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

Herausgeber: Bundesamt für Gesundheit, Abteilung Strahlenschutz

Band: - (2003)

Rubrik: 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: 14.12.2025

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

4. Umwelt

4.1. Air, précipitations, rivières; eau de rejet des stations d'épuration et des usines d'incinération des déchets

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

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

Résumé

Durant l'année 2003, seules des traces de radioactivité artificielle ont été détectées dans l'air et dans les précipitations, à l'exception du tritium, observé en plus grande quantité dans les pluies au voisinage des entreprises utilisatrices de tritium ainsi que dans les eaux de lavage des fumées des usines d'incinération.

4.1.1 Air

La surveillance de l'air s'effectue d'une part à l'aide de collecteurs d'aérosols à moyen débit (40 m^3/h) situés aux environs des centrales nucléaires (Gösgen-Däniken, Leibstadt et Mühleberg) ainsi que de collecteurs d'aérosols à haut débit (env. 500 m^3/h) situés à Oberschrot/FR, Genève (au voisinage du CERN), Monte-Ceneri/TI, Güttingen/TG et Klingnau/TG; et d'autre part, à l'aide des 11 stations automatiques de surveillance de l'air composant le réseau RADAIR. Les aérosols sont collectés en continu et les filtres des stations à moyen débit sont mesurés mensuellement, alors que ceux des stations à haut débit le sont de façon hebdomadaire. Dans le cas des stations RADAIR, les filtres sont mesurés toutes les 30 min, permettant une détection rapide d'une éventuelle hausse significative de la radioactivité.

Pour les trois systèmes de surveillance, les limites de détection suivantes sont atteintes :

- Collecteur d'aérosols à moyen débit, pour le radionucléide ^{137}Cs, échantillon mensuel : 2 micro-Bq/m^3
- Collecteur d'aérosols à haut débit, pour le radionucléide ^{137}Cs, échantillon hebdomadaire: 0.5 micro-Bq/m^3
- RADAIR, activité bêta nette, pour des durées de collection et de mesure de 30 min. : 0.5 Bq/m^3

Voisinage des centrales nucléaires
(voir aussi Chap. 8).

Le collecteur d'aérosols situés aux environs de la centrale nucléaire de Leibstadt n'a pas fonctionné en 2003 pour cause de révision.

Les filtres aérosols des environs de la centrale nucléaire de Mühleberg n'ont pas présenté de radioactivité artificielle mesurable durant l'année 2003, à l'exception de traces de ^{137}Cs (0.2 à 6 micro-Bq/m^3) attribuables à la remise en suspension des dépôts de Tchernobyl. Des traces de ^{60}Co (0.9 micro-Bq/m^3) et de ^{110m}Ag (0.5 micro-Bq/m^3) ont été mises en évidence dans les filtres provenant des environs de la centrale de Gösgen au mois de juin. Leur impact radiologique est cependant négligeable, puisque les valeurs mesurées pour chacun de ces isotopes représentent moins de 0.0001% des limites d'immission suisses.

Seuls les radionucléides naturels ^{7}Be et ^{210}Pb ont pu être mis en évidence (valeurs comprises entre 0.8 et 2.9 et entre 0.4 et 6.5 milli-Bq/m^3 respectivement).

Collecteurs d'aérosols à haut débit

La station de collection à haut débit d'Oberschrot/FR a été remise en fonctionnement en septembre 2003, après plus d'une année d'arrêt pour rénovation. De janvier à septembre 2003, les filtres du collecteur d'aérosols à moyen débit de Fribourg ont été mesurés chaque semaine en remplacement. Les valeurs mesurées dans les 5 stations de collection à haut débit en service sont représentées graphiquement sur les figures 1 à 5. Comme les années précédentes, on constate la prédominance des radioéléments d'origine naturelle ^{7}Be et ^{210}Pb. Des valeurs comprises entre 0.6 et 7.6 et entre 0.1 et 3.9 milli-Bq/m^3 ont été mesurées respectivement pour ces deux isotopes.

Des traces de ^{22}Na, d'origine naturelle, ont également été détectées dans les 5 stations (valeurs comprises entre 0.1 et 2.5 micro-Bq/m^3).

Le ^{137}Cs, attribuable à la remise en suspension dans l'air de l'ancienne déposition de Tchernobyl, est l'unique radioisotope d'origine artificielle régulièrement identifié, et ce, dans les 5 stations (cf Figures 1 à 5). Les activités mesurées pour cet isotope sont toutefois très faibles (au maximum 6.5 micro-Bq/m^3).

A la station du CERN, cette méthode, d'une extrême sensibilité, a permis de mettre en évidence des traces sporadiques de ^{131}I (valeurs comprises entre 0.4 et 1 micro-Bq/m^3) et de ^{24}Na (entre 4 et 160 micro-Bq/m^3), radionucléides produits dans l'accélérateur de particules du centre de recherche. Des traces de ^{24}Na (19 micro-Bq/m^3) ont également été détectée à la mi-novembre à Klingnau (5.4 km au nord du PSI), et une valeur de 1 micro Bq/m^3 de ^{131}I a été mesurée début juin à Güttingen. Notons que ces concentrations sont nettement inférieures aux limites d'immission stipulées dans l'ORaP (2.6 Bq/m^3 pour le ^{131}I; 100 Bq/m^3 pour le ^{24}Na) et ne présentent donc aucun danger du point de vue radiologique.

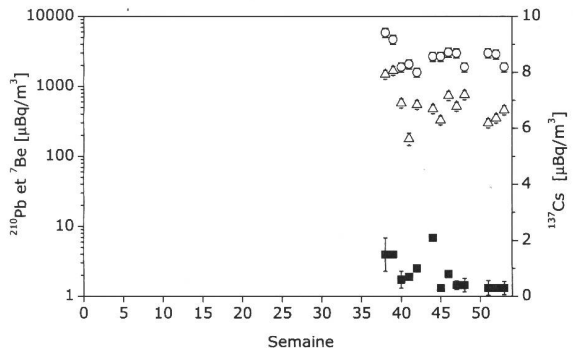


Figure 1 Oberschrot / FR

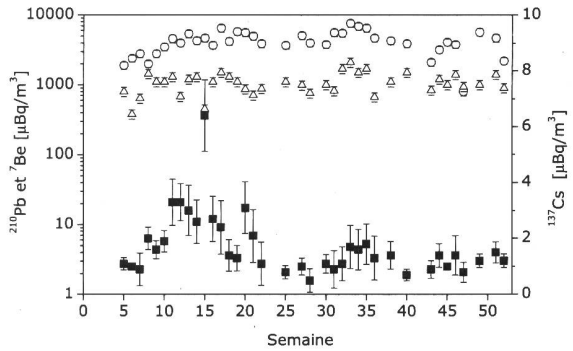


Figure 2 Monte Ceneri / TI

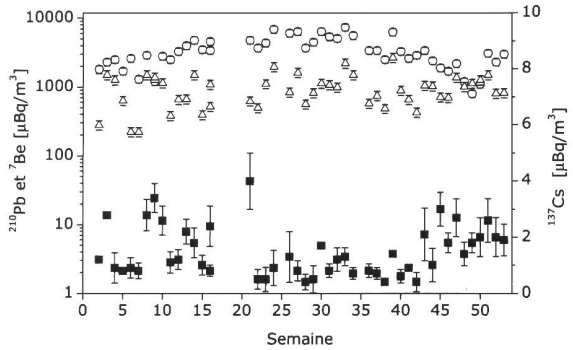


Figure 3 Güttingen / TG

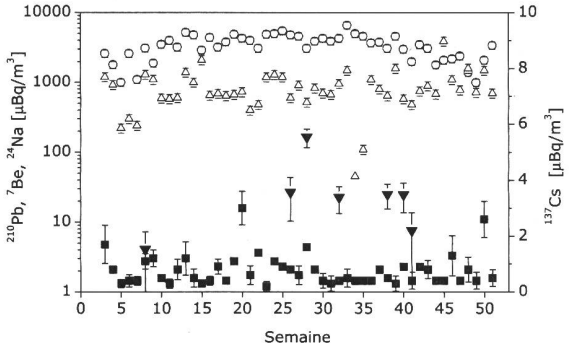


Figure 4 CERN / GE

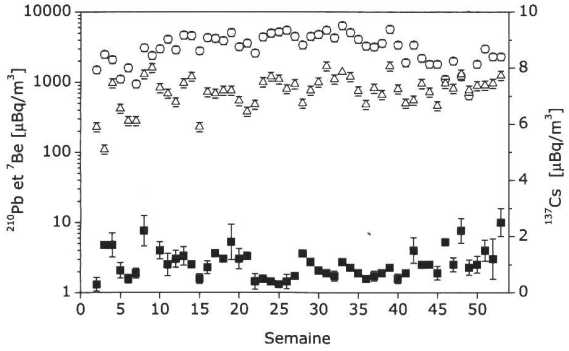


Figure 5 Klingnau / AG

Légendes pour les figures 1 à 5 :

