dans le tableau 4. Les activités en plutonium-239 mesurées en 1995 dans le Rhin à Reckingen et à Village-Neuf, ainsi que dans le Rhône à Chancy sont du même ordre de grandeur que les valeurs de 1994. Celle du plutonium-238 est située en-dessous de la limite de détection.

**Tableau 4: Concentration en plutonium-239 dans des eaux du Rhin et du Rhône**

Type d'échantillon	Lieu de prélèvement	Activité en plutonium-239 mBq/m <sup>3</sup>	
		1994	1995
Particules en suspension	Reckingen Village-Neuf	< 4	7,1±1,0
		< 6	< 10
Résidu d'évaporation	Chancy	18±3	6,6±0,8

### **Filtres aérosols.**

Le tableau 5 présente les résultats de mesure du plutonium dans l'air à Fribourg au moyen de filtres aérosols, comparés à ceux de 1994:

**Tableau 5. Concentration en plutonium-238 et plutonium-239 dans l'air à Fribourg**

	1994	1995
Plutonium-239	1,36±0,25nBq/m <sup>3</sup>	1,23±0,16nBq/m <sup>3</sup>
Plutonium-238	1,47±0,25nBq/m <sup>3</sup>	0,36±0,07nBq/m <sup>3</sup>
Rapport Pu-238/Pu-239	1,08±0,38	0,29±0,10

L'activité en plutonium-239 dans l'air mesurée à Fribourg en 1995 est comparable à celle mesurée en 1994 et concorde avec les valeurs citées dans la littérature [5,8]; elle provient essentiellement de la resuspension [3]. Par contre, le rapport Pu-238/Pu-239, exceptionnellement élevé en 1994, a fortement diminué, tout en restant légèrement supérieur à la valeur normale; il ne devrait en effet pas dépasser 0,2. La présence de particules chaudes ne peut être exclue, d'autant plus que les déterminations portent sur une longue période, soit une année entière. Des rapports Pu-238/Pu-239 de 0,4 ont été mesurés dans l'air à Braunschweig au 1er trimestre 1991 et au 4ème trimestre 1993 [8], alors que de 1991 à 1994 la moyenne de ce rapport était de 0,14 et celle de l'activité en Pu-239 de 1,0 nBq/m<sup>3</sup>. Cette dernière valeur est compatible avec l'activité mesurée dans le filtre de Fribourg.

### **3.12.5 Conclusion**

Les déterminations de plutonium-238 et 239 effectuées en 1995 dans des échantillons de sol, de sédiments d'eaux de fleuve, et dans un filtre aérosol confirment nos premiers résultats obtenus en 1994 et attestent que la concentration en plutonium-239 dans l'environnement est extrêmement faible, souvent proche de la limite de détection. Aucune augmentation significative de l'activité de ce nucléide n'a pu être mise en évidence au

voisinage des centrales nucléaires par rapport aux autres sites de plaine, tant dans les sols que dans les sédiments. Le rapport  $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  reste inférieur à 0,2 dans tous les échantillons, hormis dans un sédiment prélevé en amont de la centrale de Gösgen (0,74; valeur inexpliquée) et dans l'air prélevé à Fribourg au moyen d'un filtre aérosol (0,29 en 1995, 1,08 en 1994); dans ce dernier cas, la présence de particules chaudes ne peut être exclue. 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.

Bien que l'activité en plutonium-239 en Suisse soit extrêmement faible, et malgré l'investissement qu'exigent ces analyses, nous estimons indispensable de poursuivre la surveillance du plutonium afin de disposer d'un "bruit de fond" représentatif du plutonium-239 en Suisse, permettant ainsi de déceler à son tout premier stade une éventuelle augmentation de l'activité de ce nucléide dans l'environnement.

### 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, des Grisons 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 Transuranium 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. Hölgé, 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)
- [8] H. Wershofen, D. Arnold, Radionuklides in Ground-Level Air in Braunschweig, Report of the PTB Trace Survey Station for 1993 and 1994, Dec. 1995.

### 3.13. Vergleichende Untersuchung der Verteilung von Cäsium-Radionukliden in Waldgebieten im südlichen und 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>

1) Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, IAF Radiometrie, Postfach 1261  
D-88241 WEINGARTEN, Deutschland

2) GR, AC-Laboratorium Spiez, Sektion Sicherheitsfragen, Zentrale Analytik und Radiochemie  
CH-3700 SPIEZ, Schweiz

#### 3.13.1. Einleitung

Nach den letztjährigen orientierenden Untersuchungen /1/ in Waldgebieten im südlichen Tessin waren weitere Messungen notwendig, um die Ergebnisse zu vervollständigen und abzusichern.

Die horizontspezifische Tiefenverteilung von Radiocäsium wurde im Tessiner Waldboden an weiteren Standorten vermessen, um zusätzliche Daten bezüglich der Tiefenverlagerung von Radiocäsium an drei Standorten zu erhalten, und horizontspezifischen Anteile des <sup>137</sup>Cs von Tschernobyl und den Kernwaffentests zu ermitteln, um die Wanderungsgeschwindigkeit im Boden abzuschätzen. Der Transferfaktor (Boden-Pflanze) für "Leitpflanzen" (Farn, Brombeere, Himbeere, Heidelbeere) und weitere Pflanzen an Fichten- und Laubwaldstandorten wurde bestimmt. Extraktiongrade von <sup>137</sup>Cs aus organischen und mineralischen Bodenhorizonten wurden gemessen und mit dem Transferfaktor in Beziehung gesetzt. Um eine Aussage über die Zahl der verfügbaren Plätze von Kationen an der festen Masse des Bodens zu gewinnen, wurde die Kationenaustauschkapazität (KAK) bestimmt. Der Einfluß von Mykorrhiza-Pilzen auf die Akkumulation von Cs in den organischen Bodenhorizonten und den Transfer Boden-Pflanze wurde ebenfalls untersucht.

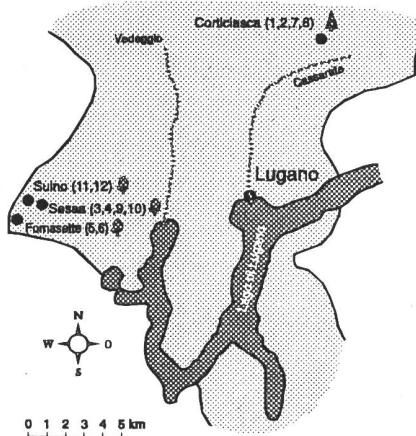
Die vorliegende Arbeit wurde parallel zu "Vergleichende Untersuchungen der Einschwemmung von Cäsium-Radionukliden in den Lugarer See und den Bodensee" durchgeführt (vgl. Kap. 3.9.).

#### 3.13.2. Experimentelle Methoden

##### 3.13.2.1. Probennahme

Proben aus drei Gebieten im südlichen Tessin wurden untersucht (Position 7 bis 12). Die Beprobung erstreckte sich über den Zeitraum vom 15. bis 17. Mai 1995, d.h. die Probenahme war etwa 2 Monate früher als die letztjährigen Untersuchungen /1/. Es wurden Stellen bevorzugt, bei denen die Bodenhorizonte optisch gut abgrenzbar waren, was mit Spatenaushüben vor der Entnahme geprüft wurde. Bewuchspflanzen und Bodenhorizonte wurden innerhalb eines quadratischen Rahmens wie im letzten Jahr entnommen /1/.

**Abb. 1** Beprobungsorte um Lugano, davon im Jahr 1995: Position 7 bis 12



### 3.13.2.2. Extraktionsversuche an Waldböden

Auf das Material jedes Bodenhorizonts wurde ein modifiziertes sequentielles Extraktionsverfahren nach Robbins /2/ angewandt. Um mit anderen Autoren vergleichbare Daten zu erhalten /3/, wird für den ersten Extraktions schritt Ammoniumacetat anstelle von Cäsiumchlorid verwendet. Dieses Extraktionsverfahren sollte es ermöglichen, die Menge an Cäsium zu bestimmen, die an eine bestimmte Bodenfraktion gebunden ist.

