

<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>	- (2001)
<b>Rubrik:</b>	Umwelt

### **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:** 16.02.2026

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

## 4. Umwelt

### 4.1. Luft, Niederschläge, Flüsse; Abwässer von Klär- und Kehrichtverbrennungs-Anlagen

**H. Völkle, J.-L. Andrey, P. Beuret, G. Ferreri, A. Gurtner, M. Jungck, H. Surbeck**

Sektion Überwachung der Radioaktivität (SUER)  
Bundesamt für Gesundheit, ch du Musée 3, 1700 FRIBOURG

#### Zusammenfassung

In Luft und Niederschlägen sind ausser beim Tritium kaum noch künstliche Radionuklide nachweisbar. Das automatische Überwachungsnetz für die Luft RADAIR konnte in Betrieb genommen werden. Im Abwasser von Kläranlagen sind Tritium-Emittenten feststellbar.

#### 4.1.1. Luft

Die Überwachung der Luft erfolgt durch kontinuierlich gesammelte und monatlich gemessene Aerosolproben aus der Umgebung der Kernanlagen (Gösgen-Däniken, Leibstadt und Mühleberg) mit ca. 40 m<sup>3</sup>/h Durchsatz, durch Hoch-Volumensammler in Oberschrot/FR, Genf (beim CERN), Monte-Ceneri/TI, Güttingen/TG und Klingnau/AG sowie durch das aus 11 Stationen bestehende automatische RADAIR-Netz.

Für das Radionuklid <sup>137</sup>Cs werden für die drei Überwachungssysteme folgende Nachweisgrenzen erreicht:

- kleine Aerosolsammler, Monatsproben: 2 mikro-Bq/m<sup>3</sup>
- Hoch-Volumen-Aerosolsammler, Wochenproben: 0.5 mikro-Bq/m<sup>3</sup>
- RADAIR bei 30 min. Sammel- und Messzeit: 0.5 Bq/m<sup>3</sup>

#### Umgebung der Kernanlagen

Die Aerosolfilter aus der Umgebung der Kernkraftwerke Mühleberg, Leibstadt und Gösgen-Däniken zeigten im Berichtsjahr keine messbare künstliche Radioaktivität: <sup>137</sup>Cs und <sup>60</sup>Co unter der Nachweisgrenze von 2 bis 3 mikro-Bq/m<sup>3</sup>. Nachgewiesen werden konnten lediglich die natürlichen Radionuklide <sup>7</sup>Be und <sup>210</sup>Pb mit 2 bis 4 resp. 0.5 bis 6 milli-Bq/m<sup>3</sup> (s. auch Kap. 8).

#### Hoch-Volumen-Sammler

Die Filter der Hoch-Volumensammler zeigten beim CERN in 9 Wochen Beiträge bis 80 mikro-Bq/m<sup>3</sup> von <sup>24</sup>Na (t ½ 15 Std.) von den Beschleunigern dieses Institutes sowie in Klingnau/AG (5.4 km N des Paul Scherrer Institutes PSI) dreimal Spuren von <sup>65</sup>Zn (bis 2 mikro-Bq/m<sup>3</sup>); Immissionsgrenzwert CA/300 für <sup>65</sup>Zn = 1000 Bq/m<sup>3</sup>) von der Verbrennungsanlage des PSI. In den übrigen Wochen, sowie bei den andern Stationen wurden ausser vereinzelten <sup>137</sup>Cs-Spuren bis 7 mikro-Bq/m<sup>3</sup> (wahrscheinlich Resuspension von Tschernobyl-Ablagerungen nach längeren Trockenperioden) keine künstlichen Radionuklide nachgewiesen. Die natürlichen Radionuklide <sup>7</sup>Be und <sup>210</sup>Pb zeigten Werte zwischen 1 und 7 bzw. zwischen 0.1 und 2 milli-Bq/m<sup>3</sup> mit einem schwachen Jahresgang (Maximum im Sommer). Die Messwerte dieser fünf Stationen sind auf den Fig. 1 - 5 zusammengestellt. Die Station Oberschrot ist ab KW 36 wegen Umbau ausser Betrieb.

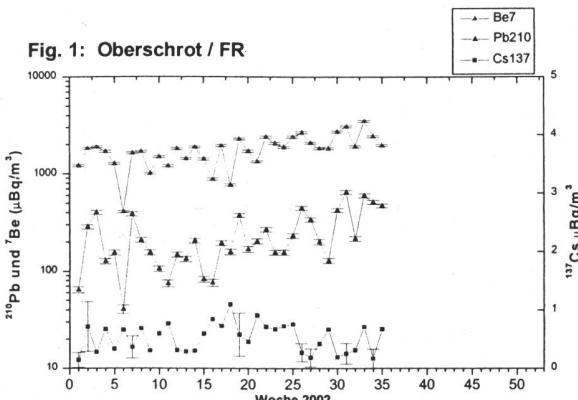


Fig. 2: HV2 Monte-Ceneri / TI

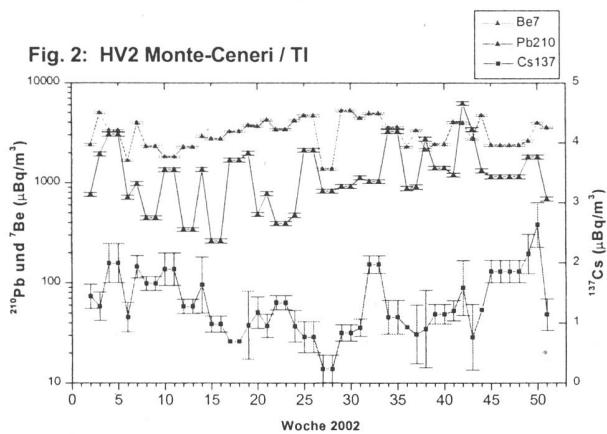


Fig. 3: Güttingen / TG

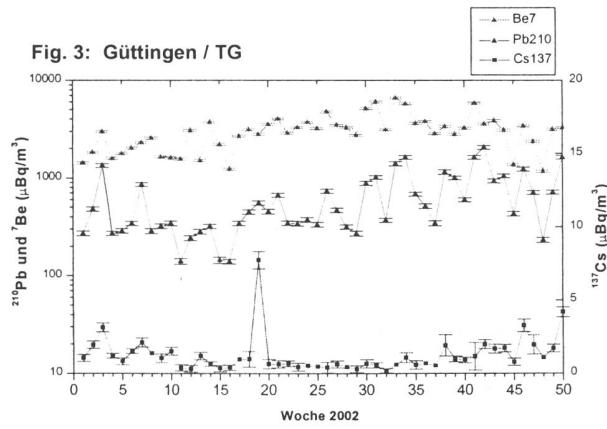


Fig. 4: CERN / GE

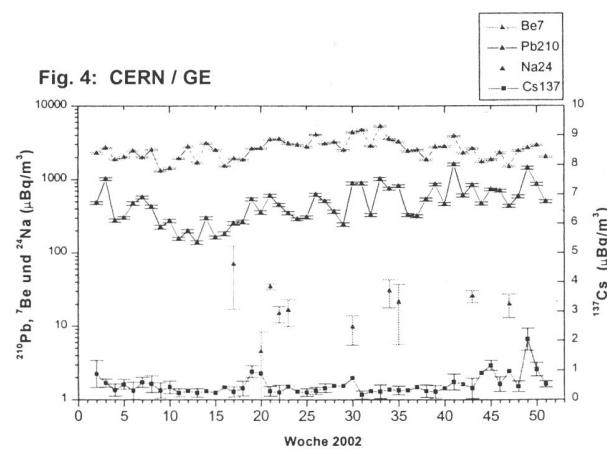
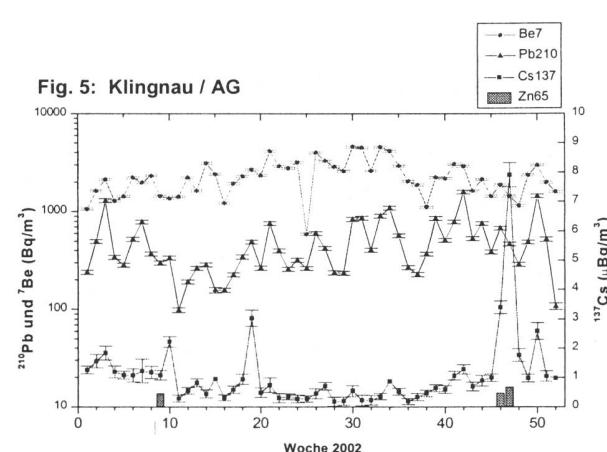


Fig. 5: Klingnau / AG



### Figuren 1 bis 5:

High-Volume-Sampler-Stationen: natürlich (linke Skala) und künstliche (rechte Skala) Radionuklide

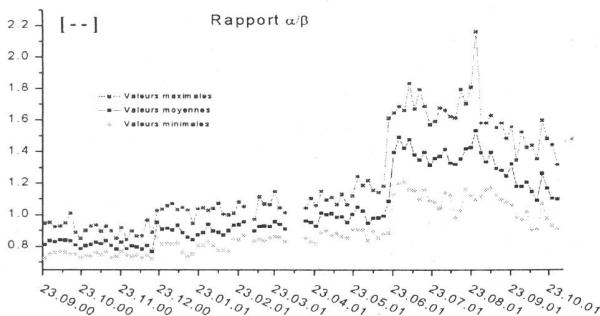
### RADAIR. Netz zur automatischen Überwachung der Luft

Mit RADAIR, dem automatischen Netz zur Überwachung der Radioaktivität der Luft besitzt das Bundesamt für Gesundheit (BAG) ein zuverlässiges Instrument um eine gefährliche Zunahme der Radioaktivität der Luft rasch nachzuweisen. Dank der Kompensation der natürlichen Radioaktivität kann bei der künstlichen Radioaktivität eine Zunahme von 0.5 Bq/m<sup>3</sup> bereits nach einer halben Stunde festgestellt werden. Die 11 Monitore vom Typ FHT 59 S an den Standorten Fribourg, La Chaux-de-Fonds/NE, Genf-CERN, Sitten/VS, Jungfraujoch/VS, Lugano/TI, Weissfluhjoch-Davos/GR, Vaduz/FL, Güttingen/TG, Villigen-PSI/AG und Basel messen kontinuierlich die Alpha- und Beta-Aktivität der auf einem Filterband gesammelten Aerosole und berechnen daraus mit dem  $\alpha/\beta$ -Differenzverfahren den Anteil der künstlichen Radioaktivität (Messbereich: 0.3 bis  $5 \times 10^5$  Bq/m<sup>3</sup>). Die Daten werden alle 30 Minuten an die Zentrale in Fribourg übermittelt. Beim Überschreiten vorgeählter Warnschwellen (1, 5 und 30 Bq/m<sup>3</sup>) werden Alarne ausgelöst, von denen der oberste (30 Bq/m<sup>3</sup>) automatisch auch an die Nationale Alarmzentrale (NAZ) in Zürich, die über einen Pikettdienst verfügt, weitergeleitet wird. An drei Standorten (Fribourg, Lugano und Villigen-PSI) befinden sich zusätzlich automatische Jodmonitore (für das gasförmige  $^{131}\text{I}$ ) vom Typ FHT 1700 (Messbereich: 1 bis  $5 \times 10^5$  Bq·h/m<sup>3</sup>) und an einer Stelle (Fribourg) ein nuklidspezifischer Monitor mit Ge-Detektor vom Typ FHT 59 N1 (Nachweisgrenze 0.01 Bq/m<sup>3</sup>), der jeweils über 2 Stunden ein Gammaspektrum der gesammelten Aerosole aufnimmt, und somit laufend auch das Nuklidgemisch ermittelt. Das RADAIR- $\alpha/\beta$ -Messnetz wurde nach einer Testperiode von einigen Jahren am 4. Juli 2001 offiziell in Betrieb genommen. Anlässlich eines Seminars wurden von Kollegen aus Frankreich und Deutschland die Überwachungssysteme dieser beiden Länder vorgestellt. Anhand eines Videos und mittels on-line-Präsentation wurden anschliessend Konzept, Aufbau, Funktion und Datenverarbeitung von RADAIR durch Mitarbeiter der SUER präsentiert.

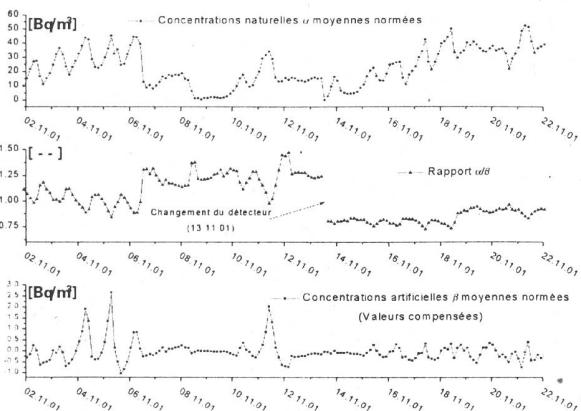
Die Datenzentrale bei der Sektion Überwachung der Radioaktivität des BAG in Fribourg sammelt die Daten regelmässig über ISDN, analysierte die Werte und erzeugt bei Störungen oder Überschreitungen der Warnschwellen entsprechende Meldungen an die Betreuer (z.B. über Pager) bzw. an die NAZ. Die Software wurde nach Vorgaben der SUER(BAG) von der Firma Abissa Informatique SA erstellt. Die externen Benutzer (NAZ, PSI und eine Amtstelle im Fürstentum Liechtenstein) haben ebenfalls Zugriff zu den Daten in numerischer und graphischer Form. Die Mitarbeiter der SUER haben

verschiedene Möglichkeiten der Ferndiagnose bzw. Fernsteuerung der Monitore, der Datenkorrektur und -Validierung sowie für Datenkompression und Auswertung, für Korrelationsrechnungen und graphischen Darstellungen.

Seit Inbetriebnahme wurde vom RADAIR-Netz keine künstliche Aktivität über  $0.7 \text{ Bq/m}^3$  festgestellt. Dank dem  $\alpha/\beta$ -Differenzverfahren kann diese Nachweisgrenze für die künstliche Aktivität auch bei hohen Werten und grossen zeitlichen Variationen der natürlichen Radioaktivität eingehalten werden. Die natürliche Radioaktivität der Luft stammt von den Radonfolgeprodukten. Radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) seinerseits entsteht beim Zerfall des überall im Boden vorhandenen  $^{226}\text{Ra}$ ; sein Austritt in die Luft wird stark vom Zustand des Bodens (Wassergehalt, Temperatur etc.) und von meteorologischen Bedingungen (Inversionslagen, Wind etc.) beeinflusst. Der Maximalwert der natürlichen Radioaktivität wurde mit  $56 \text{ Bq/m}^3$  am 23. November in Sitten gemessen.