○	^{7}Be	▼	^{24}Na
△	^{210}Pb	■	^{137}Cs

N.B. concernant le ^{137}Cs : Les carrés noirs (symboles attribués au ^{137}Cs) représentés sur les figures 1 à 5 sans barre d'erreur correspondent à des limites de détection et non pas à des activités effectivement mesurées.

Figures 1 à 5:

Collecteurs d'aérosols à haut débit (HVS): - échelle logarithmique de gauche 1 - 10'000 µBq/m^3: ^{7}Be, ^{210}Pb, ^{24}Na
- échelle linéaire de droite 1 – 10 µBq/m^3: ^{137}Cs

RADAIR. Réseau automatique de surveillance de l'air

a) Les améliorations apportées en 2003 :

De façon à être compatible avec le réseau informatique de l'IDZ-EDI, le réseau RADAIR a également été migré de Windows NT4 vers Windows 2000.

- Afin que tous les utilisateurs RADAIR puissent accéder aux données des moniteurs par le biais de l'application client installée sur les stations de travail personnelles, le logiciel client a été migré sous Windows 2000. De même, afin d'être reconnu dans la « forêt » de l'IDZ-EDI, il a fallu migrer sous Windows 2000, la base de donnée, le serveur RADAIR et les serveurs de communication.
- Le moniteur spectroscopique n'est pas resté à la traîne puisque le PC de contrôle et d'analyse des données vient d'être migré sous Windows 2000. Par contre les moniteurs d'aérosols et de iode fonctionnent toujours sous Windows 3.11.
- A cela s'ajoute une autre amélioration : les alarmes techniques et de radioactivité transmises aux opérateurs RADAIR dans l'application client et sur Pager, sont maintenant disponibles sur les téléphones portables par le biais de la messagerie SMS.
- Autre « migration » : les moniteurs d'aérosols et de iode du canton du Tessin ont déménagé avec le laboratoire cantonal de Lugano à Bellinzona.
- Enfin, les premiers tests de transmission d'alarmes de radioactivité de niveau 2 vers la NAZ ont été couronnés de succès et la mise en fonction se fera au cours de l'année 2004.

b) Les mesures :

- Le mécanisme de compensation des moniteurs alpha-bêta consiste à mesurer les activités alpha, supposées d'origine naturelle (voir Fig.6, 8 et 10), et bêta totale. Une portion constante de l'activité alpha est ensuite soustraite de l'activité bêta totale afin de déterminer la contribution bêta d'origine artificielle (voir Fig. 7, 9, 11). Ce mécanisme de compensation a permis de s'assurer que les concentrations artificielles sont restées en dessous des limites de détection, nonobstant les fortes fluctuations diurnes – nocturnes de radioactivité naturelle dues principalement à cet été chaud et sec. A cause de la présence irrégulière de Radon sur le sol suisse (comparer Fig. 6, 8 et 10), les limites de détection ne sont pas identiques dans tous les sites. Elle sont, en général, de l'ordre d'un demi Becquerel par mètre cube, comme à Güttingen (Figure 7), par contre pour le site de Bellinzona (Figure 9), cette limite est plus élevée et avoisine 0.7 Bq/m^3 ; enfin pour le site du Jungfraujoch (Figure 11), où la teneur en Radon est faible, on obtient une limite de l'ordre de 0.09 Bq/m^3, soit environ 6 à 8 fois meilleure que pour les stations de plaine.

- Les trois moniteurs mesurant l'I-131 de Fribourg, du PSI et de Bellinzona n'ont pas décelé de valeurs en dessus de la limite de détection qui est de 0.05 Bq / m^3.

- Le moniteur spectroscopique de la station de Fribourg a confirmé que les concentrations des principaux isotopes artificiels sont restées inférieures à la limite de détection de 10 mBq / m^3 pour un temps d'accumulation de 24 h.

c) Les pannes :

L'année a été très bonne puisque le taux de bon fonctionnement s'est situé entre 95 et 99 % suivant les stations. Avec la chaleur de l'été 2003, les climatisations des stations situées sous les toits ont été mises à rude épreuve et les plus faibles seront révisées.

Les points délicats des moniteurs d'aérosols restent le changement du filtre et son enroulement.

4.1.2 Précipitations

Les échantillons de pluie ont été collectés aux environs des centrales nucléaires de Mühleberg, Leibstadt et Gösgen-Däniken ainsi que dans divers endroits de Suisse (Davos, Cernier/NE, Fribourg, Locarno-Monti et La Valsainte/FR) et mesurés chaque mois. A l'exception de traces de ^{137}Cs (valeurs situées entre 5 et 6 mBq/l) mesurées à 1 resp. 2 reprises dans les stations de La Valsainte et de Locarno, aucun radio-isotope d'origine artificielle n'a été détecté. Notons par ailleurs que les activités du ^{137}Cs mesurées étaient proches des limites de détection et les incertitudes, par conséquent, relativement élevées (> 50 %). Des valeurs comprises entre 0.1 et 3 Bq/l ont été mesurées pour le ^{7}Be naturel.

Les activités du tritium des échantillons de pluie récoltés aux environs des centrales nucléaires de Mühleberg et Gösgen-Däniken sont inférieures à 5 Bq/l. Des valeurs légèrement plus élevées, comprises entre 5 et 9 Bq/l ont par contre été mesurées dans les eaux de pluies de Leibstadt entre janvier et mars, ainsi qu'en novembre et décembre 2003 (Voir également Chap. 8). Les concentrations de tritium mesurées dans les pluies de Fribourg sont inférieures à 3 Bq/l.

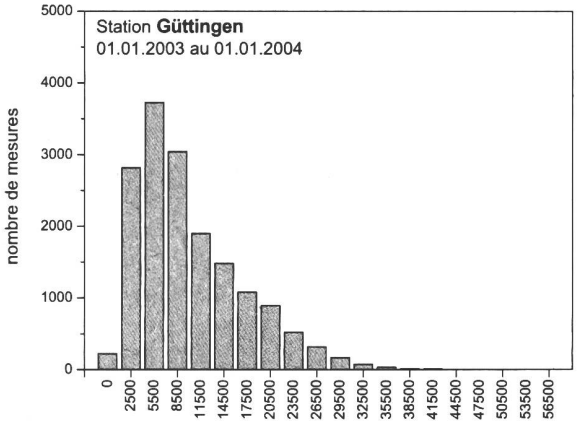


Figure 6
Station RADAIR de Güttingen
contribution alpha naturelle normée en mBq/m^3.