Der Extraktionsgrad  $E_n$  des n-ten Schrittes in % ist folgendermaßen definiert:

$$E_n = \frac{A_{\text{Extrakt}}}{A_{\text{Boden}}} \cdot 100\% \quad A = \text{Aktivität}$$

### 3.13.2.3. Optische Bestimmung der Hyphenlänge von Pilzen in Waldböden

Die Symbiose von Bodenpilzen mit den Wurzeln höherer Pflanzen wird als Mykorrhiza bezeichnet. Der Bodenpilz umschließt die Wurzel mit einem Hyphenmantel, aus dem Zellfäden, Hyphen genannt, austreten. Die Hyphen besitzen im Vergleich zu den Wurzelhaaren einen viel kleineren Durchmesser (2-30 µm) und können somit in Bodenbereiche vordringen, die einer nicht-mykorrhizierten Pflanze unerreichbar sind /4/.

Die Hyphenlänge wird unter einem Lichtmikroskop bestimmt und auf die Bodenmasse normiert /5/. Die so normierte Hyphenlänge wird in dieser Arbeit als Maß für den Transfer von Ionen aus dem Boden in die Pflanze benutzt.

### 3.13.2.4. Ionenchromatographie

Die Konzentration konkurrierender Ionen wie  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$  und  $\text{Mg}^{2+}$  im Boden wird nach dem ersten Extraktions schritt mit Ammoniumacetat mittels Ionenchromatographie (IC) gemessen.

Daraus berechnet sich die KAK

$$\text{KAK} = \sum \left( \frac{C_{\text{me}}}{M_{\text{me}}} \cdot Z_{\text{me}} \right) \cdot \frac{V_{\text{Austausch}}}{m_{\text{Boden}}}$$

$C_{\text{me}}$  ..... Konzentration des Ions

$M_{\text{me}}$  ..... Molmasse des Ions

$Z_{\text{me}}$  ..... Äquivalentladung eines Mols

$m_{\text{Boden}}$  ..... Masse der Bodenprobe

$V_{\text{Austausch}}$  ... Volumen der Austauschlösung

als Maß für die Zahl der Bindungsplätze auf der Oberfläche der Bodenbestandteile, die für Sorption von Kationen verfügbar sind.

### 3.13.3. Ergebnisse und Diskussion

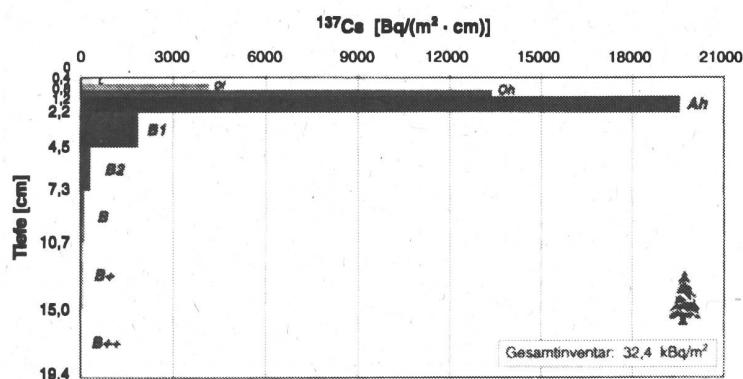
#### 3.13.3.1. Tiefenverteilung der $^{137}\text{Cs}$ - Aktivitätskonzentration

Die folgenden Diagramme zeigen auf der Abszisse die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentration der einzelnen Waldboden horizonte<sup>1)</sup> und auf der Ordinate die gemittelten Horizonttiefen. Der Tiefenmaßstab ist den jeweiligen Schicht-

1) L, Of, Oh: Horizonte der organischen Auflage; Ah, B: Horizonte des Mineralbodens

dicken der Horizonte angepaßt. Die Mächtigkeit der einzelnen Horizonte wird mit einem Maßstab bestimmt, wobei die Genauigkeit der Bestimmung in einzelnen Fällen  $\pm 0,5$  cm beträgt. Alle Angaben für  $^{137}\text{Cs}$  sind bzgl. des radioaktiven Zerfalls auf den 1. Mai 1986 korrigiert.

Die Position Corticiasca 7 Abb. 2 besitzt mit jeweils 0,4 cm Dicke eine sehr dünne Streuschicht und auch sehr dünne organische Horizonte  $O_f$  und  $O_h$ . Der sich anschließende mineralische  $A_h$ -Horizont fällt mit nur 1 cm ebenfalls sehr dünn aus. Das Maximum der Aktivitätskonzentration liegt im  $A_h$ -Horizont. In den tieferliegenden B-Horizonten fällt die Aktivitätskonzentration steil ab. Über 80 % des Gesamtinventars ist in den oberen 2,2 cm enthalten. Der Kurvenverlauf lässt erkennen, daß das gesamte Cäsium-Inventar berücksichtigt wurde. Das  $^{137}\text{Cs}$ -Gesamtinventar liegt mit  $32,4 \text{ kBq/m}^2$  etwas über dem Durchschnittswert ( $29,9 \text{ kBq/m}^2$ ) der sechs beprobenen Positionen. Die Tiefenverlagerung des  $^{137}\text{Cs}$  erfolgt sehr langsam. Dies läßt darauf schließen, daß hier sehr viele Tonminerale im Boden enthalten sind. Ein weiteres Indiz für feste Bindungen ist die Geologie Schiefergneis. Von



Die Verteilung der Aktivitätskonzentration ist an der Position Sessa 9 Abb. 4 durch ein ausgeprägtes Maximum im mineralischen Horizont der Bodenschicht  $A_{h1}$  gekennzeichnet. Ca. 80 % des  $^{137}\text{Cs}$ -Gesamtinventars ist in den Bodenschichten oberhalb von 7,5 cm Tiefe enthalten. Der Wert des Gesamtinventars ist mit  $27,5 \text{ kBq/m}^2$  nur geringfügig niedriger als der Mittelwert der sechs beprobenen Positionen. Aus der Tiefenverteilung ist ersichtlich, daß das Cäsium bis in eine Tiefe von 20 cm detektiert werden kann. Der Wert im  $A_{h7}$ -Horizont ist aber mit ca.  $200 \text{ Bq/m}^2\text{-cm}$  viel kleiner als bei Abb. 3 Corticiasca 8. Die Entnahme des Bodens aus noch größeren Tiefen war aber nicht möglich, da hier viele sehr dicke Baumwurzeln anzutreffen waren.

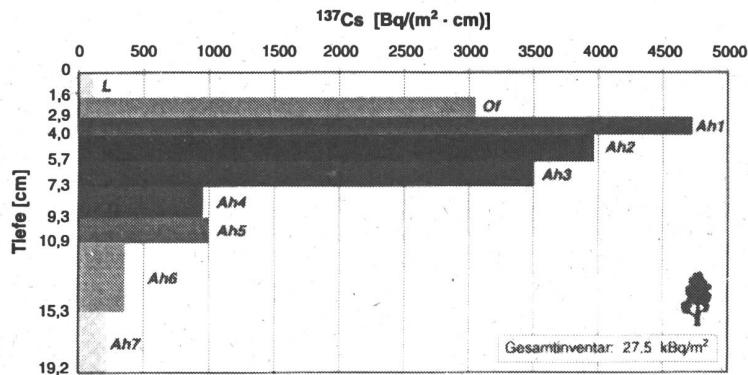


Abb. 4 Sessa 9 Tiefenverteilung der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentration im Laubwald

sächlich aus Schichtsilikaten, wobei hier Muskovit und Kalifeldspäte führend sind. Auch von Muskovit ist bekannt, daß er für Cs-Ionen sehr feste Bindungsplätze anbietet [7]. Durch den stärkeren Zusammenhalt der Schichten vermag Muskovit die eingelagerten Ionen besser zu binden als Biotit. Er ist deshalb auch verwitterungsbeständiger.