**Fig. 6:** Verhältnis der  $\alpha$ - zur  $\beta$ -Aktivität gemessen mit dem Monitor FHT 59 PC in Sitten /VS. Zu erkennen ist der Anstieg des  $\alpha/\beta$ -Verhältnisses ab Juni infolge Zählerdefekt



**Fig. 7:** Am 13.11.01 wurde Zähler beim Monitor in Sitten /VS ausgewechselt. In der Folge hat sich das  $\alpha/\beta$ -Verhältnis normalisiert, die Schwankungen wurden geringer. Auch die berechnete netto- $\beta$ -Aktivität zeigt nicht mehr die grossen vom Tagesgang beeinflussten Variationen wie vor dem Detektorwechsel.

Im Berichtsjahr musste beim Monitor von Sitten der Zähler am 13. November ausgewechselt werden. Wie auf der Fig. 6 ersichtlich, driftete das  $\alpha/\beta$ -Verhältnis infolge des defekten Zählers immer mehr ab und die  $\alpha/\beta$ -Kompensation wurde zunehmend schlechter. Das  $\alpha/\beta$ -Verhältnis das normalerweise etwa 0.8 beträgt stieg ab Juni deutlich an; ebenso wurde der Schwankungsbereich grösser. Seitdem der Zähler ausgewechselt ist, hat sich – wie aus der Fig. 7 (oberer Teil) zu entnehmen ist – das  $\alpha/\beta$ -Verhältnis wieder normalisiert und die Netto- $\beta$ -Aktivität wird nicht mehr von der starken Schwankungen (Tagesgang) der natürlichen Radioaktivität beeinflusst (unterer Teil Fig. 2).

Im Laufe des Jahres wurden die drei Jod-Monitore in Fribourg, Villigen-PSI und Lugano in Betrieb genommen. Für die Verarbeitung der Daten musste die Software der Datenzentrale erweitert werden. Gegenwärtig wird eine Testversion der neuen Software probeweise parallel zum bestehenden Programm betrieben.

Für das gesamte RADAIR-Netz betrug die Verfügbarkeit im Berichtsjahr über 90 Prozent; auch der nuklidspezifische Monitor in Fribourg zeigt keine Aktivitätswerte über der Nachweisgrenze von  $0.01 \text{ Bq/m}^3$ .

#### 4.1.2. Niederschläge

Niederschlagsproben werden bei den Kernanlagen Mühleberg, Leibstadt und Gösgen-Däniken sowie in der übrigen Schweiz (Davos, Cernier/NE, Fribourg, Locarno-Monti und La Valsainte/FR) gesammelt und monatlich gemessen. Sie zeigten keine künstliche Radioaktivität, d.h. der  $^{137}\text{Cs}$ -Gehalt lag unter der Erkennungsgrenze von 3 bis  $7 \text{ mBq/l}$ . Das natürliche  $^7\text{Be}$  zeigte zwischen 0.2 und  $2 \text{ Bq/l}$ . Der Tritiumgehalt der Niederschlagsproben aus der Umgebung der KKW Mühleberg, Gösgen-Däniken und Leibstadt sowie von Fribourg lag bei maximal  $5 \text{ Bq/l}$ .

#### Umgebung von Tritium-verarbeitenden Betrieben

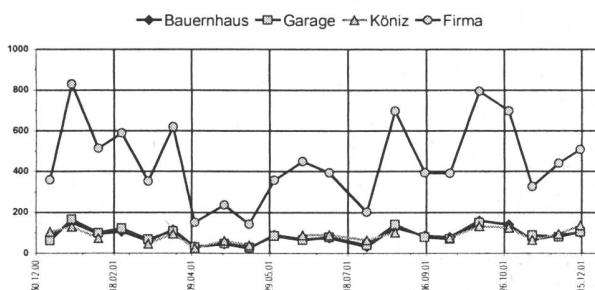
(siehe auch Kap. 4.2 und 9.1)

In La Chaux-de-Fonds, Teufen/AR (Firma RCT) und bei Niederwangen/BE (Firma mb microtec), wo sich Betriebe befinden, die Tritium verarbeiten, werden die Niederschläge anhand monatlicher Sammelproben (Niederwangen: 14-täglich, Fig. 8) auf Tritium überwacht. Sie ergaben:

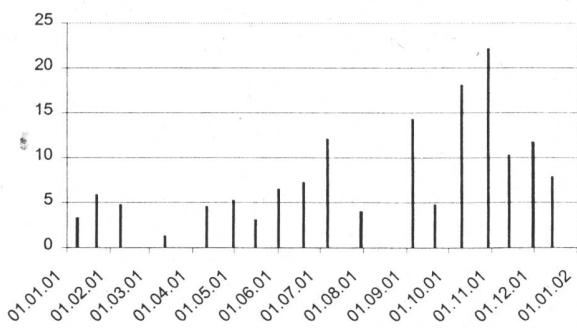
**Tab. 1:** Niederschläge Umgebung Tritium-Verarbeitende Betriebe

Ort	Stelle	Wertebereich (Bq/l)	Mittel (Bq/l)
La Chaux-de-Fonds Teufen/AR	Ancien Moulins 65 m E Firma TCT	12 – 100 190 – 2340	40 500
Niederwangen/BE	Stelle	Wertebereich (Bq/l)	Median (Bq/l)
Bauernhaus Garage Gemeinde Köniz Firma Schär	300 m SE der Firma 200 m SW der Firma 180 m NNW der Firma 320 m NE der Firma	26 – 160 60 – 150 40 – 137 140 – 790	86 80 91 390

In Niederwangen wird auch der Tritiumgehalt der Luftfeuchte im 14-tagesrhythmus gemessen (Fig. 9). Der Wertebereich lag zwischen 3 und 17 Bq/m<sup>3</sup> bei einem Medianwert von 7 Bq/m<sup>3</sup> (entsprechend 0.3 % des Immissionsgrenzwertes nach Art. 102<sup>1</sup> der StSV).



**Fig. 8:** Tritium-Aktivität in Niederschlagsproben aus Niederwangen /BE in Bq/l



**Fig. 9:** Tritium-Aktivität in der Luftfeuchte (Bq/m<sup>3</sup> Luft) aus Niederwangen /BE

#### 4.1.3. Flüsse

Monats-Sammelproben aus den Flüssen Ticino bei Contone und Rhone bei Porte-du-Sex/VS und Chancy/GE zeigten keine künstlichen Gamma-Strahler: <sup>137</sup>Cs unter der Erkennungsgrenze von 2 bis 5 milli-Bq/l. Die Tritiumwerte dieser Proben sowie aus der Aare oberhalb des KKW Mühleberg ergaben bis 2 Bq/l. Im Rhein unterhalb Basel lag

das Mittel direkt unterhalb Basel bei  $2.7 \pm 1.7$  Bq/l (Messung KL-BS) und bei Weil/D bei  $2.2 \pm 1.1$  (Messung SUER). Für die Zusammenstellung der Tritium-Messwerte in Niederschlägen und Flüssen: siehe Kap. 4.2. und Tab. 3.

#### 4.1.4. Kläranlagen (ARA) und Rauchgaswaschwasser aus der KVA Basel-Stadt

Die Kläranlagen der Agglomerationen Zürich, Basel, Bern, Biel, Lausanne, La Chaux-de-Fonds und der Gemeinde Teufen werden durch verschiedene Labors auf Tritium und auf <sup>131</sup>I untersucht. Tritium stammt aus der Uhrenindustrie bzw. von der Verbrennung tritium-haltiger Abfälle in der Kehrichtverbrennung, Jod aus medizinischen Anwendungen. Die folgende Tabelle gibt eine Übersicht über die Ergebnisse. Die teilweise sehr hohen Spitzenwerte im Rauchgaswaschwasser der KVA Basel konnten trotz intensiver Abklärungen mit dem KL-BS<sup>1)</sup> und der KVA nicht geklärt werden. Die Vermutung liegt nahe, dass es sich um Uhren mit Tritium-Leuchtziffern handelt, die in den Haushaltkehricht geworfen wurden. Diese Erklärung dürfte auch für die ARA Biel zutreffen. Bei der ARA der Region La Chaux-de-Fonds handelt es sich um Tritium-haltige Abfälle, die in der Kehrichtverbrennungsanlage verarbeitet werden. Die Rauchgaswaschwasser dieser Anlage gelangen ebenfalls in die ARA. Da im vergangenen Jahr die Durchflussmessung defekt war, wurde für die Abschätzung der Tritium-Fracht am Ausfluss der ARA von La Chaux-de-Fonds ein Mittelwert der letzten 6 Jahre verwendet:  $610'000 \pm 40'000$  m<sup>3</sup>/Monat. Für 2001 ergibt sich so eine Tritiumfracht von 3.7 TBq. Der Tritiumabfluss über die ARA La Chaux-de-Fonds hat in den letzten Jahren stetig abgenommen: 1990: 42; 2000: 4.2 TBq/Jahr. Die Ergebnisse der Messungen in den Kläranlagen und im Rauchgaswaschwasser der KVA von Basel sind in der folgenden Tabelle in Bq/l zusammenge stellt:

1) Kantolales Laboratorium Basel-Stadt

**Tab. 2** Tritium und Jod im Abwasser von Kehrichtverbrennung und Kläranlagen

Stadt	Labor	Isotop	Anzahl	Wertebereich	Median	Mittelwert
ARA Basel	KL-BS	<sup>131</sup> I	40	< 0.5	—	—
		<sup>3</sup> H	40	1 - 495	3.4	40
KVA Basel		<sup>131</sup> I	72	< 0.2 - 6	—	—
		<sup>3</sup> H	72	250 - 570'000	1170	23'000
ARA Bern	Labor Spiez	<sup>131</sup> I	25	< 0.1 - 0.6	—	—
	SUER	<sup>3</sup> H	12	2 - 11	—	6.4
ARA Biel	SUER	<sup>3</sup> H	48	12 - 2400	31	136
ARA La Chaux-de-Fonds	SUER	<sup>3</sup> H	11	180 - 2300	—	500
ARA Lausanne	IRA	<sup>131</sup> I	52	< 0.8	—	—
		<sup>3</sup> H	12	< 3 - 11	—	—
ARA Zürich	EAWAG	<sup>131</sup> I	47	0.2 - 4.4	—	—
	SUER	<sup>3</sup> H	13	1.9 - 3.7	—	2.7

**Tab. 3** Tritium-Messungen der Niederschläge und Flüsse 1996 - 2001 Zusammenstellung der Tritiumwerte in den Flüssen und Niederschlägen  
(fettgedruckt: Medianwert pro Jahr in Bq/l, in Klammern: Wertebereich der Monatswerte in Bq/l)

Station / Jahr	1996	1997	1998	1999	2000	2001
Regen	Basel <sup>1)</sup>	<b>3.8</b> (2.4-6.0)	<b>2.9</b> (2.2-4.9)	<b>2.2</b> (1.9-5.2)	<b>2.9</b> (1.2-3.4)	<b>2.1</b> (1.5-3.6)
	Bern <sup>1)</sup>	<b>4.4</b> (3.4-5.5)	<b>6.5</b> (2.9-21)	<b>3.6</b> (1.8-7.5)	<b>3.5</b> (2.2-5.7)	<b>4.1</b> (1.2-16)
	Grimsel/BE <sup>1)</sup>	<b>2.4</b> (1.3-4.1)	<b>1.7</b> (0.8-3.4)	<b>1.2</b> (0.8-2.9)	<b>1.4</b> (0.6-2.2)	<b>0.9</b> (0.5-1.8)
	Guttannen/BE <sup>1)</sup>	<b>2.6</b> (1.3-3.5)	<b>1.6</b> (0.6-2.5)	<b>1.5</b> (0.9-2.9)	<b>1.3</b> (0.9-2.4)	<b>1.1</b> (0.6-2.0)
	Meiringen/BE <sup>1)</sup>	<b>2.3</b> (0.8-3.9)	<b>1.6</b> (0.6-2.3)	<b>1.2</b> (0.9-3.0)	<b>1.5</b> (1.2-2.5)	<b>1.5</b> (0.7-2.4)
	Vaduz/FL <sup>1)</sup>	<b>2.5</b> (1.7-4.9)	<b>2.0</b> (0.7-3.9)	<b>1.7</b> (1.1-2.7)	<b>1.7</b> (1.2-3.2)	<b>1.6</b> (0.7-2.4)
	Nyon/VD <sup>1)</sup>	<b>2.6</b> (1.4-4.5)	<b>2.0</b> (1.2-2.8)	<b>1.7</b> (1.2-2.3)	<b>1.9</b> (0.8-3.2)	<b>1.2</b> (0.8-2.4)
	La Brévine/NE <sup>1)</sup>	<b>1.8</b> (1.0-3.8)	<b>1.6</b> (0.8-2.6)	<b>1.2</b> (0.9-2.9)	<b>1.4</b> (0.7-3.1)	<b>1.2</b> (0.7-2.8)
	Locarno <sup>1)</sup>	<b>1.5</b> (0.6-2.3)	<b>1.2</b> (0.6-1.5)	<b>1.0</b> (0.7-1.9)	<b>1.1</b> (0.6-2.2)	<b>1.0</b> (0.5-1.5)
	Fribourg <sup>2)</sup>	<b>3.2</b> (1.4-5.2)	<b>2.8</b> (1.4-8.0)	<b>1.9</b> (0.7-2.7)	<b>1.7</b> (0.9-5.2)	<b>1.4</b> (0.4-1.8)
	Leibstadt/AG <sup>2)</sup>	<b>3.3</b> (2.4-4.7)	<b>4.5</b> (3.0-7.5)	<b>2.4</b> (1.9-3.7)	<b>2.6</b> (1.6-3.6)	<b>2.9</b> (0.5-8.9)
Flüsse	Gösgen/SO <sup>2)</sup>	<b>3.9</b> (2.2-13)	<b>4.7</b> (3.0-8.3)	<b>2.6</b> (1.6-3.4)	<b>2.4</b> (1.7-4.7)	<b>2.5</b> (0.7-10)
	Mühleberg/BE <sup>2)</sup>	<b>3.5</b> (1.9-4.7)	<b>3.7</b> (1.7-134)	<b>2.4</b> (2.0-4.9)	<b>2.2</b> (1.5-4.1)	<b>1.8</b> (0.7-2.9)
	Aare beim KKM <sup>2)</sup>	<b>2.7</b> (2.1-4.0)	<b>2.3</b> (1.7-2.5)	<b>1.9</b> (1.5-2.6)	<b>1.9</b> (1.5-2.6)	<b>1.7</b> (1.1-2.1)
	Aare bei Brugg <sup>1)</sup>	<b>4.2</b> (2.6-19)	<b>3.8</b> (1.7-29)	<b>3.5</b> (1.2-16)	<b>3.5</b> (2.6-9.1)	<b>2.8</b> (1.7-8.8)
	Ticino/Contone/TI <sup>2)</sup>	<b>1.8</b> (1.1-2.5)	<b>2.1</b> (1.3-6.7)	<b>1.4</b> (0.7-1.8)	<b>1.4</b> (0.8-2.1)	<b>1.0</b> (0.7-1.8)
	Rhône/P. du Scex/VS <sup>2)</sup>	<b>2.2</b> (1.4-2.9)	<b>2.8</b> (1.7-4.1)	<b>1.7</b> (1.1-2.1)	<b>1.8</b> (0.8-2.5)	<b>1.1</b> (0.8-1.8)
	Rhône/Chancy/GE <sup>2)</sup>	<b>3.4</b> (2.7-3.9)	<b>3.8</b> (3.0-8.2)	<b>2.3</b> (1.9-3.9)	<b>2.3</b> (1.6-3.0)	<b>1.6</b> (0.8-2.3)
	Doubs/St-Ursanne/JU <sup>2)</sup>	<b>28</b> (18 - 38)	<b>24</b> (9.8-43)	<b>16</b> (7 - 37)	<b>7.0</b> (4.6-8.3)	—
	Rhein/Weil (unt.Basel) <sup>2)</sup>	<b>3.1</b> (1.8-3.8)	<b>2.5</b> (2.1-3.6)	<b>2.5</b> (1.5-4.7)	<b>2.7</b> (1.8-4.6)	<b>2.3</b> (1.3-5.2)
						<b>2.0</b> (1.1-5.3)

1) Messung Universität Bern (U. Schotterer & H. Bürki), ± (0.1 - 0.3) Bq/l; (ohne Messwerte von 2001)

2) Messung SUER/BAG (H. Völkle & A. Gurnter), ± (0.4 - 0.8) Bq/l

Alle Tritiumkonzentrationen der Niederschläge des Jahres 2001 liegen unter denen des Vorjahres. Zudem ist wieder der "klassische" Jahresgang mit dem Minimum der Konzentrationen in den Wintermonaten bei allen Stationen sichtbar. Der über-regionale Einfluss von KKW's und Wiederaufbereitungsanlagen war im letzten Jahr offensichtlich sehr gering.