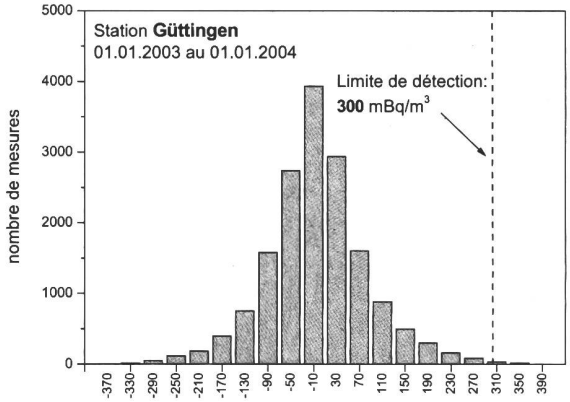


Figure 7
Station RADAIR de Güttingen
contribution bêta artificielle normée en mBq/m^3.

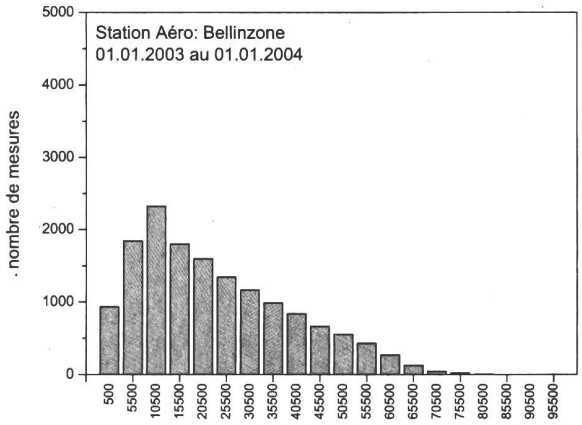


Figure 8
Station RADAIR de Bellinzone
contribution Alpha naturelle normée en mBq/m^3.

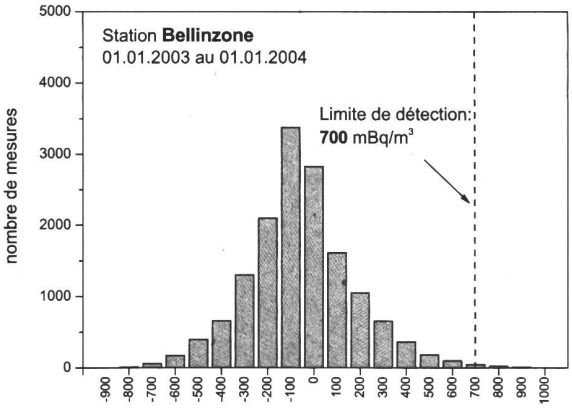


Figure 9
Station RADAIR de Bellinzone
contribution Bêta artificielle normée en mBq/m^3.

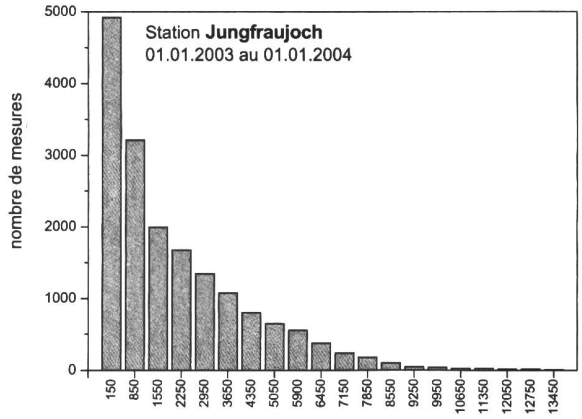


Figure 10
Station RADAIR de la Jungfraujoch
contribution Alpha naturelle normée en mBq/m^3.

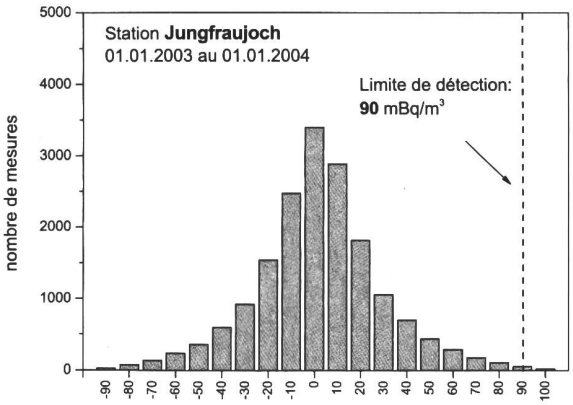


Figure 11
Station RADAIR de la Jungfraujoch
contribution Bêta artificielle normée en mBq/m^3.

Tableau1
Tritium dans les précipitations au voisinage des entreprises

Lieu	Emplacement	Valeur min/max (Bq/l)	Moyenne (Bq/l)
La Chaux-de-Fonds	Ancien Moulins	< 10	—
Teufen/AR	65 m E Firma TCT	120 – 1580	607

Niederwangen/BE	Emplacement	Valeur min/max (Bq/l)	Médiane (Bq/l)
Bauernhaus	300 m SE de l'entreprise	30 – 300	160
Garage	200 m SW de l'entreprise	34 – 310	160
Gemeinde Köniz	180 m NNW de l'entreprise	50 – 280	150
Firma Schär	320 m NE de l'entreprise	150 – 800	350

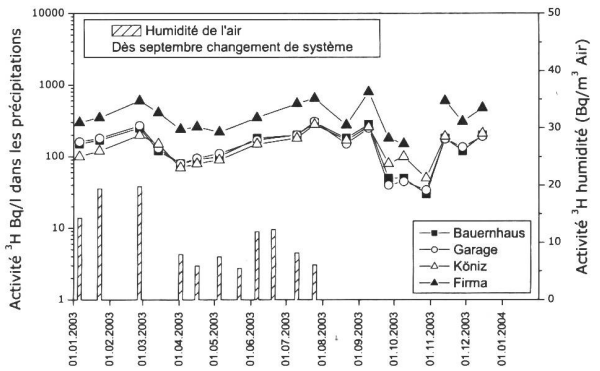


Figure 12
Activité Tritium dans les précipitations (Bq/l) et dans l'humidité de l'air (Bq/m^3 d'air) de Niederwangen / BE.

Voisinage des entreprises utilisatrices de Tritium (voir aussi Chap. 4.2 et 9.1)

A La Chaux-de-Fonds, Teufen/AR (Firma RCT) et près de Niederwangen/BE (Firma mb microtec) où sont situées des entreprises utilisatrices de tritium, des échantillons de pluie sont collectés chaque semaine et un mélange des semaines est mesuré chaque mois (tous les 14 jours, pour Niederwangen) afin de déterminer l'activité du tritium dans les précipitations. Les résultats sont résumés dans le tableau 1. A Niederwangen, l'activité du tritium dans l'humidité de l'air a également été mesurée tous les 14 jours (Fig. 12), jusqu'à fin juillet 2003. L'installation n'a pas fonctionné les cinq derniers mois de l'année pour cause de rénovation. Les valeurs mesurées se situent entre 5.5 et 20 Bq/m^3 avec une valeur médiane de 8 Bq/m^3.

4.1.3 Fleuves

Les échantillons des eaux du Ticino (près de Contone) ainsi que du Rhône (près de Porte-du-Scex/VS et de Chancy/GE), mesurés chaque mois, n'ont pas présenté de radioactivité gamma d'origine artificielle, à l'exception de traces de ^{137}Cs détectées sporadiquement (valeurs comprises entre 4 et 7 mBq/l).

Les activités moyennes du tritium mesurées en 2003 dans ces échantillons, ainsi que dans ceux collectés dans l'Aar en amont de la centrale nucléaire de Mülheberg, sont inférieures à 2 Bq/l. La concentration moyenne du tritium mesurée dans le Rhin près de Weil/D, en aval de Bâle, est de 2.5 ± 1 Bq/l.

Les activités des divers émetteurs gamma artificiels dans les eaux de l'Aar et du Rhin sont étudiées au Chap. 4.2.

On trouvera un résumé des valeurs de Tritium mesurées dans les précipitations et les fleuves au Chap. 7.1.