Die Position Sessa 10 Abb. 5 ist geprägt durch eine sehr dicke Streuschicht und einen sehr dicken O<sub>r</sub>-Horizont. Die Schichtdicken der mineralischen Horizonte variieren beträchtlich. Es ist kein eindeutiges Maximum der Aktivitätskonzentration erkennbar, so daß es scheinbar zu mehreren Maxima innerhalb des A<sub>h</sub>-Horizonts kommt. Der höchste Wert wurde in der Schicht A<sub>h3</sub> gefunden. Der Wert des  $^{137}\text{Cs}$ -Gesamtinventars liegt mit  $23,2 \text{ kBq/m}^2$  weit unter dem Durchschnitt. Ein beträchtlicher Teil des  $^{137}\text{Cs}$  ist in sehr großer Tiefe zu finden. Ungefähr 65 % entfällt dabei auf die Horizontschichten A<sub>h1</sub> - A<sub>h5</sub>. Auch im Horizont A<sub>h7</sub> ist noch relativ viel Cäsium vorhanden. Ein großer Teil des  $^{137}\text{Cs}$  ist in sehr großer Tiefe zu finden. Ein Grund für die

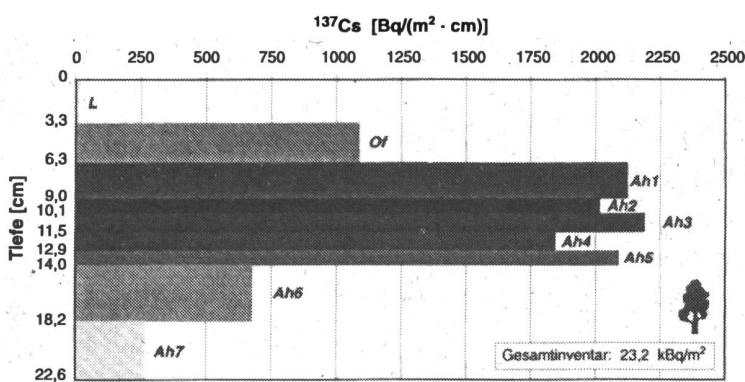


Abb. 5 Sessa 10  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentration

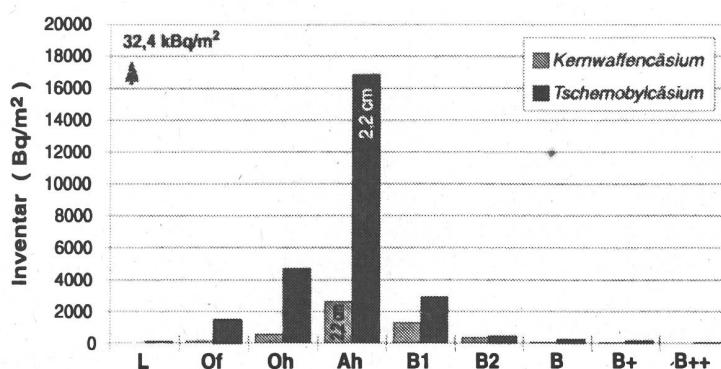
Tiefenverlagerung könnte ein hoher organischer Anteil im A<sub>h</sub>-Horizont sein. Dies müßte anhand von Versuchungsversuchen noch überprüft werden.

An den Positionen Suino 11 und Suino 12 sind Profile mit einem klar ausgeprägtem Maximum gemessen worden, die nicht abgebildet sind da sie beide ein sehr ähnliches, normales Verhalten zeigen. Die Inventare liegen nahe dem Mittelwert von  $30 \text{ kBq/m}^2$  und die Maxima aus Kernwaffentest und Tschernobyl liegen ähnlich tief. Sie sind mit Tiefenprofilen aus Oberschwaben vergleichbar.

### 3.13.3.2. Horizontspezifische Anteile von Kernwaffentest- und Tschernobyl-Fallout am $^{137}\text{Cs}$ -Inventar

Die folgenden Diagramme zeigen auf der Abszisse die einzelnen Waldbodenhorizonte und auf der Ordinate das  $^{137}\text{Cs}$ -Inventar aufgeteilt nach Kernwaffen- und Tschernobylcäsium.

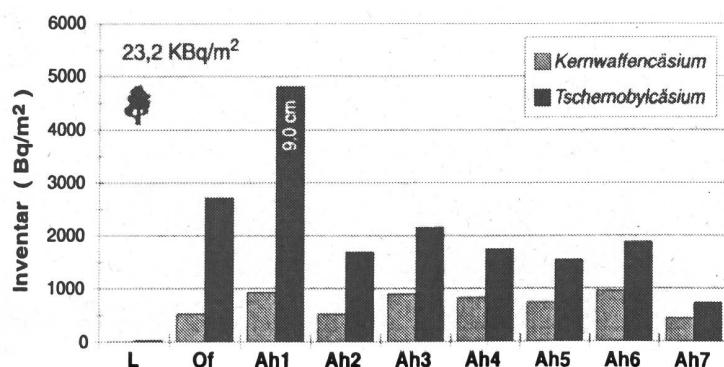
Diese Aufteilung ist möglich mit den Meßwerten der  $^{137}\text{Cs}$ - und  $^{134}\text{Cs}$ -Inventare und dem Tschernobylfaktor  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs} = 0,6 = (f_{\text{Tsch}})^{-1}$  /1/. Diese Darstellung der Meßergebnisse ermöglicht, die Wanderungsgeschwindigkeit des Kernwaffen- und Tschernobylcäsiums im Boden abzuschätzen und damit Aussagen über die Bindung des Cäsiums im Boden zu machen. Alle Angaben für  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{134}\text{Cs}$  sind bzgl. des radioaktiven Zerfalls auf den 1. Mai 1986 korrigiert.



**Abb. 6** Horizontspezifisches  $^{137}\text{Cs}$  Inventar getrennt in Tschernobyl- und Kernwaffentestanteile am Fichtenwaldstandort Corticiasca 7

stark reduziert.

An Position Sessa 10 Abb. 7 liegt das Maximum aus dem Tschernobylfallout im Horizont  $A_{h1}$ , in einer Tiefe von 9 cm. Darunter verteilt es sich dann nahezu gleichmäßig auf die weiteren Horizonte  $A_{h2}$  bis  $A_{h7}$ . Für das Kernwaffencäsium lässt sich kein eindeutiges horizontspezifisches Maximum lokalisieren, es ist ebenfalls gleichmäßig auf die Horizontschichten des mineralischen  $A_h$ -Horizontes verteilt. Position 10 liegt nahe zum Grenzgebiet zur Geologie Moräne. Es wäre also auch denkbar, daß die Beprobung auf der Geologie Moräne erfolgte. Damit könnte auch die schnellere Tiefenverlagerung an dieser Position erklärt werden. Meßergebnisse des letztjährigen Untersuchung /1/ zeigten in Sessa auf Moräne ähnliche hohe Migrationsgeschwindigkeiten, die um etwa einen Faktor 4 höher sind als am Standort Corticiasca 7.



**Abb. 7** Horizontspezifisches  $^{137}\text{Cs}$  Inventar getrennt in Tschernobyl- und Kernwaffentestanteile am Laubwaldstandort Sessa 10

Am Standort Corticiasca 7 Abb. 6 liegen beide Maxima im mineralischen  $A_h$ -Horizont in einer Tiefe von 2,2 cm. Der Cäsium Anteil in diesem Horizont am Gesamtinventar beträgt etwas über 60 %. In tieferen Horizonten nimmt das Cäsium mit der Tiefe stark ab. Die Kontamination ab dem  $B_2$ -Horizont ist so gering, daß man von einer Besonderheit dieser Position sprechen kann. Nur etwa 5 % des Gesamtinventars stammen aus den Horizonten  $B_2$  und tiefer. Die Migrationsgeschwindigkeit des  $^{137}\text{Cs}$  im Boden ist sehr langsam und wird mit Erreichen der mineralischen Horizonte

stark reduziert.