## 4.2. Radioaktivität in aquatischen Systemen

**J. Beer, E. Meili, E. Grieder**

EAWAG, Abteilung SURF/RCT  
8600 DÜBENDORF

### Zusammenfassung

In Aare und Rhein werden Monatsproben von Wasser und Sediment mittels Gammaspektrometrie auf Radioaktivität untersucht. In den Wasserproben wurden hauptsächlich Aktivitäten der Nuklide  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$  und  $^{137}\text{Cs}$  gemessen, in den Sedimenten auch  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$ . Im Sediment von Hagneck unterhalb von Mühleberg wurde in der Novemberprobe eine deutlich höhere Aktivität von  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{60}\text{Co}$  gemessen. Zudem wurde  $^{131}\text{I}$  festgestellt. In der entsprechenden Wasserprobe lagen die Aktivitäten dieser Radionuklide unter der Nachweisgrenze.

In den Proben des Rheins oberhalb des Aarezuflusses konnten keine künstlichen Radionuklide nachgewiesen werden.

Bei der Kontrolle von Grundwasser der Pumpstationen Aarberg, Pratteln und Döttingen wurde in einer Probe von Pratteln eine Aktivität von  $0.28 \pm 0.1 \text{ Bq}/\text{m}^3$   $^{54}\text{Mn}$  und  $0.31 \pm 0.1 \text{ Bq}/\text{m}^3$   $^{58}\text{Co}$  festgestellt.

Im Wasser der Kläranlage von Zürich wurden einzig Aktivitäten von  $^{40}\text{K}$  gemessen, das natürlich vorkommt.

### 4.2.1 Ziele

Künstliche Radionuklide gelangen insbesondere aus Kernanlagen, Industriebetrieben und Spitätern in den Wasserkreislauf. Die kontinuierliche Überwachung der Radioaktivität dient der frühzeitigen Erkennung von Änderungen in den Abgaben der genannten Quellen und der Bilanzierung der Gesamtkaktivität, welche die Schweiz im Rhein verlässt.

### 4.2.2 Methoden

Die Bestimmung der Aktivitäten der überwachten Radionuklide erfolgt mittels Gammaspektroskopie. Sedimente, Fisch- und Pflanzenproben werden gefriergetrocknet und die Aktivität pro Trockengewicht erhoben. In den grossvolumigen monatlichen Sammelproben von Hagneck, Klingnau und Pratteln werden die Radionuklide durch eine Eisenhydroxidfällung aufkonzentriert und dann gemessen. Die Proben der Kläranlage Zürich sowie die Rheinproben von Diepoldsau und Reckingen

werden direkt gemessen. Zur Bestimmung der Tritiumkonzentrationen wird ein Flüssigszintillationszähler verwendet.

### 4.2.3 Zusammenfassung der Ergebnisse

#### Kernanlagen

#### Wasserproben

Entlang von Aare und Rhein werden an drei Standorten monatliche abflussproportionale Wasserproben genommen. Diese Probenahmestandorte liegen unterhalb der Kernkraftwerke. So werden bei Hagneck die Abgaben vom Kernkraftwerk Mühleberg erfasst, bei Klingnau diejenigen von Mühleberg, Beznau und Gösgen sowie bei Pratteln die Abgabensumme von Mühleberg, Beznau, Gösgen und Leibstadt. Je nach Abfluss werden pro Tag 20-40 einzelne Proben genommen, was Monatsproben von 50-100 Litern ergibt. Die automatischen Probenahmesysteme mussten den einzelnen Standorten angepasst werden, wobei immer wieder Funktionsstörungen auftraten. Die meisten Probleme konnten im Laufe des Jahres behoben werden, was in Zukunft genauere Ergebnisse erwarten lässt.

Die Figuren 1 und 2 zeigen die gemessenen und hochgerechneten Aktivitäten (d.h. gemessene Aktivität  $\times$  mittlerer monatlicher Abfluss  $\times$  Probenahmezeit) der Kobaltisotope entlang der Fließstrecke Aare-Rhein im Verhältnis zu den abgegebenen Summen der Kernkraftwerke.

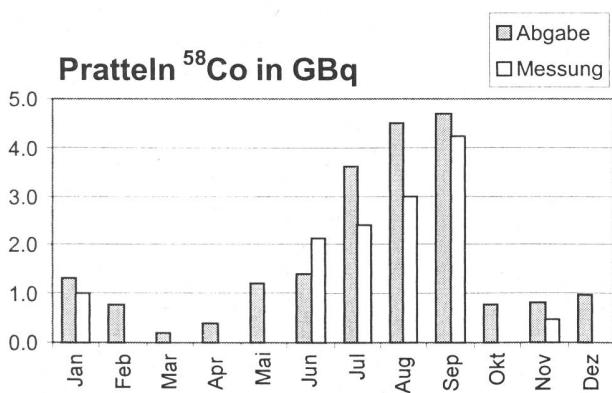
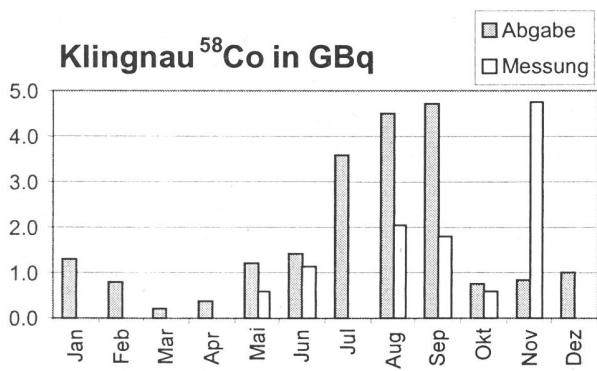
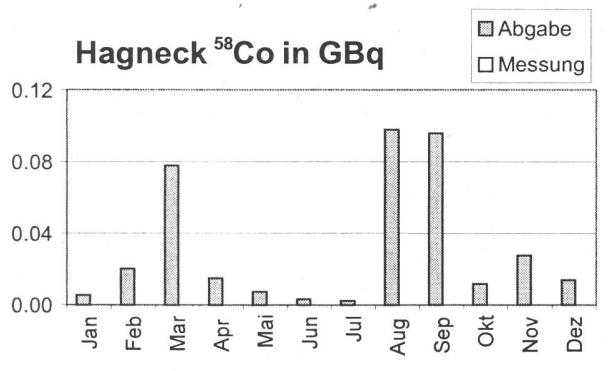
$^{58}\text{Co}$  wird hauptsächlich von Beznau abgegeben und kommt deshalb nur in Proben von Klingnau und Pratteln vor. An beiden Standorten entspricht die hochgerechnete Aktivität pro Monat meist einem Anteil von 50-80% der Abgaben (Ausnahme = Novemberwert von Klingnau). Ein Teil der abgegebenen Nuklide wird an Partikel gebunden und sedimentiert in ruhigeren Teilen der Gewässer (z.B. Klingnauer Stausee). Zudem wird erfahrungsge-mäss ein kleiner Teil der Nuklide nicht erfasst, weil sie mit der angewandten Methode nicht ausgefällt werden können. Betrachtet man den Rhein bei Basel, so ergeben die Messungen, dass etwas mehr als die Hälfte der abgegebenen Fracht mit dem Fluss die Schweiz verlässt.

$^{60}\text{Co}$  wird hauptsächlich von den Kernkraftwerken Mühleberg und Beznau abgegeben. Vor allem in den Monatsproben von Hagneck findet man  $^{60}\text{Co}$ , wobei die hochgerechneten Aktivitäten meist grösser sind als diejenigen der Abgaben. Doch wo flussabwärts  $^{60}\text{Co}$  in der Monatsprobe enthalten war, stimmen die hochgerechneten gemessenen Werte recht gut mit den Abgaben überein.

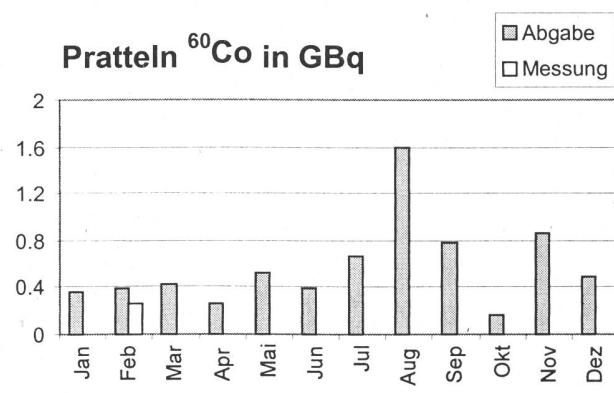
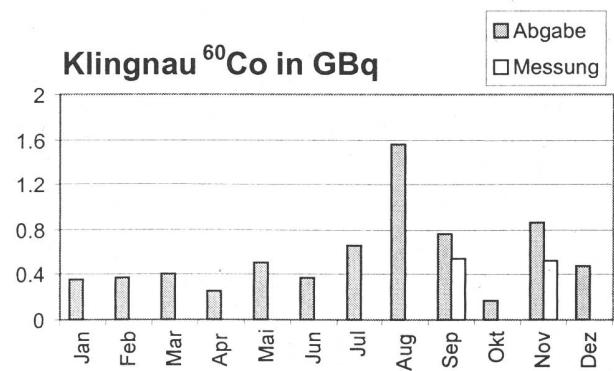
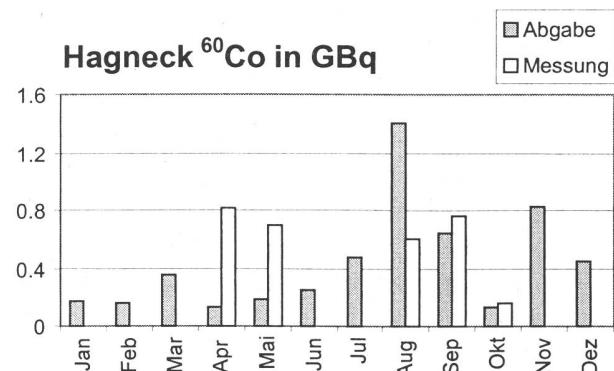
Die hochgerechneten Aktivitäten von  $^{137}\text{Cs}$  liegen fast immer über den Abgaben der Kernkraftwerke. Dies ist wahrscheinlich nach wie vor auf einen

Eintrag über Erosion vor allem vom Reaktorunfall von Tschernobyl zurückzuführen. Das zeigt sich auch darin, dass bei Hagneck rund die Hälfte des abgegebenen  $^{137}\text{Cs}$  erfasst wird, während bei Pratteln die Fracht etwa doppelt so gross ist wie die entsprechenden Abgaben aller Kernkraftwerke.

$^{54}\text{Mn}$  wurde nur in einer einzigen Wasserprobe von Hagneck gemessen. In allen anderen Proben wurde weder  $^{54}\text{Mn}$  noch  $^{65}\text{Zn}$  nachgewiesen.



**Fig 1:**  $^{58}\text{Co}$ -Aktivität an den flussabwärts aufeinanderfolgenden Standorte Hagneck, Klingnau und Pratteln. Vergleich der Abgaben (dunkel, Summe der Abgaben der flussaufwärts liegenden Kraftwerke) mit den aufgrund der Abflusswerte hochgerechneten Messungen (hell). Aufgrund technischer Probleme fehlen die Proben von Hagneck/Klingnau für die Monate Januar-März/Januar und Februar. Bei den anderen fehlenden Angaben liegen die Messwerte unter der Nachweisgrenze.

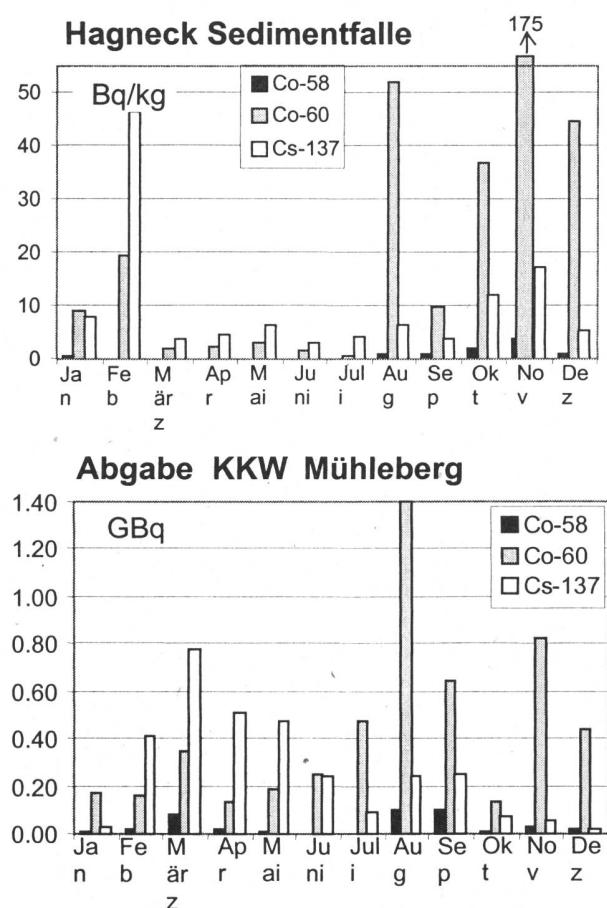


**Fig 2:** Vergleich der Aktivität von  $^{60}\text{Co}$  der flussabwärts aufeinanderfolgenden Standorte Hagneck, Klingnau und Pratteln. Aufgrund technischer Probleme fehlen die Proben von Hagneck/Klingnau für die Monate Januar-März/Januar und Februar. Hell die gemessenen Aktivitäten der Sammelproben, welche mit den Abflusswerten hochgerechnet wurden. Dunkel die Abgabensummen der zugehörigen Kernkraftwerke. (siehe Abschnitt 1 dieses Kapitels)

## Sedimentproben

Ein Teil der abgegebenen Radionuklide lagert sich an Partikel (z.B. Tonmineralien) an. Solche Teilchen werden je nach Fliessgeschwindigkeit der Flüsse unterschiedlich weit transportiert. Sie können in ruhigeren Zonen sedimentieren, aber aus Sedimenten auch wieder aufgewirbelt oder gelöst werden. An den drei Standorten Hagneck, Klingnau und Pratteln werden deshalb auch monatliche Sedimentproben gesammelt. In diesen Proben findet sich das gesamte Spektrum der abgegebenen und gammaspektrometrisch messbaren Nuklide wieder.