4.1.4 Station d'épuration (STEP) et eau de lavage des fumées des usines d'incinération (UI)

Plusieurs laboratoires analysent les eaux des stations d'épuration des agglomérations de Zürich, Bâle, Berne, Lausanne, La Chaux-de-Fonds et de la commune de Teufen ainsi que les eaux de lavage des fumées des usines d'incinération de Bâle-Ville et de Bienne afin de déterminer les quantités de Tritium et d'^{131}I rejetées dans l'environnement. Le tritium provient de l'industrie horlogère ou de la combustion de déchets contenant du tritium dans

les usines d'incinération, l'iode des applications médicales. Les résultats de ces mesures sont résumés dans le tableau 2.

Des « pics de concentration » de tritium dépassant les 10'000 Bq/l (et pouvant atteindre jusqu'à 570'000 Bq/l) ont été observés à 4 reprises et sur de courtes périodes (1 ou 2 jours consécutifs) dans les eaux de lavage des fumées de l'usine d'incinération de Bâle en 2003. Malgré les recherches intensives menées par l'OFSP conjointement avec le laboratoire cantonale de Bâle-Ville, leur origine n'a pu être éclaircie avec certitude. Toutefois, la combustion de montres contenant du tritium, qui auraient été jetées dans les ordures ménagères, constitue une explication possible.

Les valeurs de tritium observées à la STEP de la région de La Chaux-de-Fonds s'expliquent par le fait que l'eau de lavage des fumées de l'usine d'incinération arrive également dans la STEP. Pour l'année 2003, comme pour l'année précédente, la charge en tritium à la sortie de la STEP de la Chaux-de-Fonds est estimée à 1.9 TBq. Après la forte diminution observée durant les années nonantes (42 TBq en 1990, 4.2 TBq en 2000), cette valeur semble donc se stabiliser.

Tableau 2
Tritium et Iode-131 dans les eaux de rejet des usines d'incinération et des stations d'épuration (STEP)

Ville	Laboratoire	Isotope	Nombre	Valeur min/max (Bq/l)	Médiane (Bq/l)	Moyenne (Bq/l)
STEP Bâle	KL-BS	^{131}I	51	< 0.1-0.6	0.2	—
		^{3}H	51	< 1 – 35.4	2.4	—
Usine d'incinération Bâle		^{131}I	50	< 0.2 – 2.6	—	—
		^{3}H	68	270 – 570'000	946	18'310
STEP Berne	Labor Spiez	^{131}I	52	< 0.12 – 5.6	0.34	—
	SUER	^{3}H	12	< 10	—	—
Usine d'incinération Bienne	SUER	^{3}H	51	< 10 - 800	30	—
STEP La Chaux-de-Fonds	SUER	^{3}H	32	27 - 1570	210	256
STEP Lausanne	IRA	^{131}I	47	< 0.2 – 0.5	—	—
		^{3}H	12	< 3 – 9	—	—
STEP Zürich	EAWAG	^{131}I	52	< 1	—	—
	SUER	^{3}H	12	0.8 - 3.9	1.8	2.1

4.2. Radioaktivität in aquatischen Systemen

J. Beer, E. Grieder, I. Brunner
EAWAG, Abteilung SURF/RT, 8600 DÜBENDORF

Zusammenfassung

In den monatlichen Wasserproben von Aare und Rhein wurden hauptsächlich ^{60}Co von Mühleberg, ^{58}Co von Beznau und ^{137}Cs vom Tschernobylunfall nachgewiesen. In den Sedimentfallenproben von Hagneck, Klingnau und Pratteln wurden zusätzlich noch ^{54}Mn und vereinzelt ^{65}Zn gefunden, vor allem zu Zeiten der Revisionen.

Im Rahmen der jährlich durchgeführten koordinierten Abgabe wurde am 1.10.03 die Dispersion der vom Kernkraftwerk Mühleberg in die Aare eingeleiteten Radionuklide bis Hagneck modellmässig bestimmt und mittels Messungen erfolgreich bestätigt.

Im Rhein oberhalb der Aaremündung konnten keine künstlichen Radionuklide festgestellt werden. In Fischen und Wasserpflanzen waren nur ^{40}K und geringe Spuren von ^{60}Co und ^{137}Cs nachweisbar. Messungen am Grundwasser der Pumpstationen Aarberg, Döttingen und Pratteln ergaben keine Hinweise auf infiltrierte künstliche Radionuklide. Auch im Abwasser der ARA Werdhölzli in Zürich konnten keine künstlichen Radionuklide gefunden werden. In der Rauchwasserwaschanlage der Kehrichtverbrennungsanlage Hagenholz dagegen zeigten zwei Monatsproben Spuren von ^{137}Cs und eine etwas ^{131}I (7±1 Bq/L). Insgesamt führen die gefundenen Aktivitäten in aquatischen Systemen zu keiner messbaren Erhöhung der Strahlenbelastung.

Ziele

Die meisten künstlichen Radionuklide gelangen direkt über das Abwasser oder indirekt über den Niederschlag in den Wasserkreislauf. Eine kontinuierliche Überwachung der Radioaktivität in aquatischen Systemen erlaubt es deshalb, frühzeitig Änderungen in den Abgaben der entsprechenden Betriebe zu erkennen und die Gesamtaktivität, welche die Schweiz im Rhein verlässt, zu bilanzieren.

Methoden

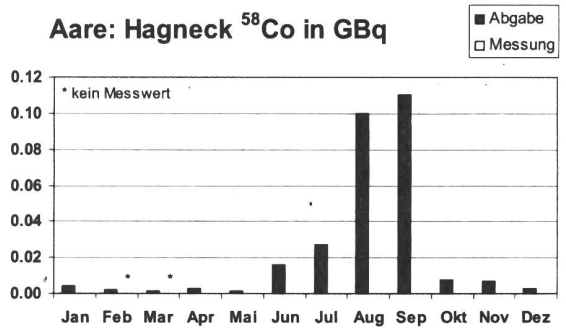
Die Aktivitäten aller in unserem Labor gemessenen Radionuklide werden mittels Gammaspektroskopie bestimmt. Sedimente, Fisch- und Pflanzenproben werden gefriergetrocknet und die Aktivität pro Trockengewicht erhoben. In den grossvolumigen monatlichen Sammelproben von Hagneck, Klingnau und Pratteln werden die Radionuklide durch eine Eisenhydroxidfällung aufkonzentriert und gemessen. Die Proben der Kläranlage Zürich sowie die Rheinproben von Diepoldsau und Reckingen werden direkt gemessen. Die Bestimmung der Tritiumkonzentrationen wird ab 2003 durch das Labor Liebefeld der SUER und die Bundesanstalt für Gewässerkunde in Koblenz durchgeführt.