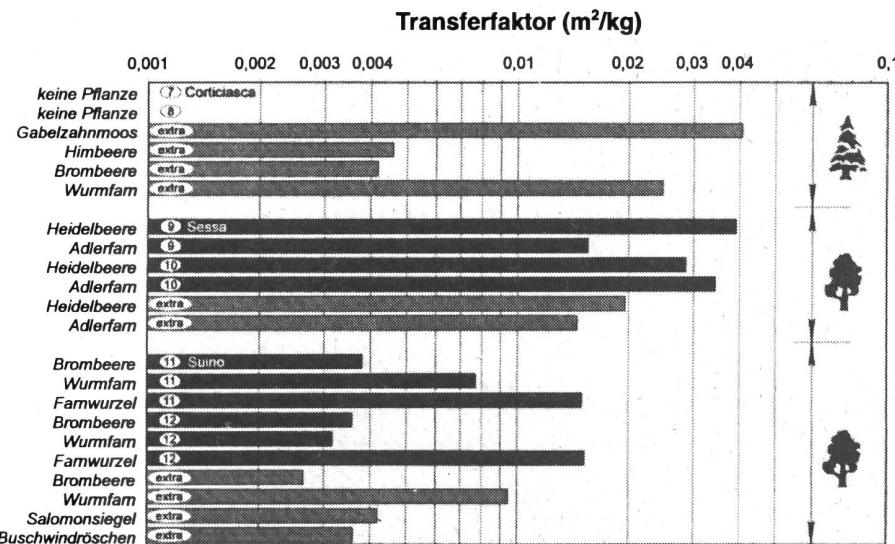
### 3.13.3.3. Transfer des $^{137}\text{Cs}$ vom Boden in die Pflanze

In Abbildung 8 sind die aggregierten Transferfaktoren ( $T_{ag}$ ) für Pflanzen dargestellt, wobei

$$T_{ag} = \frac{\text{spezifische Aktivität der Pflanze (Bq/kg)}}{\text{Flächenaktivität im Boden (Bq/m}^2)}$$

In dieser Grafik ist der höhere Transferfaktor am Standort Sessa gegenüber Suino deutlich zu erkennen. Die Transferfaktoren unterscheiden sich aber nur um maximal eine Zehnerpotenz voneinander. Die Grafik zeigt auch, daß der Transferfaktor einer Pflanzenart am selben Standort keinen konstanten Wert hat, sondern beträchtlich variieren kann. Am Standort Sessa hat der Transferfaktor für Farn z.B. die Werte  $T_{ag} = 0,016 \text{ m}^2/\text{kg}$  bzw.  $T_{ag} = 0,035 \text{ m}^2/\text{kg}$ . An der Position Sessa 10 ist er somit doppelt so groß wie an der Position Sessa 9. Auch am Standort Suino unterscheiden sich die Transferfaktoren für Farn um den Faktor zwei. Die beiden gemessenen Transferfaktoren der Brombeere und der Farnwurzel sind an diesem Standort nahezu gleich.

Bei den "extra" entnommenen Pflanzen verhält es sich ähnlich. "Extra" bedeutet, daß diese Pflanzen am gleichen Standort aber außerhalb des Rahmens für die Bodenprobe entnommen wurden. Allgemein sind höhere Transferfaktoren



**Abb. 8** Transferfaktoren ( $T_{ag}$ ) Boden-Pflanze an Standorten im Tessin

wurde mit  $T_{ag \text{ extra}} = 0,041 \text{ m}^2/\text{kg}$  für das Gabelzahnmoos, der kleinste mit  $T_{ag \text{ extra}} = 0,0042 \text{ m}^2/\text{kg}$  für die Brombeere ermittelt.

Die nachfolgende Abbildung 9 erlaubt einen Vergleich der Transferfaktoren für Farne, wie sie im nördlichen bzw. südlichen Voralpenland anzutreffen sind. Die Abb. 9 zeigt die für den Farn im Tessin ermittelten Transferfaktoren der Jahre 1994 und 1995. Für den Eggwald wurde je ein typischer Wert für Laubwald und Fichtenwald eingetragen. Am Fichtenwaldstandort wurde über zehn Farne gemittelt. Die Transferfaktoren für Farn im Jahr 1995 liegen im Tessin über dem Vergleichswert aus dem Eggwald und auch über den von 1994 ermittelten Werten. Wird hierbei noch berücksichtigt, daß 1994 zwei Bodenhorizonte weniger entnommen wurden, d.h. um ca. 4 % weniger  $^{137}\text{Cs}$  entnommen wurde, so fallen die Transferfaktoren für das Jahr 1994 noch kleiner aus. Die relativ große Abweichung der Transferfaktoren für 1995 von denen für 1994 könnte darin begründet sein, daß die Probennahme 1995 drei Monate früher erfolgte. Junge Farne besitzen einen höheren Stoffwechsel und nehmen deshalb mehr Nährstoffe und auch mehr Cäsium auf [8]. Die reichlichen Niederschläge im Frühjahr 1995 könnten ein weiterer Grund für die erhöhten Transferfaktoren sein, indem dann mehr Cäsium in der Bodenlösung enthalten und somit für die Pflanzen verfügbar ist.

am Standort Sessa gegenüber Suino deutlich zu erkennen. Der Transferfaktor für Farn ist in Corticiasca etwas höher als in Sessa und etwa doppelt so hoch wie in Suino. Die Transferfaktoren der einzelnen Pflanzen am Standort Corticiasca unterscheiden sich um maximal eine Zehnerpotenz voneinander. Der größte Transferfaktor dieser Position

Insbesondere die beiden Standorte Sessa 9 und Sessa 10 zeigen erhöhte Werte, sodaß man sie in die Gruppe Mitteltransfergebiet (MTF) mit  $0,01\text{m}^2/\text{kg} < T_{ag} < 0,1\text{m}^2/\text{kg}$  einordnen muß, wohingegen die restlichen Standorte in Lugano eindeutig Niedertransfergebiete (NTF) mit  $T_{ag} < 0,01\text{m}^2/\text{kg}$  sind /9/. Die Grafik zeigt aber auch, daß die Transferfaktoren für Fam in Laubwald sehr viel kleiner sind als in Fichtenwald. Diese Abweichung läßt sich anhand der unterschiedlichen Bodenhorizonte erklären. Im Laubwald folgt auf die Streuschicht in aller Regel gleich der mineralische A<sub>h</sub>-Horizont. In diesem Horizont sind die Cäsium-Ionen relativ fest an die Minerale gebunden. Im Fichtenwald schließt sich an die Streuschicht ein organischer Horizont an. In diesem Horizont ist das Cäsium weniger stark gebunden und damit für Farnwurzeln verfügbar.

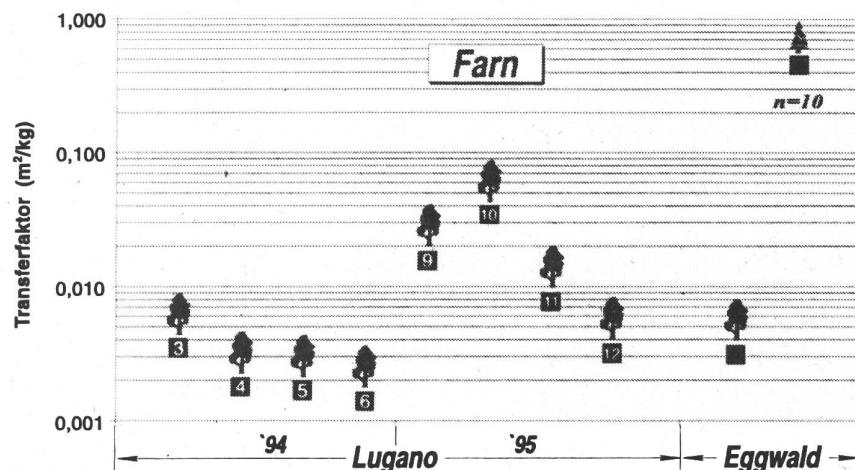


Abb. 9 Vergleich der Transferfaktoren (Tessin-Oberschwaben) für den Fam

tiv fest an die Minerale gebunden. Im Fichtenwald schließt sich an die Streuschicht ein organischer Horizont an. In diesem Horizont ist das Cäsium weniger stark gebunden und damit für Farnwurzeln verfügbar.