Bei den Sedimentproben von Hagneck (Figur 3) zeigen sich die höheren Abgaben der Monate August-Dezember im  $^{60}\text{Co}$  gut. Im November wurde eine Aktivität von  $175\pm27$  Bq/kg Trockensediment gemessen. In den Monaten November und Dezember wurde auch  $^{131}\text{I}$  mit einer Aktivität von  $73.9\pm15$  und  $14.5\pm2.8$  Bq/kg gemessen.

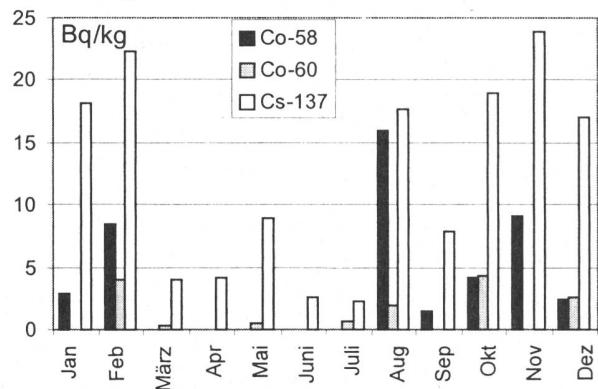


**Fig 3:** Gemessene Aktivitäten im Sedimentfallenmaterial von Hagneck und die entsprechenden Abgaben des KKW Mühleberg.

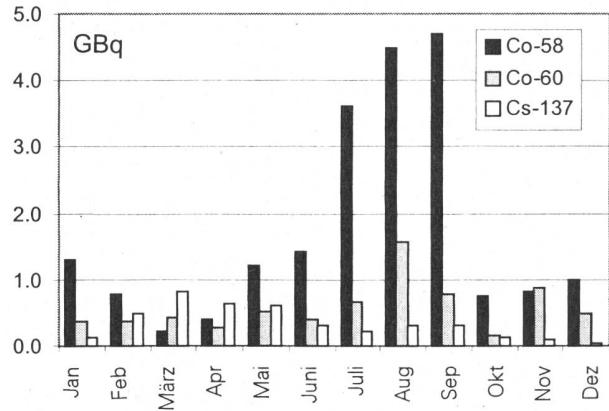
Vor der Probenahmestation von Klingnau fliessst das Aarewasser durch den Klingnauer Staausee, wo

eine erhöhte Sedimentation möglich ist. In der Figur 4 sieht man, dass die verschiedenen Radionuklide in diesen Sedimentproben vorhanden sind, doch zeigen die Abgaben und Sedimentdaten nur eine geringe Korrelation. Auch in diesem Sediment wurde im November und Dezember  $^{131}\text{I}$  ( $31.8\pm9.6$  Bq/kg und  $7.2\pm0.2$  Bq/kg) gemessen. Bei einer Halbwertszeit von 7 Tagen ergeben diese Werte für die Strecke Hagneck Klingnau eine Fliessdauer von etwa 10 Tagen.

## Klingnau Sedimentfalle



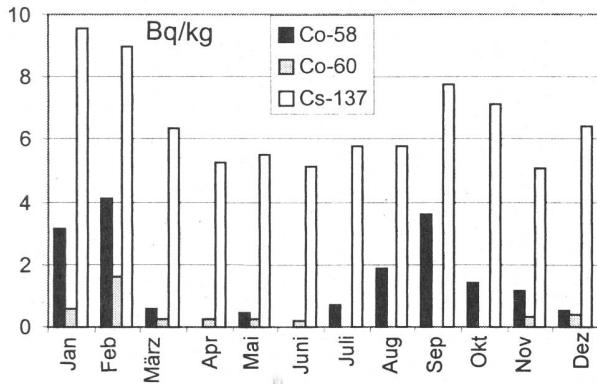
## Abgaben KKM + KKB + KKG



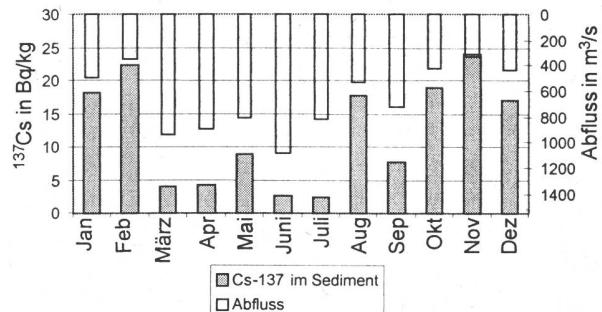
**Fig 4:** Gemessene Aktivitäten im Sedimentfallenmaterial von Klingnau und die Abgabesummen der Kernkraftwerke Mühleberg, Beznau und Gösgen.

Bei den Aktivitäten der Sedimentfallenproben von Pratteln dominiert diejenige von  $^{137}\text{Cs}$ . In der Figur 5 sieht man, dass die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität etwa dreimal so hoch ist wie diejenige der anderen Nuklide. Die gemessenen Aktivitäten der Kobaltisotope sind anfangs Jahr und im Spätsommer erhöht, was mit den Abgaben etwa übereinstimmt. Im Januar und Februar war aber auch der Wasserpegel des Rheins tief und damit die Sedimentation vermutlich höher. Die hohen Werte des  $^{58}\text{Co}$  in den Abgaben der Monate Juli, August und September sieht man bereits in der Figur 4. Es handelt sich hierbei um Abgaben von Beznau.

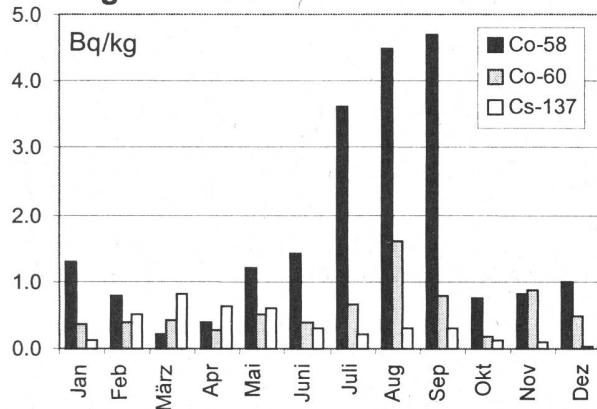
### Pratteln Sedimentfalle



### Klingnau Sediment und Abfluss



### Abgaben KKM + KKB + KKG + KKL

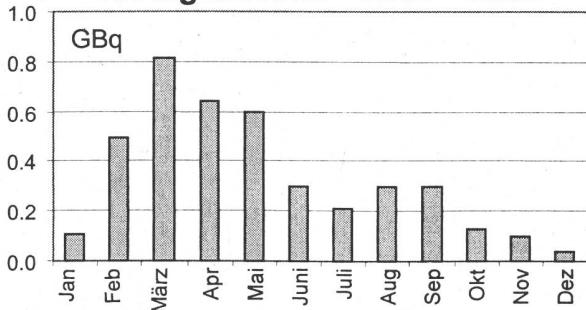


**Fig 5:** Gemessene Aktivitäten im Sedimentfallenmaterial von Klingnau und die Abgabesummen der Kernkraftwerke Mühleberg, Beznau Gösgen und Leibstadt.

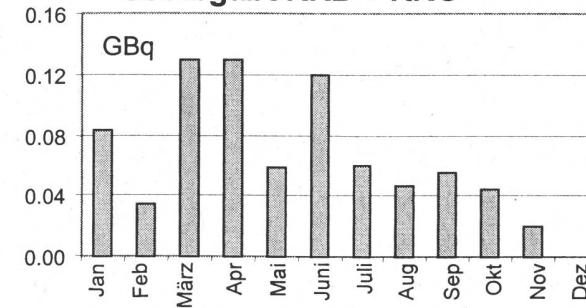
Die gemessenen  $^{137}\text{Cs}$  Aktivitäten in den Sedimenten zeigen keinen Zusammenhang mit den Summen der Abgaben von Mühleberg, Beznau und Gösgen. In Figur 6 ist die Sedimentaktivität mit den monatlichen Abflussmittelwerten der Aare bei Klingnau verglichen. Es scheint, dass die Aktivität der Sedimente wesentlich stärker von der Wasserführung abhängt als von den Abgaben. Ein ähnliches Bild ergibt sich auch für das Material der anderen Sedimentfallen, allerdings schwächer ausgeprägt als bei Klingnau.

Entlang der Fließstrecke findet man in den Sedimenten von Hagneck immer Aktivitäten von  $^{54}\text{Mn}$  (3-7 Bq/kg, im November  $26 \pm 4.6$  Bq/kg) und häufig von  $^{65}\text{Zn}$  (0.5-5.9 Bq/kg). Im Material der weiter flussabwärts liegenden Sedimentfallen kam  $^{65}\text{Zn}$  nie mehr vor und  $^{54}\text{Mn}$  nur vereinzelt.

### $^{137}\text{Cs}$ Abgabe KKM + KKB + KKG



### $^{137}\text{Cs}$ Abgabe KKB + KKG



**Fig 6**  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten. Die Figur zeigt die gute Antikorrelation der gemessenen Aktivitäten im Sediment mit dem mittleren Abfluss der Aare bei Klingnau. Dagegen besteht offensichtlich kein Zusammenhang mit den Abgaben aller Kernkraftwerke (Mühleberg, Beznau und Gösgen), und denjenigen der nächstliegenden Kraftwerke Beznau und Gösgen.

### Fische und Wasserpflanzen

Im Berichtsjahr wurden drei Fischproben aus der Aare auf den Gehalt an Radionukliden kontrolliert. Ausser dem natürlichen  $^{40}\text{K}$  konnten keine weiteren Nuklide nachgewiesen werden. In Wasserpflanzenproben wurden darüber hinaus auch von  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$  und  $^{137}\text{Cs}$  gemessen.

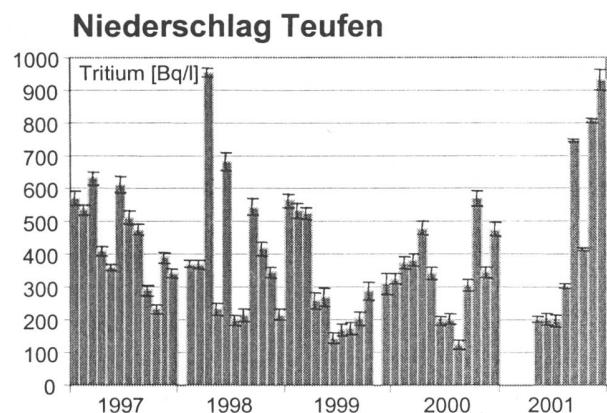
### Grundwasser

Von Grundwasserbrunnen in Pratteln, Döttingen und Aarberg wurden am 30. August 2001 Proben von je 100 Litern genommen. Beim Brunnen von

Pratteln am 30. August 2001 wurden Aktivitäten von  $^{54}\text{Mn}$  ( $0.28 \pm 0.1 \text{ Bq/m}^3$ ) und  $^{58}\text{Co}$  ( $0.31 \pm 0.1 \text{ Bq/m}^3$ ) gemessen. Während im Rheinwasser in den monatlichen Wasserproben  $^{58}\text{Co}$  häufig vorkam, lagen die Werte für  $^{54}\text{Mn}$  immer unterhalb der Nachweisgrenze. In den Sedimenten kamen beide Nuklide vor,  $^{54}\text{Mn}$  jedoch selten. In der Vergangenheit wurde auch im Grundwasser von Aarberg vereinzelt  $^{60}\text{Co}$  gemessen.

### RC Tritec AG, Teufen/AR

65 m östlich des Kamins der Firma Tritec befindet sich ein Regensammler. Die Figur 7 zeigt die gemessenen monatlichen Tritiumkonzentrationen des Niederschlags. In den letzten Monaten des Jahres scheint sich eine leicht steigende Tendenz abzuzeichnen. Insgesamt belief sich der Eintrag über den Regen auf  $48 \text{ kBq/m}^2$ .

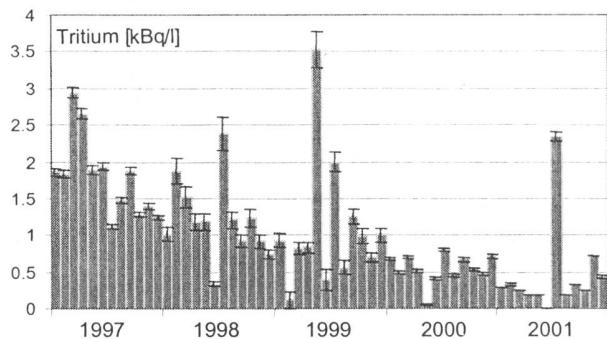


**Fig. 7** Tritiumkonzentrationen im Niederschlag neben der Firma Tritec in Teufen. Die Messungen der Proben werden seit dem Jahr 2001 durch die SUER Fribourg durchgeführt.

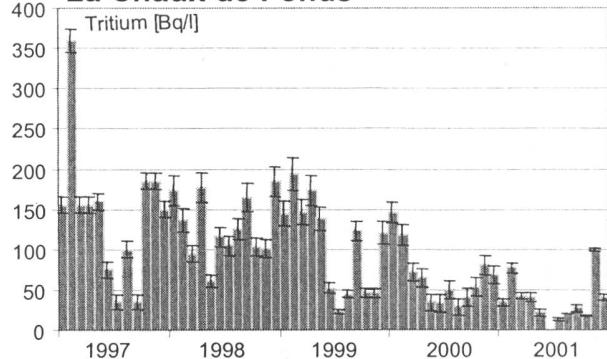
### Messung in der Umgebung von La-Chaux-de-Fonds

Die Figur 8 zeigt den Verlauf der Tritiumkonzentration von Proben des Regensammlers und des gereinigten Abwassers der Kläranlage von La Chaux-de-Fonds über die letzten 5 Jahre. Die abnehmende Tendenz hat sich weiter fortgesetzt. Insgesamt lag der Gesamteintrag 2001 über den Regen bei  $60 \text{ kBq/m}^2$ . Über das Abwasser wurde im Berichtsjahr etwa  $3.7 \text{ TBq}$  Tritium abgegeben. Verarbeitet wurde in La Chaux-de-Fonds gemäss Angaben der SUVA total  $19.6 \text{ TBq}$ .