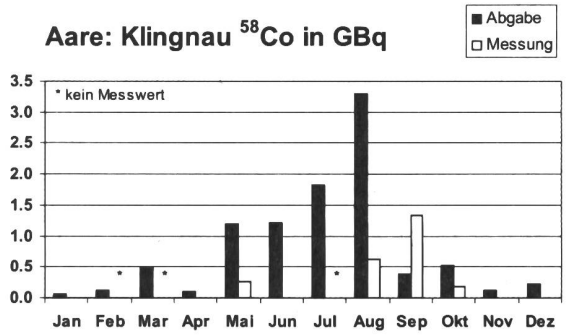
4.2.1 Zusammenfassung der Ergebnisse

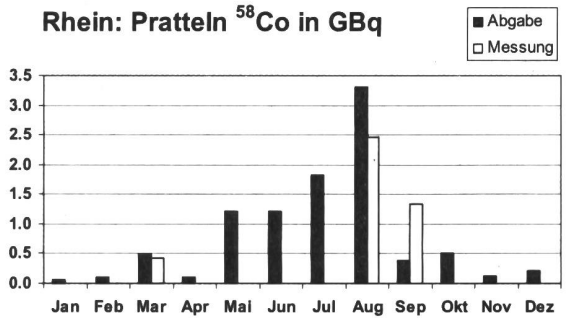
Kernanlagen

Wasserproben

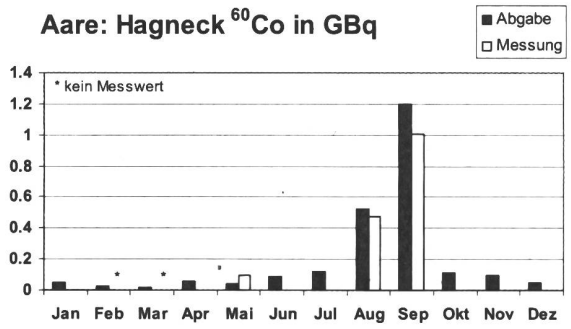
Monatliche Wasserproben werden entlang von Aare und Rhein an drei Standorten gesammelt. Die Station Hagneck liegt unterhalb des Kernkraftwerks Mühleberg am Einfluss der Aare in den Bielersee, die Station Klingnau überwacht die Abgaben von Mühleberg, Beznau und Gösgen und die Station Pratteln schliesslich umfasst zusätzlich noch die Abgaben von Leibstadt in den Rhein. Entsprechend dem jeweiligen Abfluss werden pro Tag automatisch zwischen 20 und 40 Proben genommen, was über einen Monat eine Gesamtprobe von 50 bis 100 L ergibt. Die Zuverlässigkeit der Probenahmestationen ist immer noch nicht ganz befriedigend. Insbesondere hat sich die Situation in Klingnau durch die Inbetriebnahme einer Abwasserleitung einer Kläranlage stark verschlechtert. Die Probenahmestelle wird deshalb 2004 verlegt.

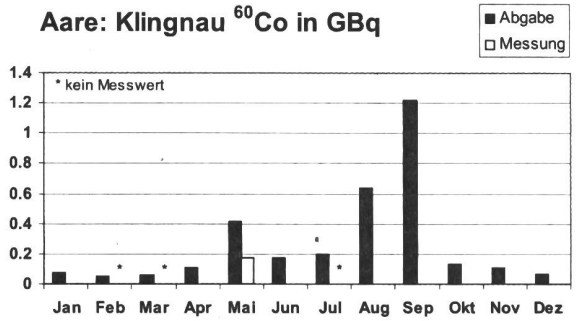


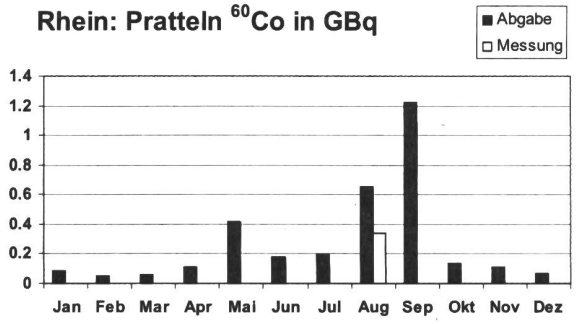




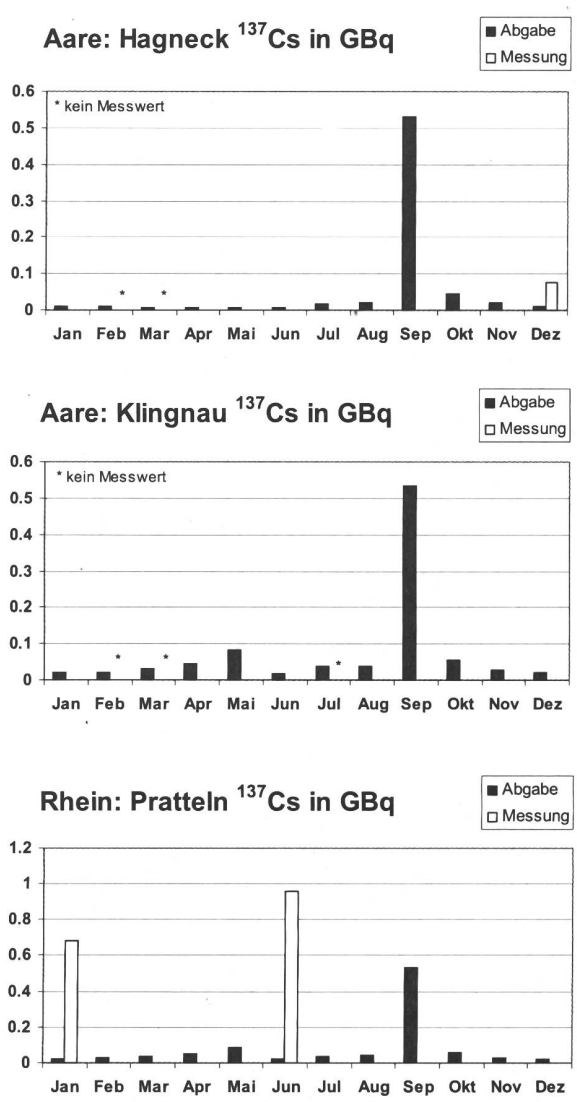
Figur 1
^{58}Co-Aktivitäten an den drei Probenahmestationen Hagneck, Klingnau und Pratteln. Die Abgaben der Kernkraftwerke (schwarz) erfolgten vor allem während der Revisionen in den Sommermonaten. ^{58}Co stammt zum grössten Teil von Beznau. In Mühleberg liegen die Messwerte unter der Nachweisgrenze. Im August ging ein Teil der Probe von Klingnau verloren. Dies wird durch den Messwert von Pratteln bestätigt.







Figur 2
^{60}Co-Aktivitäten an den drei Probenahmestationen Hagneck, Klingnau und Pratteln. Die Abgaben stammen vor allem von Mühleberg und passen sehr gut mit den Messwerten von Hagneck überein, wenn man berücksichtigt, dass ein Teil des ^{60}Co sedimentiert. Fast alle übrigen Messwerte liegen unter der Nachweisgrenze.



Figur 3
^{137}Cs-Aktivitäten an den drei Probenahmestationen Hagneck, Klingnau und Pratteln. Der Vergleich der Messwerte mit den Abgaben zeigt, dass ^{137}Cs im Rhein in Pratteln primär noch vom Tschernobylunfall und nicht aus den Kernkraftwerken stammt.

Die Figuren 1 bis 3 zeigen jeweils für die drei erwähnten Probenahmestationen die total von den flussaufwärts liegenden Kernkraftwerken abgegebenen Aktivitäten von ^{58}Co, ^{60}Co und ^{137}Cs zusammen mit den aufgrund der Messungen ermittelten Aktivitäten (gemessene spezifische Aktivität x mittlerer monatlicher Abfluss x Dauer der Sammelperiode).

^{58}Co stammt zum grössten Teil von den beiden Reaktorblöcken in Beznau. Die höchsten Aktivitäten wurden in den Sommermonaten gemessen zu den Zeiten der Revisionen (Mühleberg: 10.8.-31.8., Beznau 1: 10.6.-26.6., Beznau 2: 25.7.-19.8.). Die gemessenen Aktivitäten sind generell etwas tiefer als die Abgaben, was zu erwarten ist, da ein Teil des Kobalts sich an Partikel anlagert und sedimentiert. Aufgrund unserer Messungen haben ca. 4.2 GBq ^{58}Co im Rhein die Schweiz verlassen, was rund 45% der Abgaben entspricht.

Im Gegensatz zu ^{58}Co stammt das meiste ^{60}Co aus dem Kernkraftwerk Mühleberg. Die grössten Abgaben erfolgten im August und September während der Revision. Die Übereinstimmung zwischen Abgabe und Messung ist unter Berücksichtigung der Sedimentation sehr gut.