### 3.13.3.4. Extraktion von $^{137}\text{Cs}$ aus dem Waldboden

Die nachfolgende Abbildung 10 zeigt die Gesamtextraktionsgrade für zwei Positionen im Tessin und zwei Positionen aus Oberschwaben (Altdorfer Wald). Die Position 219 ist nach unserer Gruppierung ein Hochtransfergebiet (HTF) mit  $T_{ag} > 0,1\text{m}^2/\text{kg}$ , Position 138 ist an der Grenze zwischen Mitteltransfer (MTF) und Hochtransfer /9/. Der Standort Sessa 9 ist ein Mitteltransfergebiet. Diese Einteilung in Transfergebiete wurde durch unsere Extraktionsexperimente bestätigt. Bei Position 219, einem HTF, wurde mit etwa 28 % der höchste Gesamtextraktionsgrad erreicht. Gefolgt von Position 138 mit etwas über 20 %. Das MTF von Sessa 9 hat einen Wert von ca. 15 %. Der kleinste Wert mit knapp über 9 % wurde bei

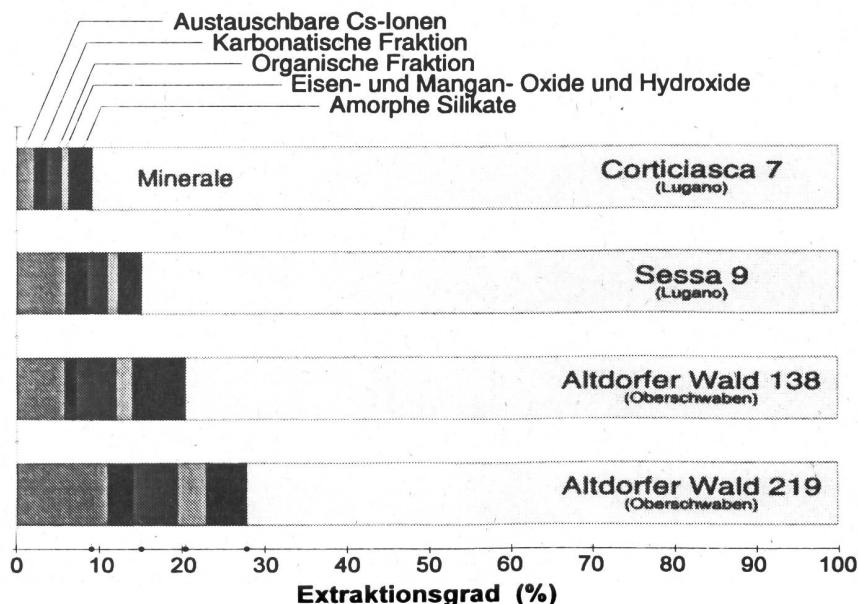


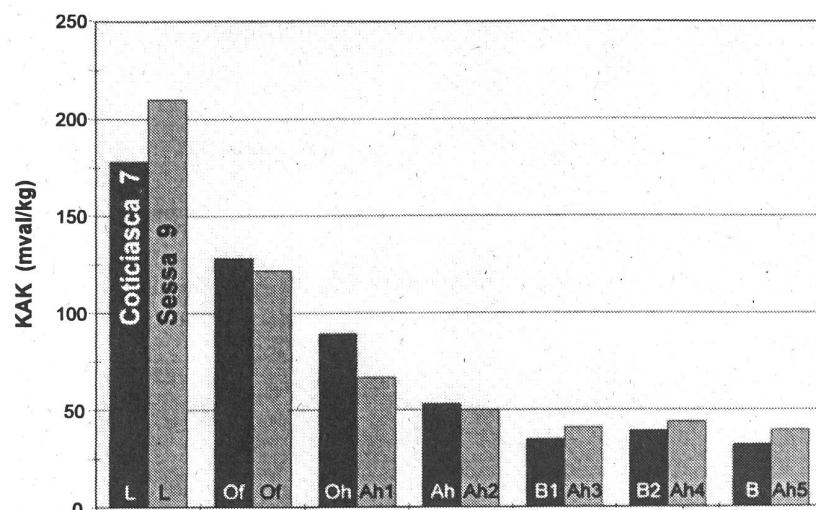
Abb. 10 Vergleich der  $^{137}\text{Cs}$  Gesamtextraktionsgrade (Tessin-Oberschwaben), gemittelt über das ganze entnommene Profil

Corticiasca 7 gemessen. Der geringe Extraktionsgrad von Corticiasca 7 bestätigt auch die Ergebnisse der Tiefenverteilung, daß feste Bindungsplätze für  $^{137}\text{Cs}$  mit geringer Migration gekoppelt sind.

### 3.13.3.5. Kationenaustauschkapazität

Die nachfolgende Abbildung 11 zeigt das Ergebnis der Kationenmessung mittels Ionen-chromatographie. Die Extraktionsproben der einzelnen Bodenhorizonte wurden auf ihren Gehalt an Natrium-, Kalium-, Calcium- und Magnesiumionen hin untersucht. Das Diagramm zeigt die effektive Kationenaustauschkapazität der Proben.

Es wurden für die beiden Standorte Corticiasca 7 und Sessa 9 Proben gemessen. Der Fehler bei allen Kationenmessungen liegt normalerweise bei 5 %. Er erreicht jedoch manchmal, vor allem wenn die nachgewiesene Ionenkonzentration gering ist, bis zu 15 %. Die Messungen wurden ohne eine pH-Wertangleichung auf pH=7 durchgeführt. Die Grafik zeigt für beide Positionen Corticiasca 7 und Sessa 9 einen ähnlichen Kurvenverlauf. In den or-



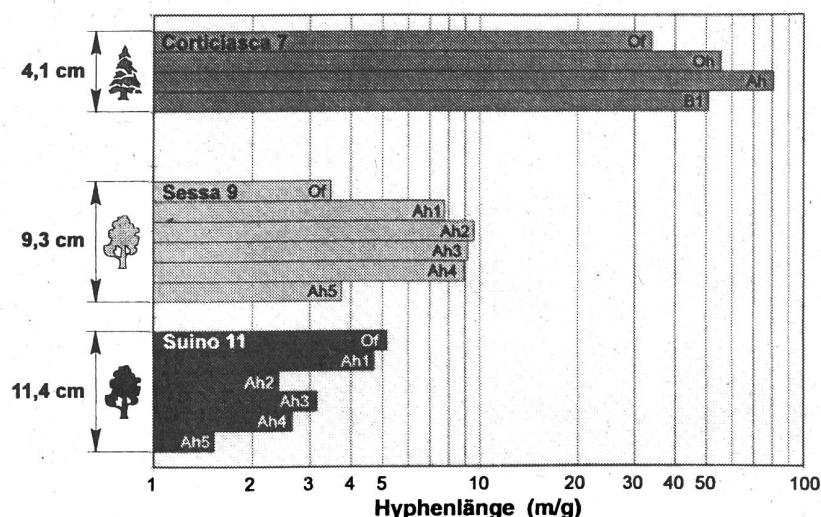
**Abb. 11** Horizontspezifische Kationenaustauschkapazität (KAK) an den Standorten *Corticiasca 7* und *Sessa 9*

ganischen Horizonten ist die Kationenaustauschkapazität hoch und nimmt mit zunehmender Mineralisierung der Horizonte ab. Die Werte liegen im organischen L-Horizont etwa bei 200 mval/kg, im organischen Of-Horizont etwa bei 125 mval/kg und im untersten mineralischen Horizont B bzw. Ah<sub>5</sub> etwa bei 40 mval/kg.

### 3.13.3.6. Tiefenverteilung der Mykorrhiza im Waldboden

In Abb. 12 ist die horizontspezifische Mykorrhiza Hyphenlänge der einzelnen Standorte im Tessin dargestellt. Aus der Grafik geht hervor, daß am Standort Sessa 9, mit Ausnahme des Of-Horizontes, die spez. Hyphenlänge

in jedem Horizont größer ist als am Standort Suino 11. Die Maximalwerte liegen etwa bei 9,5 m/g für Sessa 9 und etwa bei 5 m/g für Suino 11. Die spezifische Hyphenlänge am Standort Suino 11 nimmt zu tiefer liegenden Horizonten hin ab.