### Gereinigtes Abwasser ARA La Chaux de Fonds



### Niederschlag La Chaux de Fonds



**Figur 8** Tritiumaktivität im Niederschlag und im gereinigten Abwasser von La Chaux-de-Fonds. Die Messungen der Proben werden seit dem Jahr 2001 durch die SUER Fribourg durchgeführt.

### Koordinierte Abgabe

Am 27. September 2001 wurde eine koordinierte Abgabe gemeinsam mit dem Kernkraftwerk Mühleberg durchgeführt. Dieses leitete nach Absprache während rund zwei Stunden  $21 \text{ m}^3$  Abwasser in die Aare ein.

Mit dem Simulationsprogramm Aquasim der EAWAG wurde der Durchgang dieses Abwassers bei Hagneck berechnet. Während der erwarteten Belastungsspitze wurde alle 30 Minuten eine Probe von 50 Liter genommen, mit Träger versetzt und später aufbereitet und gemessen.

Die Figur 9 zeigt die berechneten und gemessenen Aktivitäten von  $^{58}\text{Co}$  und  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$ . Die Abgabe von  $21 \text{ m}^3$  Abwasser begann um 00.30 Uhr und erfolgte über einen Zeitraum von zwei Stunden. Die Modellrechnung ergibt, dass der Durchgang der Belastungsspitze etwa 10 Stunden nach Abgabebeginn erwartet wird. In der berechneten Kurve wurde keine Sedimentation berücksichtigt, weshalb die Fläche unter der Kurve derjenigen der Abgabe entsprechen muss. Figur 9 zeigt, dass

die Durchgangszeit und die Dispersion durch das Modell sehr gut beschrieben wird. Die spezifischen Aktivitäten dagegen werden erwartungsgemäß überschätzt. Der Anteil der erfassten Nuklide beträgt etwa 50% (beim  $^{60}\text{Co}$  etwa 30%) der abgegebenen Fracht. Parallel zur Probenahme wurde während der Probenahmezeit Material in der Sedimentfalle gesammelt. Wenn man diesen Anteil über die gesamte Fließstrecke hochrechnet, so kämen noch etwa 10% dazu, wobei mit einer grossen Unsicherheit von einem Faktor 2-3 gerechnet werden muss. Weiter sind etwa 10% der Nuklide kolloidal gebunden und mit der verwendeten Ausfällmethode nicht erfasst.

### Kläranlage Zürich

Wöchentliche Proben von gereinigtem Abwasser der ARA Zürich werden gammaspektrometrisch gemessen. Mit Ausnahme des natürlichen  $^{40}\text{K}$  konnten keine Radionuklide festgestellt werden.

Von den wöchentlichen Proben wurden 4-wöchige Mischproben erstellt und an diesen die Tritiumkonzentrationen gemessen. Die Werte lagen zwischen  $1.9 \pm 0.8 \text{ Bq/l}$  und  $3.7 \pm 0.9 \text{ Bq/l}$ . Die Messungen wurden durch die SUER Fribourg durchgeführt.

### Kehrichtverbrennung Zürich

Versuchsweise wurde eine Probe vom Wasser der Rauchgaswaschanlage der Kehrichtverbrennung Hagenholz in Zürich genommen und auf Radioisotope untersucht. Es wurde keine Gammaaktivität festgestellt.

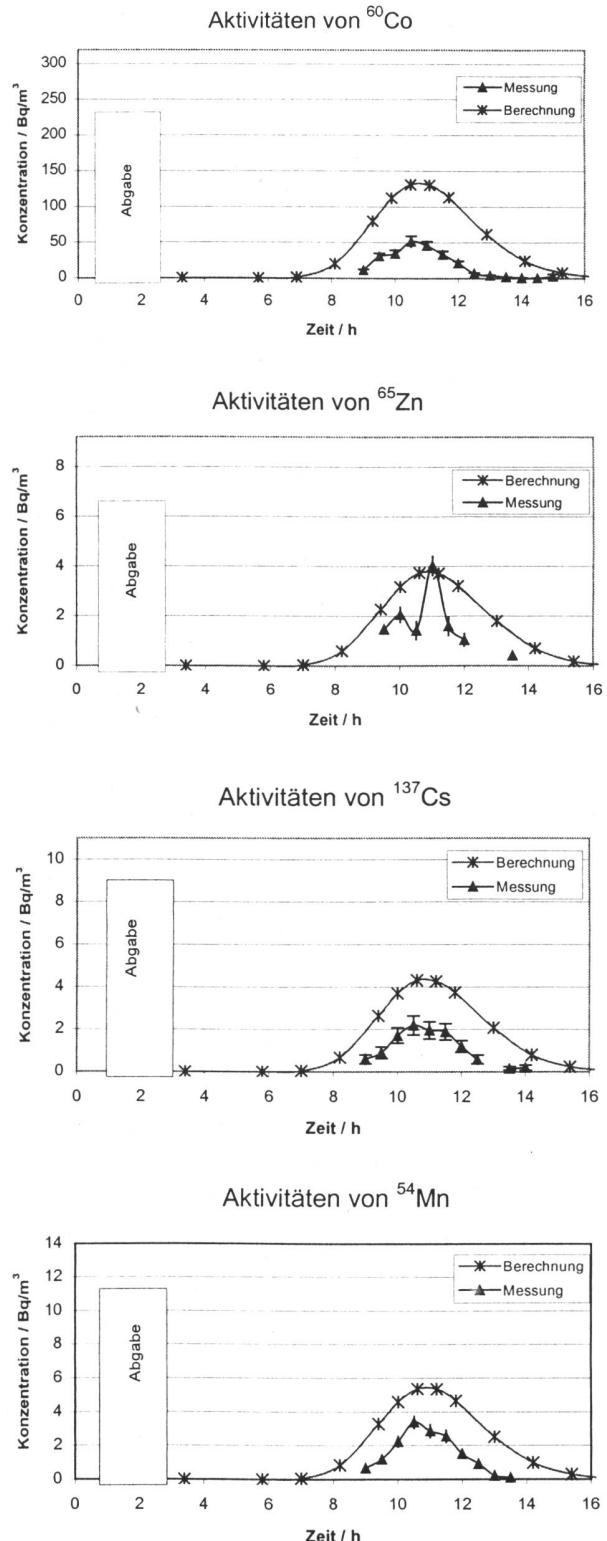
### Oberflächengewässer

Von den Sammelstationen Diepoldsau und Reckingen wurden wöchentlich Wasserproben vom Unter- und Oberrhein gammaspektrometrisch gemessen. In vereinzelten Fällen wurde in diesen Proben  $^{40}\text{K}$  nachgewiesen. Sonst lagen alle Aktivitäten unterhalb der Nachweisgrenzen.

Bei den Proben von Diepoldsau werden die Aktivitäten von Tritium in 4-wöchigen Mischproben gemessen. Der Mittelwert für das Jahr 2000 lag bei  $1.4 \pm 0.15 \text{ Bq/l}$ . Der Wert für das Jahr 2001 war mit  $1.8 \pm 0.24 \text{ Bq/l}$  etwas höher. Die Daten für die Berichtsperiode liegen noch nicht vor. Die Messungen werden durch die Bundesanstalt für Gewässerkunde in Koblenz durchgeführt.

### 4.2.3 Literatur

Albrecht, The behavior of Nuclear Reactor Derived Metallic Radionuclides in the Aquatic System of Switzerland, Schriftenreihe der EAWAG, Nr. 13, 1998.



**Figur 9** Koordinierte Abgabe gemeinsam mit dem Kernkraftwerk Mühleberg vom 26.9.2001. Es wurden  $21 \text{ m}^3$  Abwasser mit einer Gesamtaktivität von  $462 \text{ MBq}^{60}\text{Co}$ ,  $15 \text{ MBq}^{137}\text{Cs}$ ,  $19 \text{ MBq}^{54}\text{Mn}$  und  $13 \text{ MBq}^{65}\text{Zn}$  abgegeben.

## 4.3. Radioactivité du sol et de l'herbe

### H. Völkle

Section de surveillance de la radioactivité  
Office fédéral de la santé publique, Ch. du Musée 3, 1700 Fribourg

### J.-J. Geering, P. Froidevaux, F. Barraud, J.-F. Valley

Institut universitaire de radiophysique appliquée  
Grand-Pré 1, 1007 Lausanne

### M. Burger, R. Holzer

Laboratorium Spiez  
Gruppe Rüstung, VBS, 3700 Spiez

### V. Figueiredo, A. Herrmann

Kantonales Laboratorium BS, 4012 Basel

### Résumé

*Les résultats de mesures  $\gamma$  et de  $^{90}\text{Sr}$  effectuées en 2001 dans des échantillons de sol et d'herbe restent comparables à celles des années précédentes. En particulier, l'activité dans les sites en montagne est plus élevée qu'en plaine. Elle est aussi plus élevée sur le versant sud des Alpes. Les activités mesurées dans l'environnement des centrales nucléaires sont comparables à celles des sites de référence.*

#### 4.3.1. Introduction

En 2001, les mesures  $\gamma$  et les déterminations de  $^{90}\text{Sr}$  dans des échantillons de sol et d'herbe ont été effectuées selon le plan de prélèvement établi par la Section surveillance de la radioactivité de l'OFSP. Les analyses de  $^{90}\text{Sr}$ , qui nécessitent une séparation chimique complète de son produit de filiation, l'  $^{90}\text{Y}$  [1], ont été effectuées selon le plan de prélèvement réduit introduit en 1998, afin de surveiller l'ensemble du territoire suisse par l'analyse d'un minimum d'échantillons représentatifs.

#### 4.3.2. Résultats de la surveillance

##### Sol

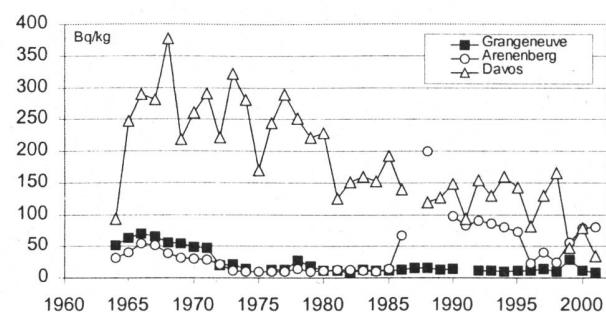
Les activités des émetteurs  $\gamma$ , du  $^{90}\text{Sr}$ , du  $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$  et de  $^{241}\text{Am}$  mesurées en 2001 dans le sol (profondeur 0-5 cm) sont reportées dans le tableau 1.

Au voisinage des centrales nucléaires, les activités des émetteurs  $\gamma$  et du Sr-90 ne diffèrent pas des valeurs mesurées sur les sites de référence et sont comparables aux valeurs mesurées les années précédentes. D'une manière générale, on constate que les activités du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{90}\text{Sr}$  du sol sont plus élevées sur le versant sud que sur le versant nord des Alpes. Dans les deux cas, les sites en altitude présentent des activités plus élevées qu'en plaine.

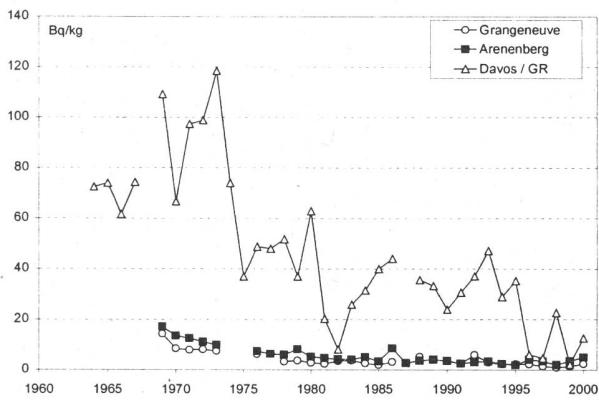
Les figures 1 et 2 montrent l'évolution de l'activité du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{90}\text{Sr}$  depuis 1964 au nord des Alpes, et font apparaître les différences de niveaux d'activité entre les sites de plaine et de montagne. L'activité maximale en  $^{137}\text{Cs}$ , suite aux essais nucléaires atmosphériques des années soixante, a été mesurée entre 1966 et 1968. Les activités de ce nuclide, ainsi que celle du  $^{90}\text{Sr}$ , ont ensuite diminué principalement par migration dans le sol. L'accident de Tchernobyl se traduit par une légère augmentation de l'activité en  $^{137}\text{Cs}$ , perceptible dans le sol d'Arenenberg. En effet, sur le versant nord des Alpes, le nord-est de la Suisse a été d'avantage touché par les retombées de l'accident de Tchernobyl, mais dans une proportion bien moindre que le Tessin.

Au sud des Alpes, l'évolution dans le temps de l'activité de ces deux nucléides est analogue, mais les activités sont plus élevées et beaucoup plus dispersées qu'au nord des Alpes en raison de la diversité des situations topographiques et des microclimats.

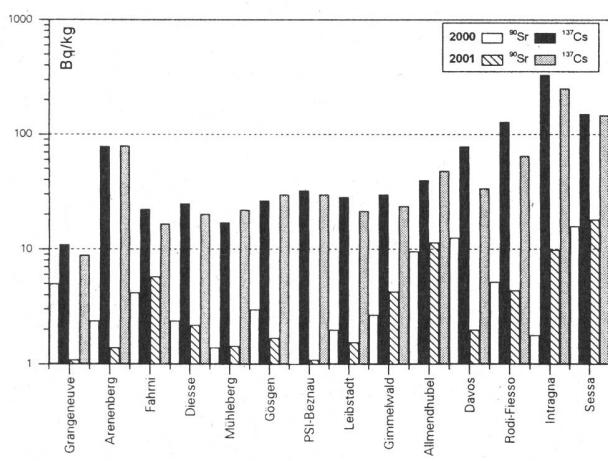
Dans le sol d'Intragna où l'activité en  $^{134}\text{Cs}$  (période de 2.1 ans) est encore mesurable, on peut estimer l'activité en  $^{137}\text{Cs}$  (période de 28.5 ans) due à l'accident de Tchernobyl à 70 % environ, le reste provenant des retombées des années soixante.



**Fig. 1:**  $^{137}\text{Cs}$  dans le sol au nord des Alpes en Bq/kg de matière sèche



**Fig. 2:**  $^{90}\text{Sr}$  dans le sol au nord des Alpes en Bq/kg de matière sèche



**Fig. 3:** Concentration radioactive du  $^{90}\text{Sr}$  et du  $^{137}\text{Cs}$  dans les sols en 2000 et 2001

La figure 3 présente les activités en  $^{90}\text{Sr}$  et en  $^{137}\text{Cs}$  de sols représentatifs mesurés annuellement. Les rapports  $^{137}\text{Cs} / ^{90}\text{Sr}$  sont en moyenne proches de 20. Dans les retombées des années soixante, ce rapport est estimé à 1,6 [2], 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. La figure 3 confirme que les activités en  $^{90}\text{Sr}$  et  $^{137}\text{Cs}$  du sol au voisinage des sites de centrales nucléaires ne diffèrent pas des autres sites de plaine et que les activités les plus élevées ont été mesurées dans les sites d'altitude et au Tessin. L'activité en  $^{137}\text{Cs}$  relativement élevée mesurée en 2000 et 2001 à Arenenberg provient vraisemblablement de l'accident de Tchernobyl, alors qu'il n'y a pas eu d'apport significatif de  $^{90}\text{Sr}$ .