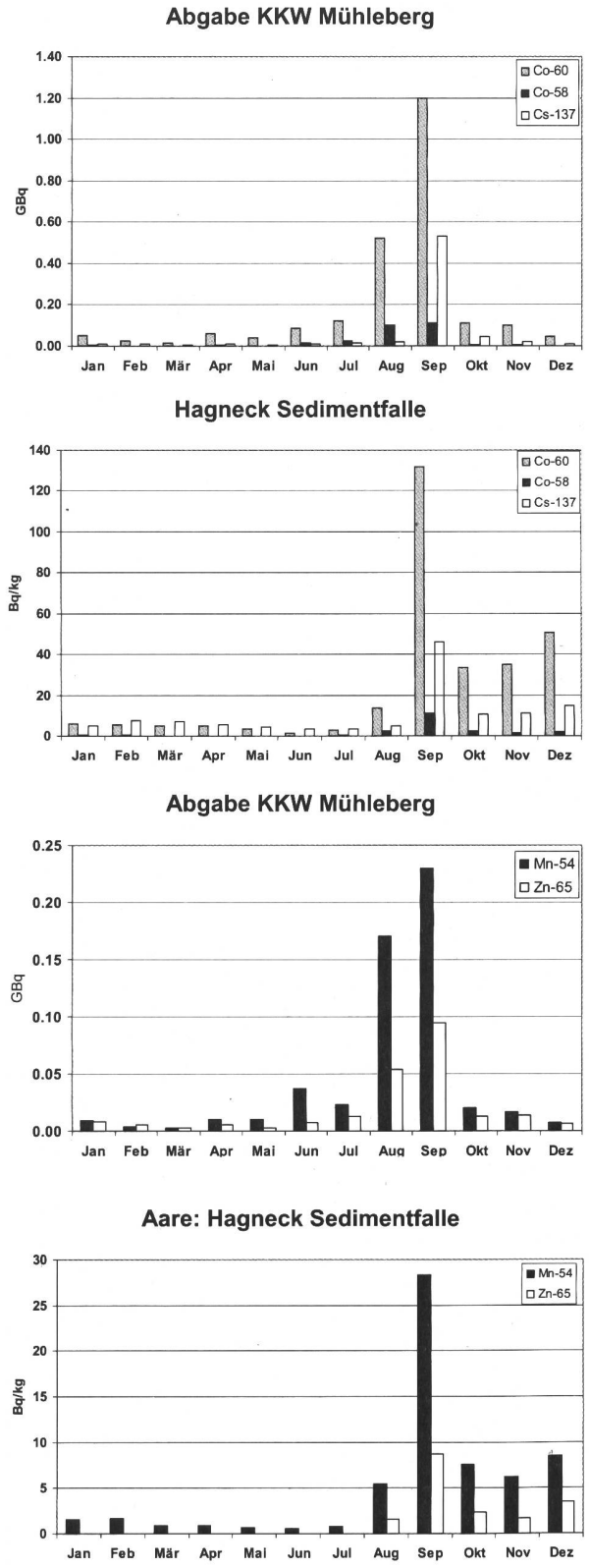
Bei den andern Probenahmestationen liegen die Messwerte unter der Nachweisgrenze oder fehlen als Folge technischer Probleme.

Im Falle von ^{137}Cs (Fig. 3) liegen mit einer Ausnahme alle Messwerte von Aarewasser unterhalb der Nachweisgrenze (0,2 – 0,7 Bq/m^3). Im Rhein dagegen waren 2 Proben messbar und ergaben Werte, die deutlich über den Abgaben liegen. Dieses Phänomen, das auch in früheren Jahren beobachtet wurde, ist vor allem auf die Remobilisierung von ^{137}Cs vom Tschernobyl Unfall zurückzuführen.

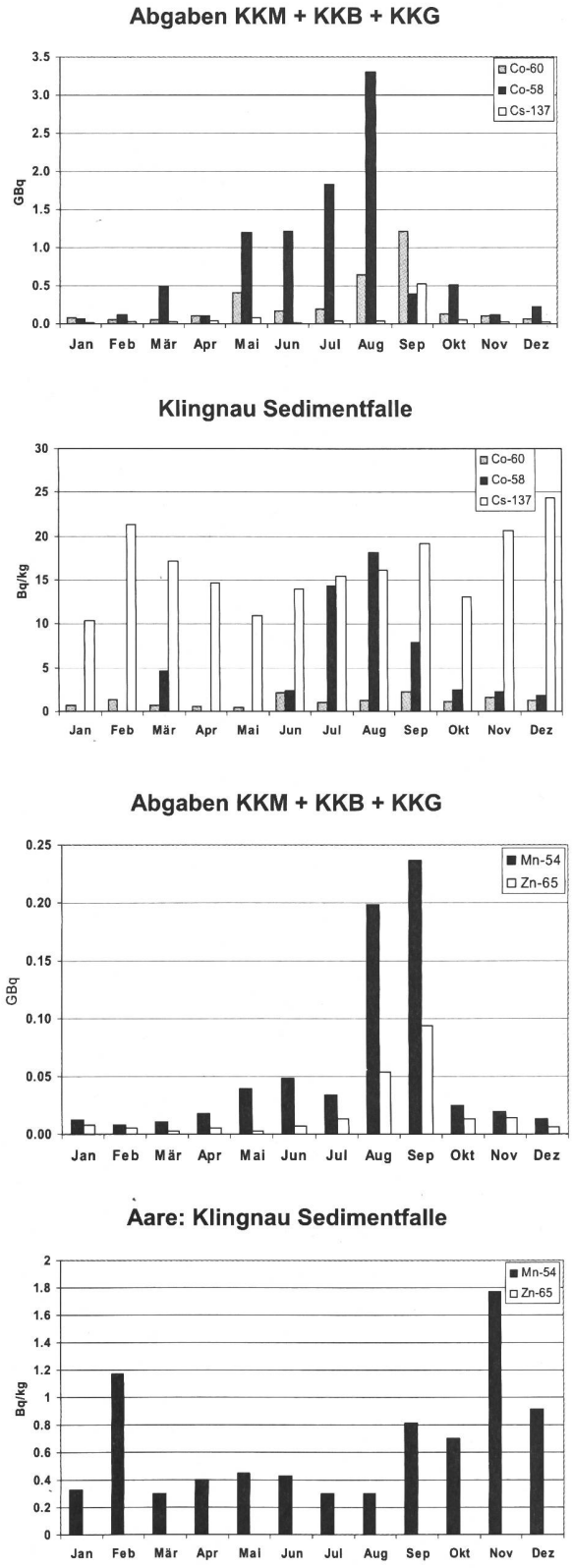
Ausser den in den Figuren dargestellten Radionukliden wurden keine weiteren gammaaktive künstliche Radionuklide (z.B. ^{54}Mn, ^{65}Zn) nachgewiesen, wohl aber natürliche wie ^{7}Be, ^{40}K und ^{210}Pb.