**Abb. 12** Tiefenverteilung der Mykorrhiza-Hyphenlänge an verschiedenen Standorten im Tessin

An den Positionen Corticiasca 7 und Sessa 9 wächst die spezifische Hyphenlänge mit der Tiefe zunächst an, erreicht ein Maximum und nimmt dann wieder ab. Es fällt auch

auf, daß die Mykorrhiza-Hyphenlänge am Fichtenwaldstandort Corticiasca 7 um einen Faktor 10 größer ist als an den beiden Laubwaldstandorten. Es wurden dort Hyphenlängen von über 80 m/g für den A<sub>h</sub>-Horizont gemessen. Am Fichtenwaldstandort Corticiasca 7 ist die Mykorrhiza-Hyphenlänge in einer Bodenschicht der Dicke von ca. 4 cm gemessen worden. An den Laubwaldstandorten Sessa 9 und Suino 11 in einer Schicht mit einer Dicke von ca. 10 cm. Darüber- oder auch darunterliegende Bodenschichten wurden nicht gemessen. Vergleicht man nun die Hyphenlängen dieser Standorte miteinander, so fällt auf, daß an dem Standort Sessa 9 mit höherem Transfer auch größere Hyphenlängen gemessen wurden. Es scheint sich also ein Zusammenhang zwischen Hyphenlänge und Transferfaktor zu bestätigen, wie er schon von Enslin /9/ vermutet wurde.

### 3.13.4. Zusammenfassung und Ausblick

Im Tessin wurden sechs Bodenprofile an zwei Laubwaldstandorte und einen Fichtenwaldstandort entnommen und untersucht. Für das <sup>137</sup>Cs-Gesamtinventar der beprobenen Positionen ergaben sich dabei lokal für Lagen in einer Mulde und am Hang oder in der Ebene, sehr große Abweichungen. Der höchste Wert mit knapp 50 kBq/m<sup>2</sup> wurde am Fichtenwaldstandort Corticiasca 8 ermittelt. Der Mittelwert dieser <sup>137</sup>Cs-Gesamtinventare liegt bei 30 kBq/m<sup>2</sup>. Ohne die Muldelage ist der Mittelwert um 4 kBq/m<sup>2</sup> kleiner und damit um 1 kBq/m<sup>2</sup> höher als im Vorjahr. Diese Erhöhung wird durch Messung in größere Bodentiefe verursacht.

Die **Maxima der Aktivitätskonzentration** befinden sich am Fichtenwaldstandort Corticiasca in einer Tiefe von 2,2 cm bzw. 4,6 cm. An den Laubwaldstandorten Sessa und Suino liegen die Maxima der Aktivitätskonzentration in Tiefen von 3 bis 11,5 cm. Die **Auftrennung des <sup>137</sup>Cs-Gesamtinventars in Tschernobyl- bzw. Kernwaffentestcäsium** zeigt, daß das Maximum des Kernwaffentestcäsiums nicht wesentlich tiefer zu finden ist als das Maximum des Tschernobylcäsiums. In Corticiasca liegen beide Maxima sogar im selben Bodenhorizont. Diese Tatsache deutet auf eine relativ feste Bindung des Cäsiums in diesen Horizonten hin, sodaß der größte Teil des Cäsiums auch in den nächsten Jahren in diesen Horizonten bleiben wird.

Der **aggregierte Transferfaktor (T<sub>ag</sub>)** für <sup>137</sup>Cs wurde für die Bewuchspflanzen an den beprobenen Positionen ermittelt. In Corticiasca besitzt das Gabelzahnmoos (*Dicranum rugosum*) mit 0,04 m<sup>2</sup>/kg den höchsten und die Brombeere (*Rubus fruticosus*) mit < 0,005 m<sup>2</sup>/kg den niedrigsten Transferfaktor. In Sessa liegen die Transferfaktoren in der gleichen Größenordnung wie in Corticiasca. In Suino sind die Transferfaktoren im Mittel kleiner als in Sessa. Die Transferfaktoren für Farn liegen im Vergleich zu den Werten aus dem Vorjahr um den Faktor 2-3 höher, was wahrscheinlich auf die frühere Entnahme der Pflanzen (Mai statt Juli) zurückzuführen ist.

**Cäsium-Extraktionsversuche an Bodenproben** bestätigen die Vermutung von fester Bindung des Cäsiums an das Bodenmaterial am Standort Corticiasca. Corticiasca 7 hat den kleinsten Gesamtextraktionsgrad von 9 %, Sessa 9 hat 15 %. Diese Gesamtextraktionsgrade liegen deutlich unter den Werten Oberschwabens von ca. 20-27 %.

Zur Berechnung der **Kationenaustauschkapazität (KAK)** wurde der Gehalt der Konkurrenzionen Na<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup> und K<sup>+</sup> in der Bodenlösung gemessen. Die KAK ist in den organischen Horizonten am größten und sinkt mit zunehmender Mineralisierung. D.h., die Wahrscheinlichkeit für einen Bindungsplatzwechsel ist in den organischen Horizonten höher als in den mineralischen.

Die Tiefenverteilung der Mykorrhiza im Waldboden wurde an drei Standorten gemessen, um den Einfluß der Pilze im Boden (Myzel) auf den Transfer von <sup>137</sup>Cs aus dem Boden in die Pflanze zu studieren. Die auf die Bodenmasse normierte Hyphenlänge der Mykorrhiza ist im Fichtenwald Corticiasca 7 um einen Faktor 10 höher als im Laubwald. Eine Zunahme der Pilzhypenlänge mit wachsendem aggregierten Transferfaktor konnte an allen Standorten nachgewiesen werden.

In einem Folgeprojekt sollen die horizontspezifische Tiefenverteilung von Radiocäsium, Transferfaktoren (Boden-Pflanze) und das Rücklösevermögen von Radiocäsium aus dem Waldboden an weiteren Positionen vermessen werden, insbesondere an Laubwaldstandorten nahe dem Verlauf des Cassarate und des Vedeggio. Mittels Ionenchromatographie sollen die Konkurrenzionen Na<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup> und K<sup>+</sup> im Boden bestimmt werden, um

daraus die Kationenaustauschkapazität zu berechnen und mit dem Modell von Konoplev /3/ Transferfaktoren abzuschätzen. Auch die Mykorrhiza-Hyphenlänge im Waldboden soll horizontspezifisch untersucht werden, um die Frage zu entscheiden, ob der Transfer wesentlich durch Sorption- und Desorptions Mechanismen /3/ oder über die Funktion der Bodenpilze zu erklären ist. Die Ergebnisse sollen mit entsprechenden Untersuchungen im nördlichen Alpenvorland verglichen werden.

### 3.13.5. Danksagung

Unser Dank gilt Frau Dr. Ingrid Kottke, Universität Tübingen, die uns die Bestimmung der Mykorrhiza-Hyphenlänge ermöglichte. Die vorliegende Arbeit wurde mit Mitteln aus dem Forschungsvertrag 112895 der GR, AC-Laboratorium Spiez teilfinanziert. Es handelt sich um eine Zusammenfassung aus dem entsprechenden Jahresbericht /10/.