## Herbe

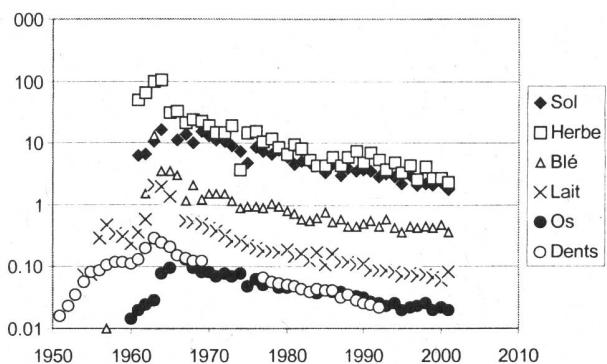
Les résultats sont présentés dans le tableau 2. Alors que les activités en  $^{137}\text{Cs}$  ne restent mesurables que dans l'herbe de montagne ainsi que sur le versant sud des Alpes, les activités en  $^{90}\text{Sr}$  dans l'herbe des sites de montagne sont plus élevées qu'en plaine et reflètent les activités mesurées dans les sols correspondants.

Pour la mesure du  $^{137}\text{Cs}$  par spectrométrie  $\gamma$  la limite de détection est d'environ 1 Bq/kg, alors qu'elle est de 0,1 Bq/kg pour la mesure du  $^{90}\text{Sr}$  au compteur proportionnel après séparation chimique complète de  $^{90}\text{Y}$ .

Comme le césium stable d'origine naturelle n'est présent qu'en traces infimes dans le sol, le comportement du  $^{137}\text{Cs}$  et son transfert dans les végétaux dépendent de la teneur en potassium du sol, car le césium et le potassium agissent de manière compétitive. D'une manière analogue, la fixation du  $^{90}\text{Sr}$  du sol par la plante dépend plus de la teneur en calcium du sol que de celle en strontium, présent uniquement en traces [3]. La concentration de ces nucléides dépend aussi du type de sol et des espèces végétales, ces dernières pouvant grandement varier d'une saison à l'autre. Le stade de croissance au moment de la coupe joue aussi un rôle [4].

## 4.3.3. Evolution dans le temps de l'activité en $^{90}\text{Sr}$

La figure 4 présente l'évolution de l'activité du  $^{90}\text{Sr}$  de 1951 à 2001, dans des échantillons de sol, d'herbe, de blé, de lait (exprimée en Bq/kg de matière sèche), ainsi que celle de vertèbres humaines et de dents de lait (en Bq/g Ca) prélevés en plaine et sur le versant nord des Alpes. L'activité des vertèbres est rapportée à l'année de décès, celle des dents de lait à l'année de naissance de l'enfant, époque à laquelle les couronnes se sont calcifiées.



**Fig. 4.** Evolution de l'activité en  $^{90}\text{Sr}$  dans l'environnement en Suisse de 1950 à 2001

Pour les six types d'échantillons, l'activité maximale a été atteinte vers 1965, suite au moratoire des essais nucléaires atmosphériques. De plus, l'absence d'essais nucléaires en 1959 et 1960 s'est traduite par un maximum relatif d'activité dans le lait en 1957. Depuis 1980 environ, la diminution de l'activité du  $^{90}\text{Sr}$  dans le sol se répercute sur l'évolution de cette activité dans l'herbe, le lait et le blé, principalement par migration du  $^{90}\text{Sr}$  dans les couches plus profondes du sol, et par décroissance radioactive (période 28.5 ans).

#### 4.3.4. Conclusions

Les mesures  $\gamma$  et les déterminations de  $^{90}\text{Sr}$  effectuées en Suisse en 2001 dans le sol et l'herbe confirment les résultats obtenus les années précédentes. Dans aucun des échantillons analysés on n'a observé une augmentation de l'activité de l'un de ces nucléides, en particulier aux alentours des centrales nucléaires. Les activités en  $^{90}\text{Sr}$  et  $^{137}\text{Cs}$  dans le sol et l'herbe les plus élevées ont été mesurées en montagne (Mürren, Davos), ainsi qu'au Tessin. Dans les sols, les activités en  $^{90}\text{Sr}$  sont environ 20 fois plus faibles que celles du  $^{137}\text{Cs}$ . Dans les échantillons de sol, d'herbe, de blé, de lait, de vertèbres humaines et de dents de lait, l'activité en  $^{90}\text{Sr}$  a présenté un maximum vers 1965 suite à l'interruption des essais nucléaires atmosphériques, puis a décru de manière analogue pour tous les types d'échantillons jusqu'à présent.

**Tableau 1:** Radioactivité du sol en 2001  
Bq/kg matière sèche rapporté à la date de prélèvement (seulement couche 0 - 5 cm)

Canton/Lieu	n =	<sup>40</sup> K	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>90</sup> Sr	<sup>239 + 240</sup> Pu	<sup>241</sup> Am
AG (Vois.. KKB)	2	480 - 484	—	37 - 52	$0.9 \pm 0.2$	$0.14 \pm 0.01$	$0.056 \pm 0.006$
AG (PSI / ZWILAG)	2	410 - 460	—	15 - 16	$1.2 \pm 0.1$	$0.12 \pm 0.01$	$0.080 \pm 0.006$
AG (Vois.. KKL)	3	400 - 480	—	19 - 24	$1.56 \pm 0.25$	$0.23 \pm 0.02$	$0.094 \pm 0.010$
AG/SO (Vois. KKG)	4	380 - 480	—	21 - 38	$1.7 \pm 0.16$	$0.29 \pm 0.02$	$0.130 \pm 0.020$
BE (Vois. KKM)	4	560 - 840	—	15 - 28	$1.44 \pm 0.20$	$0.18 \pm 0.02$	$0.080 \pm 0.008$
BE (Allmendhubel) <sup>1)</sup>	1	$460 \pm 15$	$< 0.2$	$48.2 \pm 1.5$	$11.5 \pm 2.0$	$1.33 \pm 0.10$	$0.55 \pm 0.02$
BE (Gimmelwald) <sup>2)</sup>	1	$290 \pm 15$	$< 0.2$	$23.8 \pm 0.8$	$4.3 \pm 0.5$	$0.68 \pm 0.06$	$0.29 \pm 0.02$
BE (Fahrni) <sup>3)</sup>	1	$454 \pm 15$	$< 0.2$	$16.6 \pm 0.6$	$5.8 \pm 0.6$	$0.41 \pm 0.02$	$0.13 \pm 0.02$
BE (Diesse/Jura)	1	$378 \pm 15$	$< 0.2$	$20.2 \pm 0.6$	$2.2 \pm 0.3$	$0.42 \pm 0.02$	$0.18 \pm 0.01$
BL (Sissach)	1	$518 \pm 20$	$< 0.5$	$22.5 \pm 1.1$	—	—	—
FR (Grangeneuve)	1	$480 \pm 30$	$< 1$	$8.9 \pm 1.5$	$1.1 \pm 0.2$	$0.24 \pm 0.02$	$0.096 \pm 0.020$
FR (Colombettes)	1	$338 \pm 100$	—	$10 \pm 3$	—	—	—
GE (Vois. CERN)	4	$430 \pm 580$	—	6 - 18	—	$0.15 - 0.18$	$0.065 - 0.098$
GR (Chur)	1	$830 \pm 50$	$< 3.6$	$2.0 \pm 0.3$	—	$0.022 \pm 0.01$	$0.010 \pm 0.004$
GR (Davos)	1	$600 \pm 40$	$< 1.4$	$34 \pm 2$	$2.0 \pm 0.2$	$0.62 \pm 0.04$	$0.30 \pm 0.10$
NE (La Ch.de.Fonds) <sup>9)</sup>	2	$324 - 422$	—	43; 720	—	—	—
TG (Arenenberg)	1	$270 \pm 25$	$< 2.0$	$80 \pm 4$	$1.4 \pm 0.2$	$0.25 \pm 0.01$	$0.11 \pm 0.02$
TI (Caslano)	1	$752 \pm 200$	—	$21 \pm 8$	—	—	—
TI (Intragna)	1	$420 \pm 30$	$2.8 \pm 0.4$	$252 \pm 15$	$9.9 \pm 0.7$	$1.85 \pm 0.20$	$0.71 \pm 0.04$
TI (Magadino)	1	$890 \pm 200$	—	$57 \pm 15$	—	—	—
TI (Rodi-Fiesso)	1	$300 \pm 20$	$< 0.7$	$65 \pm 4$	$4.4 \pm 0.3$	$0.27 \pm 0.02$	$0.123 \pm 0.01$
TI (Sessa)	1	$336 \pm 20$	$< 2.6$	$147 \pm 10$	$18.0 \pm 1.2$	$0.58 \pm 0.04$	$0.24 \pm 0.01$
TI (Stabio)	1	$630 \pm 200$	—	$131 \pm 30$	—	—	—
UR/BE (Susten)	1	$650 \pm 150$	—	$106 \pm 25$	—	—	—
VS/UR (Furka)	1	$555 \pm 150$	—	$9 \pm 3$	—	—	—
VS/TI (Nufenen)	1	$723 \pm 200$	—	$23 \pm 6$	—	—	—
VS/BE (Grimsel)	1	$870 \pm 200$	—	$3 \pm 1.5$	—	—	—
VD <sup>4)</sup> (Jura: 0 - 5 cm)	1	$370 \pm 15$	$< 1.2$	$121 \pm 2$ <sup>6)</sup>	$7.1 \pm 0.5$ <sup>8)</sup>	$1.31 \pm 0.06$ <sup>10)</sup>	$0.58 \pm 0.10$ <sup>10)</sup>
VD <sup>5)</sup> (Jura: 0 - 5 cm)	1	$308 \pm 6$	$< 0.9$	$67 \pm 0.5$ <sup>7)</sup>	—	$0.80 \pm 0.04$ <sup>11)</sup>	$0.36 \pm 0.02$ <sup>11)</sup>
VD <sup>12)</sup> (Lucens:0-5 cm)	2	$492 - 530$	$< 0.6$	10 - 18	$0.6 \pm 0.2$	$0.13 - 0.17$	$0.055 - 0.073$
VD <sup>12)</sup> (Lucens:5-10cm)	2	$510 - 660$	$< 0.7$	11 - 14	—	$0.13 - 0.19$	$0.05 - 0.08$
ZH (Lindau)	1	$350 \pm 10$	$< 0.7$	$42 \pm 1$	—	—	—

<sup>1)</sup> Alpage

<sup>2)</sup> Vallée

<sup>3)</sup> En Plaine

<sup>4)</sup> Chasseron

<sup>5)</sup> Nouvelle-Censièrie;

<sup>6)</sup> Couche plus profonde <sup>137</sup>Cs: 5 - 10 cm:  $94 \pm 2$ ; 10 - 20 cm:  $26 \pm 1$ ; 20 - 30 cm:  $6.8 \pm 0.5$ ; 30 - 40 cm:  $3.1 \pm 0.3$  Bq/kg

<sup>7)</sup> Couche plus profonde <sup>137</sup>Cs: 5 - 10 cm:  $66 \pm 0.8$  Bq/kg

<sup>8)</sup> Couche plus profonde <sup>90</sup>Sr: 5 - 10 cm:  $8.9 \pm 0.7$ ; 10 - 20 cm:  $11.7 \pm 0.8$ ; 30 - 40 cm:  $3.0 \pm 0.3$  Bq/kg

<sup>9)</sup> Près d'un ancien atelier de posage; <sup>226</sup>Ra: 243 resp. 24500 Bq/kg; <sup>228</sup>Ac: 32 - 44 Bq/kg

<sup>10)</sup> Couche plus profonde: 5 - 10 cm:  $^{239+240}\text{Pu} = 1.65 \pm 0.06$ ; <sup>241</sup>Am =  $0.73 \pm 0.06$ ; 10 - 20 cm Pu =  $0.74 \pm 0.04$ ; Am =  $0.28 \pm 0.02$ ; 20 - 30 cm Pu =  $0.21 \pm 0.01$ ; Am =  $0.075 \pm 0.02$ ; 30 - 40 cm Pu =  $0.092 \pm 0.008$ ; Am =  $0.058 \pm 0.02$ .

<sup>11)</sup> Couche plus profonde: 5-10 cm:  $^{239+240}\text{Pu} = 0.94 \pm 0.04$ ; <sup>241</sup>Am =  $0.34 \pm 0.04$

<sup>12)</sup> Près de l'ancienne Centrale nucléaire expérimentale de Lucens (CNL), démantelée après l'accident du 21 janvier 1969 et soustrait à la législation sur les installations nucléaires par le Conseil fédéral en 1995.

**Tableau 2:** Radioactivité de l'herbe en 2001  
Bq/kg matière sèche, rapporté à la date de prélèvement

Canton/Lieu	n=	<sup>40</sup> K	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>90</sup> Sr
AG (Voisinage KKB)	3	714 – 1060	—	< 5 - < 10	1.6 ± 0.1
AG (ZWILAG / PSI)	3	690 - 904	—	< 3	1.45 ± 0.12
AG (Voisinage KKL)	9	530 – 1270	—	< 2 - 22	4.1 ± 0.3
AG/SO (Voisinage KKG)	8	530 – 1040	—	< 2 - < 11	1.26 ± 0.11
BE (Voisinage KKM)	7	870 – 1100	—	< 7	1.29 ± 0.09
BE (Almendhubel) <sup>1)</sup>	1	390 ± 20	< 0.3	1.0 ± 0.2	12.0 ± 0.2
BE (Gimmelwald) <sup>2)</sup>	1	650 ± 20	< 0.3	1.5 ± 0.2	2.0 ± 0.2
BE (Fahrni) <sup>3)</sup>	2	1050 – 1220	< 0.3	<0.2 – 0.34	3.2 – 3.5
BE (Diesse/Jura)	2	840 – 1150	< 0.3	0.37 – 0.56	0.9 – 1.3
BL (Sissach)	1	1070 ± 40	< 0.5	0.4 ± 0.3	—
FR (Grangeneuve)	1	810 ± 60	< 3	< 3.2	3.8 ± 0.3
FR (Colombettes)	1	810 ± 200	—	< 3	—
GE (CERN)	3	790 - 940	—	< 5	—
GR (Chur)	1	903 ± 48	< 1.8	< 1.3	—
GR (Davos)	1	715 ± 40	< 0.9	6.1 ± 0.4	8.9 ± 0.5
TG (Arenenberg)	1	520 ± 50	< 1.4	<4.1 ± 0.9	1.85 ± 0.2
SG (Wil)	2	903 - 1040	< 1.3	1.4 – 1.5	—
TI (Intragna)	2	970 - 1070	< 1.7	17 - 35	17.3 ± 0.9
TI (Rodi)	2	970 – 1170	< 1.7	1.5 – 13.0	4.0 ± 0.3
TI (Sessa)	2	540 - 850	< 1.1	2.8 – 6.6	6.8 ± 0.4
TI (Stabio)	1	1000 ± 300	—	< 6	—
VD (Lucens)	1	440 ± 15	< 0.6	0.3 ± 0.2	2.0 ± 0.1
VD (Jura: Chasseron)	1	604 ± 20	< 0.7	2.6 ± 0.4	7.1 ± 0.1
VD (Jura: Nouv.Censièrre)	1	536 ± 15	< 0.5	2.3 ± 0.3	—
ZH (Lindau)	1	694 ± 40	< 3.9	17.4 ± 4.1	—

1) Alpage

2) Vallée

3) en plaine

4) sans une valeur plus élevée de foin de Roveredo (1406 ± 23 Bq/kg) qui n'a pas pu être reproduite lors d'un deuxième prélèvement au même endroit (61 ± 6 Bq/kg).