Sedimentproben

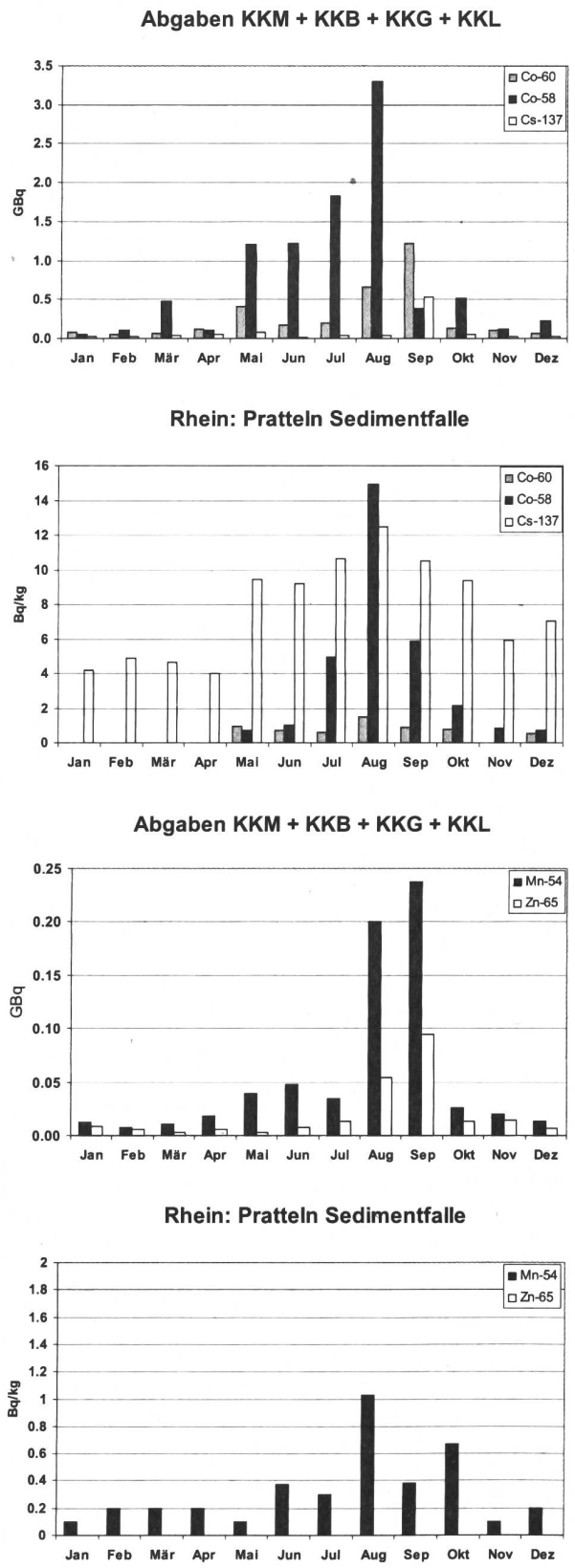
Bekanntlich sind die meisten von den Kernkraftwerken abgegebenen Radionuklide partikelreaktiv. Ein Teil wird deshalb je nach den Fliesseigenschaften von Aare und Rhein mehr oder weniger schnell sedimentiert und teilweise später wieder resuspendiert. Um sich ein qualitatives Bild über diese Sedimentationsvorgänge zu machen, werden an den drei Probenahmestellen in relativ ruhigem Wasser Sedimentfallen ausgesetzt, in denen sich die Partikel ablagern.



Figur 4
Diese Figur besteht aus zwei Teilfiguren, wobei jeweils die obere die Abgaben des Kernkraftwerks Mühleberg zeigt und die untere die entsprechenden Aktivitäten in den Sedimentfallenproben von Hagneck. Wie erwartet steigen die Konzentrationen während und nach den erhöhten Abgaben im Sommer deutlich an.



Figur 5
Die Sedimentfallenproben von Klingnau zeigen vor allem ^{137}Cs, das nur zu einem geringen Teil aus den flussaufwärts liegenden Kernkraftwerken stammt. Die Aktivitäten von ^{58}Co und ^{54}Mn stimmen dagegen generell gut mit den Abgaben überein.



Figur 6
Die in den Sedimentfallen von Pratteln gemessenen Aktivitäten zeigen ein ähnliches Bild wie in Klingnau. ^{137}Cs stammt vermutlich zum grössten Teil vom Tschernobylunfall und ^{58}Co ist erhöht während der Revisionen der 2 Reaktorblöcke in Beznau. Die ^{65}Zn Werte liegen wie auch bei Klingnau unter der Nachweisgrenze.

Die in diesen Sedimentfallen gemessenen spezifischen Aktivitäten sind in den Figuren 4 bis 6 dargestellt, wobei jeweils im oberen Teil der Figuren die abgegebenen Aktivitäten in GBq angegeben sind und im unteren Teil die entsprechenden gefundenen spezifischen Aktivitäten in Bq/kg. Wie bereits erwähnt, erfolgten die grössten Abgaben während der Revisionen im August und September. Dies zeigt sich auch in den Sedimentfallendaten, wobei vermutlich durch einen relativ langsamen Partikeltransport auch in den folgenden Monaten die Werte in den Sedimentfallen noch über dem Jahresmittel liegen. Bis auf ^{137}Cs, das auch aus der Umgebung stammt, zeigen die Messungen den aufgrund der Abgaben erwarteten Verlauf.

Nach dem Durchfliessen des Bielersees und des Klingnauer Staubeckens konnten nur noch relativ geringe spezifische Aktivitäten von ^{60}Co und keine von ^{65}Zn gemessen werden (Fig. 5). ^{58}Co und ^{54}Mn, zeigen generell eine gute Übereinstimmung, wobei bei ^{54}Mn die Messwerte relativ nahe an der Nachweisgrenze liegen und damit die Messunsicherheit entsprechend gross sind (ca. 50%). Keine Übereinstimmung zwischen Messungen und Abgaben findet man bei ^{137}Cs, das wie bereits erwähnt auf die Erosion von Böden zurückzuführen ist, die mit dem Tschernobyl-Ausfall kontaminiert worden waren.

Auch in Pratteln war ^{137}Cs immer gut messbar. Das während der Revisionen der zwei Reaktorblöcke in Beznau abgegebene ^{58}Co (Juni bis August) war ebenfalls gut nachweisbar, während die ^{54}Mn-Werte wieder nur wenig über der Nachweisgrenze lagen. ^{65}Zn konnte in keiner der Sedimentproben gefunden werden ($\leq$ 0.2 – 1.8 Bq/kg).

Fische und Wasserpflanzen

Im Jahr 2003 wurden 3 Fische aus der Aare untersucht, ein Barsch aus dem Bereich unterhalb des Kernkraftwerks Mühleberg und je ein Alet aus der Gegend unterhalb von Gösgen und Beznau. Alle Fische wurden zuerst filetiert und gefriergetrocknet. Bei allen wurde natürliches ^{40}K (480-750 Bq/kg), gefunden, aber ausser Spuren von ^{137}Cs (0.4 Bq/kg bei Mühleberg) keine künstlichen Radionuklide nachgewiesen.

In Algen von Hagneck wurden Spuren von ^{60}Co und ^{137}Cs gefunden, im Schilf und Wurzeln aus dem Klingnauer Stausee und in Moos unterhalb von Leibstadt etwas ^{137}Cs (0,02 ± 0,01 Bq/g).

Grundwasser

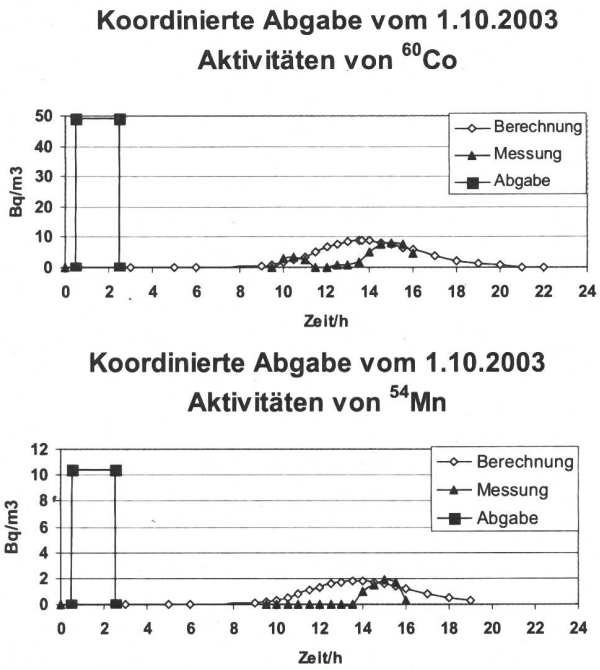
Zur Untersuchung des Grundwassers wurden in Pratteln (22.10.03), Aarberg (21.5.03) und Döttingen (5.5.03) Proben von je 100 L genommen. Ausser in Aarberg, wo eine geringe Menge des

natürlichen Radionuklids ^{40}K gefunden wurde, konnten keine weiteren der sonst untersuchten Radionuklide nachgewiesen werden.