### 3.13.6. Literaturverzeichnis

- /1/ G. ZIBOLD, E. KLEMT, R. MILLER, T. KLENK: Tiefenverteilung und Transfer Boden-Pflanze von Cäsium-Radionukliden in Waldgebieten im südlichen Voralpengebiet und Vergleich zum nördlichen Voralpengebiet und Einschwemmung von Cäsium-Radionukliden in den Lugarer See und Vergleich zum Bodensee. Abschlußbericht Vertrag 108685, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, Weingarten, 1994.  
R. MILLER, E. KLEMT, T. KLENK, G. ZIBOLD, M. BURGER, A. JAKOB: Tiefenverteilung und Transfer Boden-Pflanze von Cäsium-Radionukliden in Waldgebieten im südlichen Voralpengebiet und Vergleich zum nördlichen Voralpengebiet, Bundesamt für Gesundheitswesen (CH), Jahresbericht 1994, Fribourg, 1995, B.3.16
- /2/ J.A. ROBBINS, 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.
- /3/ A. KONOPLEV: Institute of Experimental Meteorology, Obninsk, Russia, Persönliche Mitteilung, Weingarten, 1995.
- /4/ W. DITRICH: Pflanzliche und mikrobielle Symbiosen, Georg Thieme Verlag Stuttgart, 1987.
- /5/ I. KOTTKE: Botanisches Institut Tübingen, Persönliche Mitteilung, 1995.
- /6/ J. GLERIA, A. KLIMES-SZMIK, M. DVORACSEK: Boden-Physik und Boden-Kolloidik, VEB Gustav Fischer Verlag Jena, 1962.
- /7/ F. SCHEFFER, P. SCHACHTSCHABEL: Lehrbuch der Bodenkunde, F. Enke Verlag Stuttgart, 1989.
- /8/ R. MILLER: Diplomarbeit. Horizontspezifische Verteilung von Cäsium-Radionukliden und Transfer in Bewuchspflanzen in Böden von Nadelwäldern, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, 1993.
- /9/ F. ENSLIN: Diplomarbeit. Kartierung der Bioverfügbarkeit von Cäsium-Radionukliden in Waldgebieten im südlichen Baden-Württemberg, Strahlungsmeßlabor der Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, 1994.
- /10/ E. KLEMT, G. ZIBOLD, R. MILLER, T. KLENK: Vergleichende Untersuchungen über die Verteilung von Cäsium-Radionukliden in Waldgebieten im südlichen und nördlichen Voralpengebiet und Vergleichende Untersuchungen der Einschwemmung von Cäsium-Radionukliden in den Lugarer See und den Bodensee. Abschlußbericht Vertrag 112895, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, Weingarten, 1995.

## 3.14. Ergebnisse der Ganzkörpermessungen

M. Boschung <sup>1)</sup>, A. Donath <sup>2)</sup>, H. W. Roser <sup>3)</sup> und H. Völkle <sup>4)</sup>

- 1) Abteilung Strahlenhygiene, PSI, 5232 VILLIGEN-PSI
- 2) Abteilung Nuklearmedizin des Kantonsspital, Av. Micheli-du-Crest 24, 1211 GENF 4
- 3) Abteilung Radiologische Physik, Kantonsspital Basel, 4031 BASEL
- 4) Sektion Überwachung der Radioaktivität, BAG, Ch. du Musée 3, 1700 FRIBOURG

### 3.14.1. Zusammenfassung

Ganzkörpermessungen zur Bestimmung des Radioaktivitätsgehaltes im menschlichen Körper werden regelmässig an Mitarbeitern des Paul-Scherrer-Institutes (PSI) in Villigen sowie an Gymnasiasten aus Genf und Basel durchgeführt. Im menschlichen Körper ist immer noch Caesium-137 nachweisbar, das vom Reaktorunfall in Tschernobyl stammt. Die Messwerte an Schülern aus Genf liegen alle unter der Nachweigrenze von 10 Bq, jene der Schüler aus Basel (mit einer Ausnahme) unter 40 Bq.

### 3.14.2. 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 und Kantonsspital Basel handelt es sich um je rund zwanzig 16-20-jährige Mädchen und Knaben aus Mittelschulen.

### 3.14.3. Ergebnisse 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 bis 30 Minuten für die routinemässigen Überwachungsmessungen am PSI und für Spezialuntersuchungen in Genf und Basel. Die Kalibrierung erfolgt mittels eines Phantoms, dessen Aktivität bekannt ist.

Im Rahmen der Inkorporationsüberwachung der beruflich strahlenexponierten Personen wurden am PSI 1995 712 Messungen im Ganzkörperzähler durchgeführt. Sie ergaben Cs-137-Werte bis 1100 Bq. Rund 98% der Messwerte liegen unterhalb der Nachweigrenze von 100 Bq; 99.6% unter 400 Bq.

Die Messwerte an Gymnasiasten aus Genf lagen alle unter der Nachweigrenze von 10 Bq Caesium-137. Der zeitliche Verlauf 1988-1994 der Caesiumaktivität dieser Messreihe ist auf Fig. 2 im BAG-Bericht 1994, Seite B.3.17.2 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.

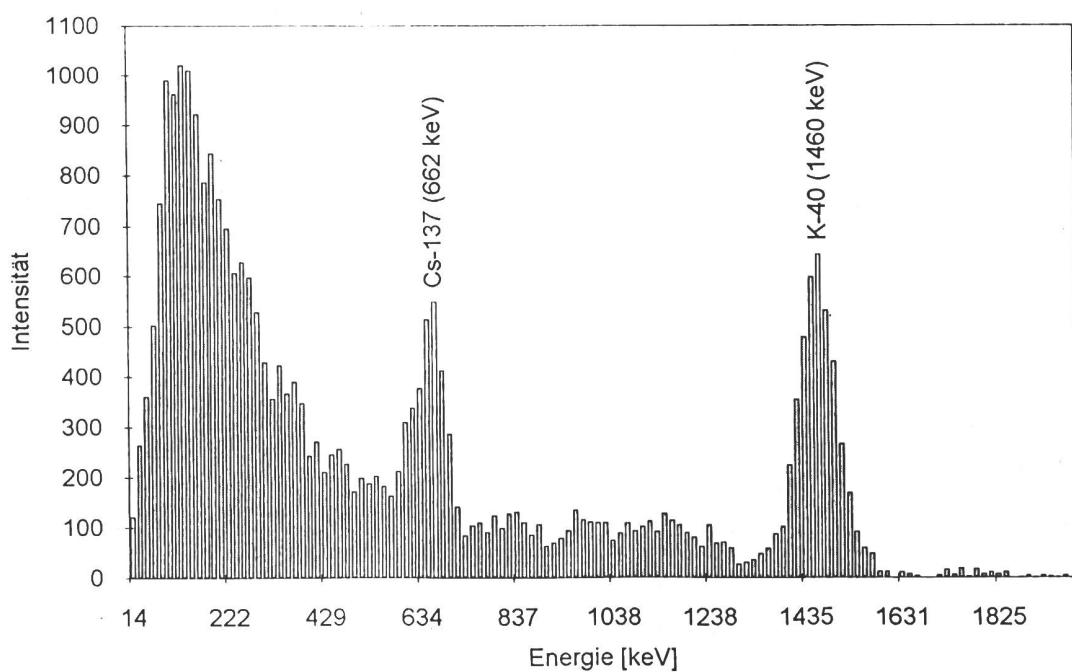
Im September 1995 wurden erstmals 16 Schülerinnen und 26 Schüler im Alter vom 16 bis 20 Jahren aus zwei Mittelschulen des Kantons Basel-Stadt mit dem Ganzkörperzähler im Kantonsspital Basel auf Caesium-137 und Kalium-40 untersucht. Die realistische Nachweigrenze für Caesium-137 liegt bei einer Messzeit von ca. 30 Min. bei etwa 25 Bq; die Messwerte < 25 Bq sind daher entsprechend unsicher. Für die Schüler ergaben sich Cäsium-137-Werte bis 40 <sup>1)</sup> (Mittel etwa 15), für die Schülerinnen bis 32 (Mittel etwa 13) Bq.

1) Bei einem Schüler, der sich regelmässig für längere Zeit in Skandinavien aufhält lag der <sup>137</sup>Cs-Wert bei 223 Bq. Dieser Wert liegt nach Auskunft des schwedischen Strahlenschutzinstitutes durchaus in der Norm für Einzelpersonen der skandinavischen Bevölkerung. Er wurde bei der Mittelwert-Berechnung nicht berücksichtigt.

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 Schüler entsprechen somit weniger als 0.0003 milli-Sievert pro Jahr. Demgegenüber beträgt die mittlere Jahressdosis durch das natürliche Kalium-40, das wie Caesium im Muskelgewebe eingebaut wird, ca. 0.2 milli-Sievert.