## Bibliographie

- [1] J.-J. Geering, C. Friedli, P. Lerch, Method of Determination of Strontium-90 in the Environment, J. Trace and Microprobe Techniques, 8, 211-230 (1990).
- [2] Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects, UNSCEAR Report, United Nations Publication, New-York 1969.
- [3] Radioecology, Lectures in Environmental Radioactivity, Ed. E. Holm, Wold Scientific, London 1994.
- [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.

## 4.4. Ein Programm zur Überwachung der Radionuklide im Grundwasser

### Heinz Surbeck

Centre d'Hydrogéologie de l'Université de Neuchâtel  
Rue Emile-Argand 11  
2007 NEUCHÂTEL

Dank einem langfristigen Zusammenarbeitsvertrag zwischen dem Bundesamt für Gesundheit (BAG) und dem Centre d'Hydrogéologie de l'Université de Neuchâtel (CHYN) wird das CHYN ab dem 1.1.2002 in der Lage sein, Radionuklide im Wasser zu bestimmen. Ein wesentlicher Teil der Arbeit dieses neuen analytischen Zweiges des CHYN wird es sein, Dienstleistungen für das BAG zu erbringen. Dabei profitiert das BAG von der grossen Erfahrung des CHYN sowohl bei der gezielten Probenahme von Grundwässern als auch beim Verständnis von Transportvorgängen. Das CHYN seinerseits kann die vom BAG zur Verfügung gestellte Laborkapazität und das mit übernommene know-how für Forschung und Unterricht einsetzen. Die in den Ungleichgewichten der Uran- und Thoriumreihen steckende Information und insbesondere das Radon als Tracer für schnelle Transportvorgänge sollen besser genutzt werden. Die Integration dieser Untersuchungen in Diplomarbeiten und Dissertationen beim CHYN wird auch zu einer Sensibilisierung zukünftiger Hydrogeologen für Probleme mit Radionukliden im Trinkwasser führen.

Das CHYN wird mit diesem Vertrag neu auch Ansprechpartner für Kantone und Gemeinden, welche Altlasten, die Radionuklide enthalten oder enthalten könnten, untersuchen oder sanieren möchten.

Ein konkretes Projekt ab 2002 ist, im Rahmen einer Dissertation beim CHYN, das Trinkwasser sämtlicher Gemeinden des Kantons Graubünden auf den Gehalt an Uran, Radium und Radon zu untersuchen. Das Projekt hat sowohl einen gesundheitlichen, als auch einen hydrogeologischen Aspekt. Es erlaubt eine repräsentative Beurteilung der Belastung durch Radionuklide im Trinkwasser zumindest für einen Kanton der Schweiz. Die beim "screening" gefundenen "hot spots" können dann in einer zweiten Phase detailliert (Einzelquellen) untersucht und in Zusammenhang mit der lokalen Geologie/Hydrogeologie gebracht werden. Das erlaubt in einer dritten Phase die gezielte Suche nach "hot-spots", auch in anderen Kantonen. Die bei der Detailuntersuchung gewonnenen Daten können zudem als "fingerprints" für Wässer aus unterschiedlichen Grundwasser-Vorkommen genutzt werden.

Das Uran wird in der "screening" Phase mit ICP-MS, später mit Alpha-Spektrometrie, das Ra-226 mit Alpha-Spektrometrie bestimmt. Für die Präparation der Proben für die Alpha-Spektrometrie wird erstmals in grossem Umfang die Methode der selektiven Adsorption an dünnen Schichten eingesetzt. Das Ra-228 folgt aus einer zweiten Messung nach einer Wartezeit von mindestens 6 Monaten (über das Ra-224, nach ca. 20% Aufbau des Th-228). Das Rn-222 wird durch Ausgasen und anschliessende Messung in der Gasphase mit einem Halbleiter-Detektor (RAD7 + RAD7H2O) bestimmt.

## 4.5. Messung von atmosphärischem $^7\text{Be}$ , $^{10}\text{Be}$ und $^{210}\text{Pb}$ an der hochalpinen Station Jungfraujoch

L. Tobler <sup>1)</sup>, Ch. Schnabel <sup>2), 3)</sup>, P.W. Kubik <sup>4)</sup>, M. Schwikowski <sup>1)</sup>, H.W. Gäggeler <sup>1), 3)</sup>

<sup>1)</sup> Paul Scherrer Institut, 5232 VILLIGEN PSI

<sup>2)</sup> Institut für Teilchenphysik, ETH Hoenggerberg, 8093 ZÜRICH

<sup>3)</sup> Departement für Chemie und Biochemie, Universität Bern, 3012 BERN

<sup>4)</sup> Paul Scherrer Institut, c/o ETH Hoenggerberg, 8093 ZÜRICH

### 1. Zusammenfassung

Im Rahmen des EU-Projektes STACCATO (*Influence of Stratospheric-Tropospheric Exchange in a Changing Climate on Atmospheric Transport and Oxidation Capacity*) wurden die natürlichen Radionuklide  $^7\text{Be}$ ,  $^{10}\text{Be}$  und  $^{210}\text{Pb}$  in Luftfilterproben vom Jungfraujoch gemessen. Die Luftfilter werden kontinuierlich im 2-Tagesrhythmus auf dem Jungfraujoch durch das NABEL Netzwerk gesammelt.  $^7\text{Be}$ - und  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäten wurden  $\gamma$ -spektrometrisch bestimmt. Anschliessend wurde  $^{10}\text{Be}$  mit Hilfe der Beschleuniger-Massenspektrometrie (AMS) gemessen. Erstmals wurden somit  $^{10}\text{Be}$  /  $^7\text{Be}$  Verhältnisse auf dem Jungfraujoch während eines ganzen Jahres in mindestens wöchentlicher Auflösung bestimmt, die einen Hinweis auf stratosphärische Lufteinbrüche geben können. Im weiteren werden ausgesuchte Fälle präsentiert, in denen Einbrüche stratosphärischer Luftmassen am  $^{10}\text{Be}$  /  $^7\text{Be}$  - Verhältnis erkennbar sind.

### 2. Einleitung

Die Tropopause bildet eine relativ wirksame Sperre gegen Vertikalbewegungen zwischen Stratosphäre und Troposphäre. Trotzdem kann es zu intensiven Austauschprozessen zwischen diesen beiden atmosphärischen Schichten kommen. Da die Ozon-Konzentration in der Stratosphäre viel höher als in der Troposphäre ist, bewirkt ein Transport von stratosphärischer Luft in die Troposphäre (sog. stratosphärische Intrusion) einen Anstieg des troposphärischen Ozongehaltes. Demgegenüber ist die relative Feuchte von stratosphärischer Luft viel geringer als die von Luft aus der Troposphäre. Zur Untersuchung solcher stratosphärischen Intrusionen können die natürlich vorkommenden Radionuklide  $^7\text{Be}$  und  $^{10}\text{Be}$  als Tracer benutzt werden [1]. Diese beiden Berylliumisotope werden durch Reaktionen von hochenergetischen Teilchen aus der kosmischen Strahlung mit Stickstoff und Sauerstoff (z.B.  $^{14}\text{N}(\text{p},2\alpha)^7\text{Be}$ ) in der Atmosphäre erzeugt. Davon werden zwei Drittel in der Strato-

sphäre und der Rest in der oberen Troposphäre produziert. Nach ihrer Erzeugung werden diese Nuklide irreversibel an Aerosolteilchen angelagert. Sie zeigen somit das Verhalten der Aerosole bezüglich Transport, Auswaschung und Deposition. Während  $^7\text{Be}$  mit einer Halbwertzeit von 53.3 Tagen relativ schnell zerfällt, ist der Zerfall von  $^{10}\text{Be}$  (Halbwertzeit  $1.5 \cdot 10^6$  a) vernachlässigbar. Während des Absinkens in der Stratosphäre nimmt das Isotopenverhältnis  $^{10}\text{Be}$ / $^7\text{Be}$  deswegen zu und ist somit ein Hinweis auf das Alter der Luftmassen, bzw. deren Herkunft.

Raisbeck et al. [2] und Dibb et al. [3] berichten über  $^{10}\text{Be}$ / $^7\text{Be}$  - Verhältnisse von etwa 5 in der unteren Stratosphäre höherer nördlicher Breiten. Demgegenüber bestimmten Dibb et al. [3]  $^{10}\text{Be}$ / $^7\text{Be}$  von etwa 2.2 in troposphärischen polaren Luftmassen. Das hohe Isotopenverhältnis in der unteren Stratosphäre wird durch ein gegenüber dem Zerfall von  $^7\text{Be}$  langsames Absinken von Luft aus der höheren Stratosphäre begründet.

Wenn derartige stratosphärische Luft in die Troposphäre einbricht, sollte das  $^{10}\text{Be}$ / $^7\text{Be}$ -Verhältnis dort ansteigen. Falls die untere Stratosphäre, die einbricht, allerdings durch häufigen Austausch mit der Troposphäre zu sehr grossen Teilen nicht aus höheren Stratosphärenschichten stammt, sind derartig hohe Isotopenverhältnisse nicht zu erwarten. Der Effekt der Intrusion auf das  $^{10}\text{Be}$ / $^7\text{Be}$ -Verhältnis in der Troposphäre kann dann sehr gering sein.

$^{210}\text{Pb}$  (Halbwertzeit 22.3 a) entsteht durch den Zerfall von  $^{238}\text{U}$ , das vorwiegend in der Lithosphäre vorkommt. In der Zerfallsreihe von  $^{238}\text{U}$  entsteht  $^{222}\text{Rn}$ , ein Isotop des Edelgases Radon, welches aus der Lithosphäre in die Atmosphäre austreten kann und dort in das langlebige  $^{210}\text{Pb}$  zerfällt.

### 3. Messungen

Routinemässig werden Aerosolpartikel auf Glasfaserfiltern an der hochalpinen Forschungsstation Jungfraujoch (3580 m ü.M.) mit einer Zeitauflösung von 48 h unter Verwendung von HIVOL-Samplern durch das NABEL Netzwerk gesammelt [4]. Eine Luftfilterprobe entspricht einem Gesamtluftvolumen von 2143 m<sup>3</sup> unter lokalen Bedingungen (mittlere Temperatur 265 K, mittlerer Luftdruck 653 hPa). Dieses Luftvolumen wurde jeweils durch Multiplikation mit dem Faktor 1.403 auf Standardbedingungen (T: 293 K, p: 1013 hPa) korrigiert.

Etwa 50 Tage nach Probennahme wurde jeweils in einer Hälfte von jedem Filter die <sup>7</sup>Be- und <sup>210</sup>Pb-Aktivitäten  $\gamma$ -spektrometrisch in einem Bohrlochdetektor gemessen. Sämtliche Aktivitäten wurden für den Zerfall während der Probennahme und der Messung korrigiert. Bei einer Messdauer von 34 h pro Probe betrug der Fehler ( $1\sigma$ ) aus der Zählstatistik im Mittel 4% für <sup>7</sup>Be und 30% für <sup>210</sup>Pb.

Nach dieser Messung wurde <sup>10</sup>Be von den Filtern radiochemisch abgetrennt. Der Trennungsgang bestand aus folgenden Schritten: Auslaugen mit Salpetersäure (17 Gew.- %) im Ultraschallbad, anschliessendem Kationenaustausch, Fällung von Berylliumhydroxid, Bildung von Berylliumnitrat und Zersetzung zu Berylliumoxid. Unter diesen Bedingungen wurden etwa 99% des auf dem Filter befindlichen Be in Lösung gebracht, was durch eine anschliessende <sup>7</sup>Be-Messung in der Lösung bestimmt wurde. Die so hergestellten Proben enthielten so geringe Bor-Konzentrationen, dass die Korrektur für indirekt durch das Isobar <sup>10</sup>B hervorgerufenen Untergrund vernachlässigbar war.

### 4. Resultate

Im Zeitraum Januar 2000 - Dezember 2001 wurden insgesamt 367 Filterproben  $\gamma$ -spektrometrisch analysiert. Die Messwerte für <sup>7</sup>Be und <sup>210</sup>Pb sind für die Jahre 2000 und 2001 in Figur 1 dargestellt. Die statistische Auswertung der Aktivitätskonzentrationen von <sup>7</sup>Be und <sup>210</sup>Pb ist in Tabelle 1 zusammengestellt. Dabei handelt es sich um ungewichtete Mittelwerte. <sup>7</sup>Be konnte nur in 3 Proben nicht nachgewiesen werden, deren Aktivitätskonzentrationen unterhalb der Nachweisgrenze (NWG) von 0.2 mBq/m<sup>3</sup> lagen. Demgegenüber konnte die <sup>210</sup>Pb-Aktivität nur in 66% aller Filterproben nachgewiesen werden. Die übrigen Messresultate lagen unterhalb der Nachweisgrenze von 0.23 mBq/m<sup>3</sup>. Für die statistische Auswertung von <sup>210</sup>Pb wurde für die Messresultate unterhalb der Nachweisgrenze ein Wert von

$\frac{1}{2}$  der Nachweisgrenze (= 0.115 mBq/m<sup>3</sup>) verwendet.