Tab. 1: Übersichtstabelle Ganzkörpermessungen Genf und Basel

Messung		Geburtsjahr	Gewicht (kg) Mittel (Bereich)	$^{137}\text{Cs}$ (Bq)	$^{40}\text{K}$ (Bq) Mittel	$^{40}\text{K}$ (Bq/kg) Mittel
Genf 1995	Mädchen	1977-1980	58 (46-74)	< 10	3300	57
	Knaben	1977-1979	69 (56-92)	< 10	4800	70
Basel 1995	Mädchen	1975-1979	63 (49-81)	< 32 (Mittel = 13)	3500	55
	Knaben	1975-1979	72 (55-86)	< 40 (Mittel = 15)	4900	68



Energiespektrum der Gamma-Strahlung eines Schülers aus dem Kanton Basel-Stadt mit deutlichem Cs-137-Peak (siehe Anmerkung 1)

## 3.15. Intercomparaison de la mesure d'activité d'un lait contaminé

J.-F. Valley <sup>1)</sup>, J.-J. Geering <sup>1)</sup>, M. Décombaz <sup>1)</sup>, H. Völkle <sup>2)</sup>, C. Wastiel <sup>1)</sup>

1) Institut de radiophysique appliquée, Centre universitaire, 1015 LAUSANNE

2) Section de surveillance de la radioactivité, (OFSP), Ch. du Musée 3, 1700 FRIBOURG

### 3.15.1. 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 1995 une intercomparaison de la mesure d'activité d'un lait contaminé.

L'objectif de cette intercomparaison est l'analyse de la consistance des mesures dans les conditions qui pourraient être rencontrées suite à un accident radiologique dans une centrale nucléaire, à savoir un échantillon de lait contaminé à l'iode-131 et au ruthénium-103. La mesure du potassium-40, d'origine naturelle, était également demandée.

Dix-neuf laboratoires, dont neuf laboratoires cantonaux, ont participé à l'intercomparaison.

### 3.15.2. Qualification des échantillons

Les activités des contaminants ont été choisies dans une gamme inférieure à la limite d'exemption. Le rapport d'activité entre l'iode-131 et le ruthénium-103 correspond à une situation accidentelle (comparable à un échantillon de lait en Suisse dix jours après l'accident de Tchernobyl).

Une quantité de 40 litres de lait de qualité Drink UHT a été stabilisée chimiquement par addition de 120 ml de formaldehyde (Fluka 47629). Les contaminants radioactifs ont été ajoutés; leurs formes chimiques étaient les suivantes :

- iodure de potassium (1,66 g KI par l de lait);
- chlorure de ruthénium (sans entraîneur).

L'homogénéisation a été effectuée par brassage mécanique. Après mélange, le conditionnement dans des bouteilles de plastic de 1 l avec vis étanche a été effectué.

Il a été recommandé aux participants d'agiter les récipients avant la mesure en vue de remédier à une possible précipitation.

L'incertitude sur la concentration radioactive est de 1,9 % pour le iode-131, 3,2 % pour le ruthénium-103 et de 3,8 % pour le potassium-40.

### 3.15.3. Résultats de l'intercomparaison

Sur les 19 laboratoires qui ont participé à l'intercomparaison, deux ont effectué la mesure avec un détecteur NaI (équipement de l'armée AC-85). Alors que dans un cas les contaminants n'ont pu être identifiés, le second laboratoire a identifié et mesuré correctement l'iode-131 (sa valeur étant située à - 3,9 % de la référence). Ni le

ruthénium-103 ni le potassium-40 n'ont pu être mesurés. Ceci confirme cependant l'utilité de cet équipement pour un cas simple.

Dans la poursuite de l'analyse, on se concentrera sur les laboratoires travaillant avec des détecteurs semi-conducteurs. Un laboratoire ayant effectué la mesure dans deux conditions géométriques différentes (mesures 10a et 10b), le nombre de mesures analysées est de 18. Les résultats sont présentés aux figures 1 à 3. Les participants sont identifiés par le numéro de l'échantillon.

On observe que sur les 18 mesures, 16 ont mis en évidence les 2 contaminants. Dans un cas (15), ni l'iode-131, ni le ruthénium-103 n'ont été observés; par contre une trace de césium-137 ( $0,13 \pm 0,12 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ ) a été indiquée. Dans le cas de la mesure 19, le ruthénium-103 n'a pas été reporté.

#### **3.15.4. Conclusions**

Presque tous les participants ont identifié les contaminants utilisés. Pour une majorité d'entre eux, les résultats fournis, comparés à la valeur de référence, sont jugés très satisfaisants.

Les mesures avec l'équipement de l'armée montrent que celui-ci permet de mettre en évidence les contaminants principaux, ici l'iode-131.

L'analyse du traitement des incertitudes a mis en évidence la nécessité d'un effort de clarification et d'uniformisation.

Nous remercions tous les participants pour leur collaboration.

Fig. 1. Résultats de l'intercomparaison pour l'iode-131

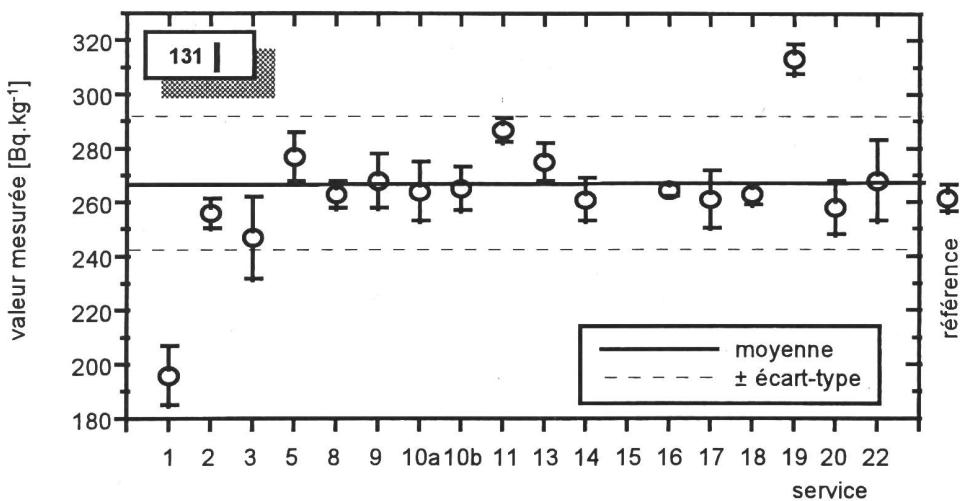


Fig. 2. Résultats de l'intercomparaison pour le ruthénium-103

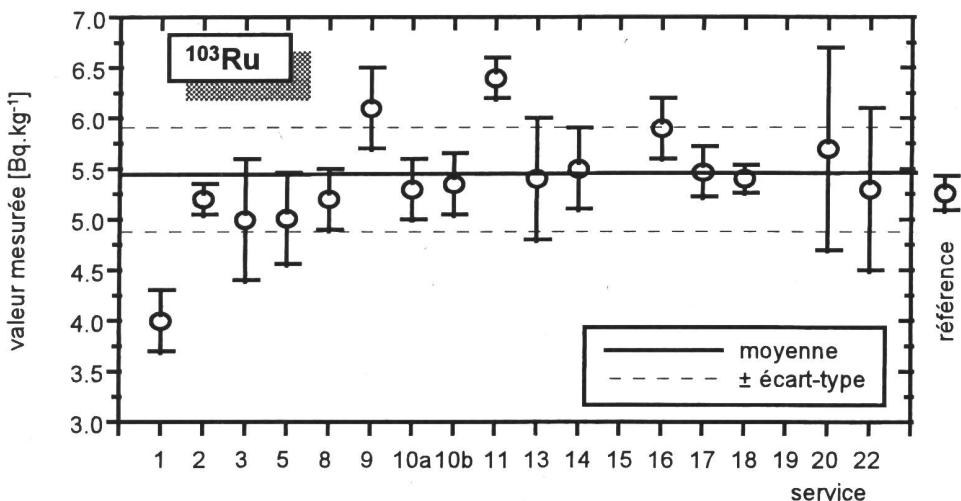


Fig. 3. Résultats de l'intercomparaison pour le potassium-40