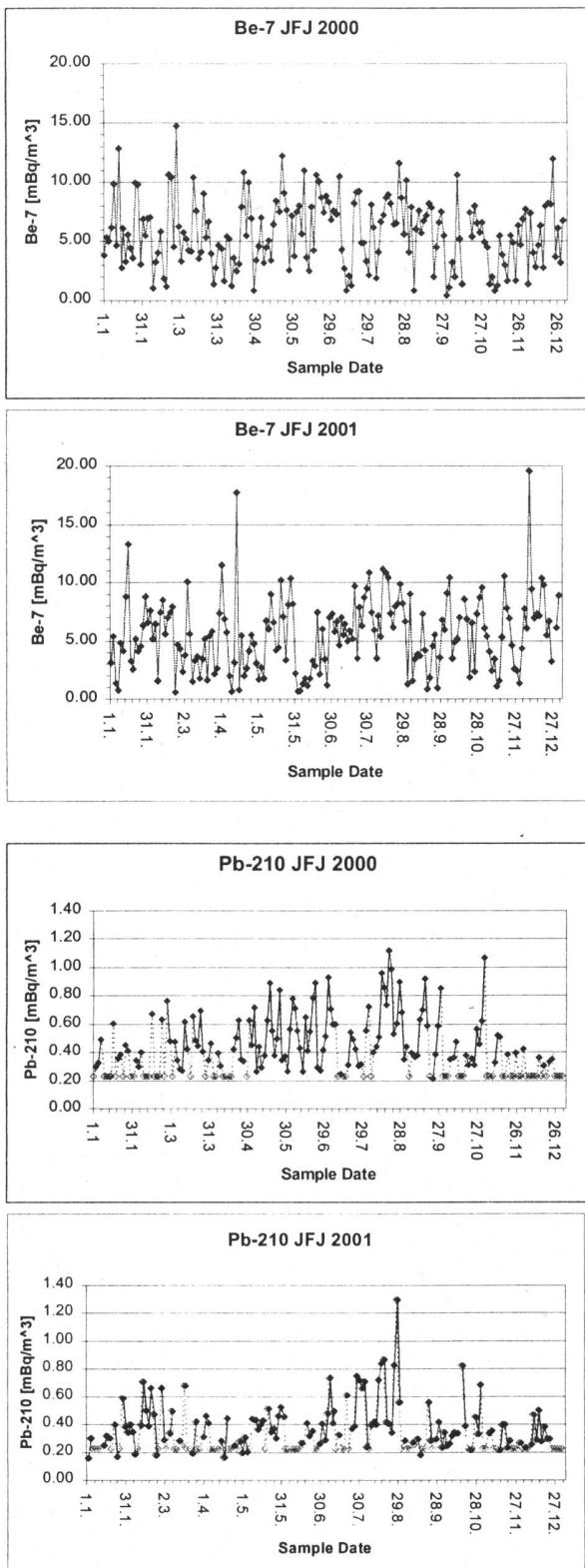
Jahr	<sup>7</sup> Be [mBq/m <sup>3</sup> ]		<sup>210</sup> Pb [mBq/m <sup>3</sup> ]	
	2000	2001	2000	2001
Mittelwert	5.70	5.52	0.38	0.31
Std. Abw.	2.87	3.15	0.24	0.20
Median	5.49	5.47	0.36	0.29
Min	0.43	0.55	< 0.23	< 0.23
Max	14.7	19.6	1.12	1.30
Anzahl N	184	183	184	183
N > NWG	182	182	125	121

**Tab.1:** Univariate Statistik der <sup>7</sup>Be und <sup>210</sup>Pb Aktivitätskonzentrationen.

Die Häufigkeitsverteilung von <sup>7</sup>Be ist sehr ähnlich zur Verteilung einer früheren Messreihe auf dem Jungfraujoch, die zwischen 1996-1998 erhoben wurde [5]. Jedoch lag der Median aller Werte (n = 568) in diesem früheren Zeitbereich bei 7 mBq/m<sup>3</sup> verglichen zu den 5.5 mBq/m<sup>3</sup> in den letzten beiden Jahren. Eine mögliche Erklärung dafür, könnte durch das Maximum im 11-Jahreszyklus der Sonnenaktivität im Jahr 2000 gegeben sein, was zu einer Abnahme in der <sup>7</sup>Be-Produktionsrate führt.

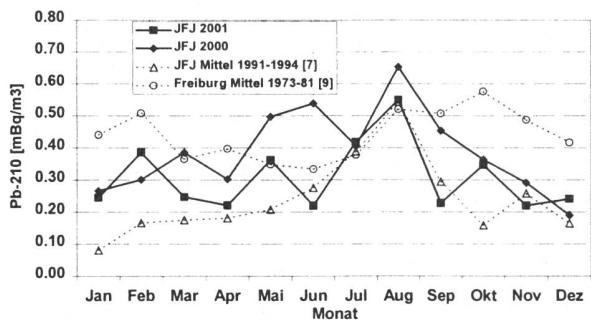
Die <sup>7</sup>Be Aktivitätskonzentrationen auf dem Jungfraujoch sind im Durchschnitt höher als an tiefergelegenen Standorten der Schweiz, wo <sup>7</sup>Be-Werte im Bereich von 1 - 6 mBq/m<sup>3</sup> in den Jahren 1996-2000 gefunden wurden [6].

Monatsmittelwerte der <sup>210</sup>Pb Aktivitätskonzentrationen für die Jahre 2000 und 2001 sind in Figur 2 aufgeführt. Man erkennt einen saisonalen Trend mit einem Maximum der Aktivität im Monat August für beide Jahre. Dies ist in Übereinstimmung mit Mittelwerten von Monatsfiltern von  $\alpha$ -Spektroskopiemessungen während der Jahre 1991-1994 auf dem Jungfraujoch [7]. Die höheren Werte der  $\gamma$ -Messungen dürften zu einem wesentlichen Teil auf die grosse Anzahl von Werten unterhalb der Nachweisgrenze und deren statistischen Behandlung liegen. Das Maximum im Sommer widerspiegelt den erhöhten konvektiven Transport von Aerosolen auf das Jungfraujoch [8].



**Fig. 1:**  $^7\text{Be}$  und  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitätskonzentrationen auf dem Jungfraujoch für die Jahre 2000 und 2001 (offene Rauten für  $^{210}\text{Pb}$  sind NWG).

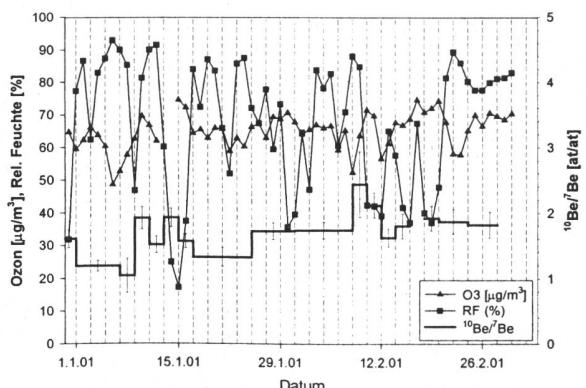
Die  $^{210}\text{Pb}$  Aktivitätskonzentrationen sind auch gut mit Messungen von Freiburg, Schweiz [9] vergleichbar (Figur 2).



**Fig. 2:** Monatsmittelwerte der  $^{210}\text{Pb}$  Aktivitätskonzentrationen für das Jahr 2000 und 2001 auf dem Jungfraujoch

Die Ergebnisse der teilweise in Wochenauflösung (abwechselnd 6-Tages- und 8-Tagesauflösung) und teilweise in der maximalen Zweitages-Auflösung gemessenen  $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$  – Verhältnisse für den Zeitraum von März 2000 bis Februar 2001 sollen hier nicht im einzelnen gezeigt werden. Stellvertretend dafür wird ein interessanter Ausschnitt mit stratosphärischen Intrusionen im Januar und Februar 2001 am Jungfraujoch dargestellt. Figur 3 zeigt atmosphärische  $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$  Isotopenverhältnisse, Ozonkonzentrationen und relative Feuchte für diesen Zeitraum.

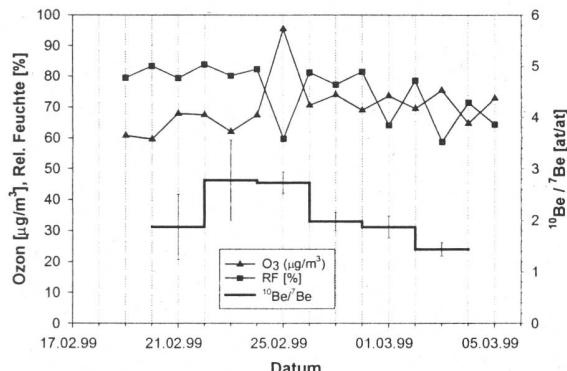
Die  $^{10}\text{Be} / ^7\text{Be}$  – Verhältnisse stiegen am 9. – 10. Januar und 13. – 14. Januar von vorher ungefähr 1.1 auf etwa 1.9 an. Eine einfache Abschätzung (unter Verwendung eines  $^{10}\text{Be} / ^7\text{Be}$  – Verhältnisses von 5 für den eingebrochenen stratosphärischen Tracer sowie von 1.1 für die Troposphäre) führt zu einem Anteil von etwa 20% stratosphärischer Luft für beide genannten Zwei-Tages-Proben. Auch die stark erhöhten  $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$  – Verhältnisse um den 10. Februar 2001 widerspiegeln eine stratosphärische Intrusion.



**Fig. 3:** Atmosphärische  $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$  – Verhältnisse und Tagesmittelwerte der Ozonkonzentrationen und der relativen Feuchte am Jungfraujoch im Januar und Februar 2001.

Als Beispiel für die Verfolgung eines Stratosphäreneinbruchs über die Analyse der atmosphärischen Parameter, Be-Isotopenverhältnisse, Ozonkonzentrationen und relative Feuchte, ist in Figur 4 eine Fallstudie vom Februar / März 1999 angeführt.

Das Be-Isotopenverhältnis wird durch die stratosphärische Intrusion von  $1.87 \pm 0.63$  für die erste Probe vom 20. bis 22. Februar auf  $2.73 \pm 0.21$  für die dritte Probe vom 24. bis 26. Februar erhöht. Aufgrund der Ozon- und relativen Feuchtedaten ist das bereits erhöhte  $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$  - Verhältnis von  $2.78 \pm 0.78$  der zweiten Probe vom 22. bis 24. Februar 1999 überraschend. Die Ursache hierfür liegt in extrem niedrigen Konzentrationen der beiden Einzelisotope,  $^{10}\text{Be}$  und  $^{7}\text{Be}$ , für die beiden ersten Proben. Diese Tatsache bewirkt die grossen relativen Standardabweichungen für diese beiden Proben.

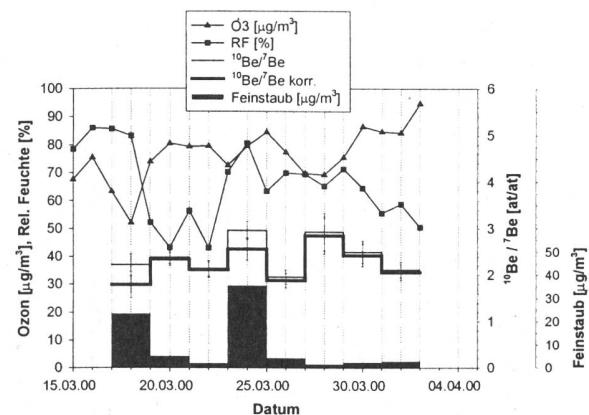


**Fig. 4:** Atmosphärische  $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$  - Verhältnisse und Tagesmittelwerte der Ozonkonzentrationen und der relativen Feuchte am Jungfraujoch während eines Zeitraums mit einer stratosphärischen Intrusion im Februar - März 1999.

Als weiteres Beispiel für einen Zeitraum mit stratosphärischen Intrusionen wird die zweite Hälfte des März 2000 präsentiert. Da in diesen Zeitraum auch Filterproben mit aussergewöhnlich hohen Konzentrationen an Feinstaub fallen, kann bei dieser Gelegenheit auch die Auswirkung einer Staubkorrektur auf das  $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$  - Verhältnis abgeschätzt werden. Die Ergebnisse für Ozon, relative Feuchte, Feinstaubkonzentration und für das unkorrigierte sowie das staubkorrigierte Be - Isotopenverhältnis am Jungfraujoch für die zweite Märzhälfte 2000 sind in Figur 5 dargestellt.

Die Probe vom 17. bis 18. März 2000 kann als Basislinie für das Be - Isotopenverhältnis vor der ersten Intrusion am Jungfraujoch im gezeigten Zeitraum verwendet werden. Für diese Probe wurde eine Feinstaubkonzentration von  $23.3 \mu\text{g} / \text{m}^3$  gemessen - der zweithöchste Wert des

Kalenderjahres 2000 am Jungfraujoch. Von Staub erwartet man, dass er an  $^{7}\text{Be}$  gegenüber  $^{10}\text{Be}$  stark abgereichert ist. Für die Staubkorrektur wurden  $(5 \pm 2) \cdot 10^8$  Atome  $^{10}\text{Be} / \text{g Staub}$  [10] und keinerlei  $^{7}\text{Be}$  in diesem Material verwendet.



**Fig. 5:** Atmosphärische  $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$  - Verhältnisse, vor und nach Staubkorrektur für  $^{10}\text{Be}$ , Feinstaubkonzentrationen sowie Tagesmittelwerte der Ozonkonzentrationen und der relativen Feuchte am Jungfraujoch während eines Zeitraums mit stratosphärischen Intrusionen im März 2000.

Das  $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$  - Verhältnis der Basislinienprobe änderte sich durch diese Korrektur um ca. 20% nach unten auf  $1.79 \pm 0.29$ . Das Ausmass dieser Korrektur kommt einer Maximalabschätzung einer Staubkorrektur sehr nahe. In der überwältigenden Anzahl der Fälle betragen derartige Korrekturen weniger als 5% des  $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$  - Verhältnisses. Die erste Intrusion vom 19. bis 20. März erhöhte das korrigierte  $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$  - Verhältnis von 1.79 auf  $2.34 \pm 0.14$ . Ein zweiter Stratosphäreneinbruch vom 23. bis 24. März liess dieses Verhältnis weiter (nach Staubkorrektur) auf  $2.56 \pm 0.24$  ansteigen. Für diese Probe betrug die Korrektur des Be - Isotopenverhältnisses für die höchste Staubkonzentration des Kalenderjahres 2000 ( $35.4 \mu\text{g} / \text{m}^3$ ) 15%.

## 5. Danksagung

Diese Arbeit ist Teil des EU Forschungsprojektes STACCATO und wurde unterstützt durch das Bundesamt für Bildung und Wissenschaft (BBW). Für die Probennahme und Lieferung der Luftfilter danken wir der Eidg. Materialprüfungs- und Forschungsanstalt EMPA (Betreiber des NABEL Netzwerkes), insbesondere Herrn Dr. R. Gehrig für seine Unterstützung. Ebenfalls bedanken wir uns bei Meteo Schweiz für die Klimadaten sowie beim Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft

BUWAL für die Lieferung der Ozonwerte vom Jungfraujoch.

## 6. Literatur

- [1] D. Koch, D. Rind, J. Geophys. Res. **103**, 3907-3917 (1998).
- [2] G.M. Raisbeck et al., Geophysical Research Letters, **8**, 1015-1018 (1981).
- [3] J.E. Dibb et al., J. Geophys. Res., **99**, 12855 - 12864 (1994).
- [4] NABEL Luftbelastung 1999, BUWAL, SRU-316 (2000).
- [5] E. Gerasopoulos et al., Atmos. Environment, **35**, 6347-6360 (2001).
- [6] H. Vökle et al., Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz 2000, BAG, Abt. Strahlenschutz, B.4.1.1. (2000).
- [7] H.W. Gäggeler, pers. Mitteilung.
- [8] M. Lugauer et al., Tellus **50B**, 76 (1998).
- [9] Bericht „25 Jahre Radioaktivitätsüberwachung in der Schweiz“, KUER c/o Physik. Institut Universität Freiburg (1982).
- [10] M.C. Monaghan et al., Earth Planet Sci. Lett. **76**, 279-287, (1985).