Koordinierte Abgabe

Wie in den Vorjahren wurde auch in diesem Jahr wieder eine koordinierte Abgabe durchgeführt. Sie fand gemeinsam mit dem Kernkraftwerk Mühleberg am 1. Oktober statt. Innerhalb von 2 Std. wurden total 2.2 MBq ^{58}Co, 22.3 MBq ^{60}Co und 4.7 MBq ^{54}Mn in 20 m^3 Abwasser in die Aare eingeleitet, die zu dieser Zeit mit 63 m^3/s relativ wenig Wasser geführt hat (Fig. 9).

Mit Hilfe des Simulationsprogramms AQUASIM der EAWAG wurden der Transport und die Dispersion für die Flussstrecke bis zur Probenahmestelle berechnet. Ab dem Zeitpunkt des erwarteten Durchgangs des Abwassers wurde alle 30 Min. eine Probe von ca. 50 L genommen.

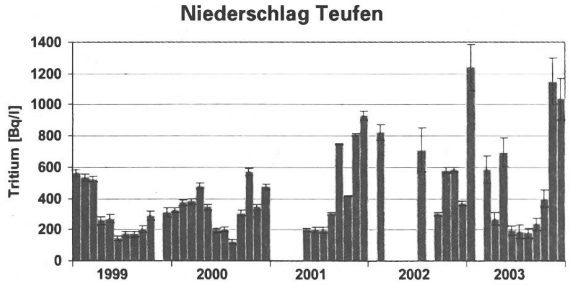


Figur 7
Resultate der koordinierten Abgabe vom 1.10.2003, die gemeinsam mit dem Kernkraftwerk Mühleberg durchgeführt wurde. Innerhalb von 2 Stunden wurden total 2.2 MBq ^{58}Co, 22.3 MBq ^{60}Co und 4.7 MBq ^{54}Mn in 20 m^3 Wasser an die Aare abgegeben (Rechtecke).

Fig. 7 zeigt den Vergleich zwischen den gemessenen und den berechneten spezifischen Aktivitäten von ^{60}Co und ^{54}Mn. Messungen und Modellrechnungen stimmen recht gut überein, wenn man berücksichtigt, dass noch ein Teil von ^{60}Co und ^{54}Mn sedimentiert. Der Doppelpeak ist vermutlich darauf zurück zu führen, dass eine variable Menge Wasser durch den Kallnachkanal geflossen, und früher in Hagneck eingetroffen ist. Dies wurde im Modell nicht berücksichtigt.

Andere Betriebe

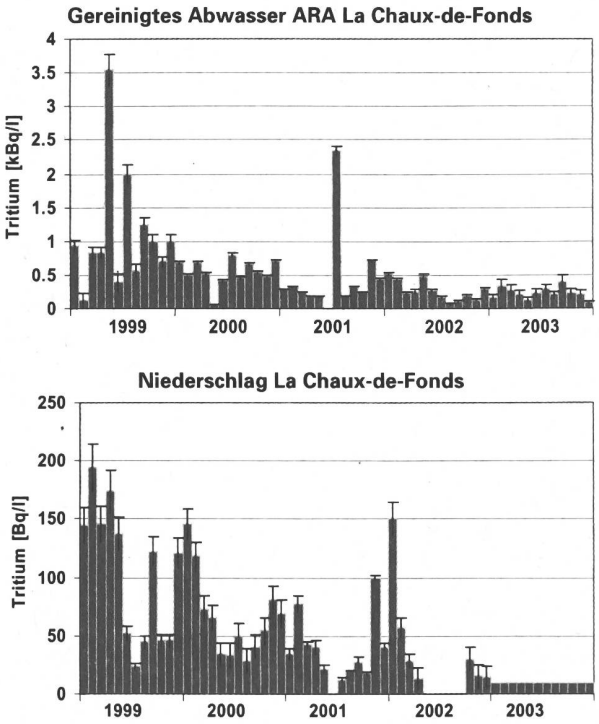
RC Tritec AG / Teufen



Figur 8
Tritiumkonzentrationen im Niederschlag auf dem Gelände der Firma Tritec in Teufen. Die meisten Werte liegen etwas höher als der langjährige Mittelwert und die Schwankungen sind vergleichsweise gross.

Fig. 8 zeigt die Resultate der Tritium Analysen vom Niederschlag, der im Regensammler 65m östlich des Kamins der Firma Tritec gesammelt und durch die SUeR gemessen wurde. Der Mittelwert ist vergleichbar mit dem Vorjahr, allerdings sind die Schwankungen relativ gross. Die Probe für den Monat Februar fehlt.

Messungen in der Umgebung von La Chaux de Fonds



Figur 9
Tritiumaktivität im gereinigten Abwasser der ARA und im Niederschlag von La Chaux-de-Fonds. Die Werte im Abwasser stabilisieren sich auf einem sehr tiefen Niveau. Im Niederschlag liegen sie unter der Nachweisgrenze von 10 Bq/L. Die Messungen erfolgen seit 2001 durch die SUeR und ab 2003 durch das Labor Liebefeld.

In Fig. 9 sind die Tritium Konzentrationen im gereinigten Abwasser der ARA La Chaux-de-Fonds sowie im Niederschlag dargestellt. Der seit längerer Zeit beobachtete Trend zu niedrigeren Werten hat sich auf tiefem Niveau stabilisiert. Im Niederschlag liegen die Tritiumwerte durchwegs unterhalb der Nachweisgrenze von 10 Bq/L.

Insgesamt wurden durch den Regen 2003 <10 kBq Tritium pro m^2 deponiert. Über das Abwasser wurde im Berichtsjahr etwa 1.2 TBq Tritium abgegeben. Nach Angaben der SUVA wurden in im einzigen Setzatelier von La Chaux-de-Fonds 3.3 TBq Tritium verarbeitet.

Kläranlage Zürich

Kläranlagen eignen sich besonders, um radioaktive Abgaben von Industriebetrieben und Spitälern festzustellen. Die ARA Werdhölzli in Zürich wird deshalb mit wöchentlichen Proben überwacht. Ausser geringen Mengen von ^{40}K konnten keine Radionuklide, insbesondere auch kein ^{131}I, festgestellt werden.

Kehrichtverbrennung

Eine weitere potentielle Quelle von Radionukliden stellen Kehrichtverbrennungsanlagen dar. Monatliche Probenahmen aus der Rauchwasserwaschanlage der Kehrichtverbrennungsanlage Hagenholz in Zürich haben 3 positive Resultate bezüglich künstlicher Radionuklide ergeben. In zwei Fällen wurden Spuren von ^{137}Cs in der Grösse der Nachweisgrenze und im dritten Fall von ^{131}I (25.9.03: 7 ± 1 Bq/L) gefunden.

Oberflächengewässer

Von den zwei Probenahmestationen Diepoldsau und Reckingen am Rhein wurden wöchentliche Wasserproben untersucht. Ausser vereinzelten ^{40}K Aktivitäten konnten keine gammaaktiven Radionuklide nachgewiesen werden. Bei den Proben von Diepoldsau werden die Aktivitäten von Tritium in 4-wöchigen Mischproben gemessen. Der Mittelwert für das Jahr 2002 lag bei 1.19 ± 0.16 Bq/L. Der Wert für das Jahr 2003 war mit 1.22 ± 0.20 Bq/L etwas höher. Die Messungen werden durch die Bundesanstalt für Gewässerkunde in Koblenz durchgeführt.

4.3. Radioactivité du sol et de l'herbe

P. Froidevaux, K. Friedrich-Bénet, T. Schmittler, F.Barraud, J.-F. Valley
Institut de radiophysique appliquée, Grand Pré 1, 1007 LAUSANNE

H. Völkle, M. Jungck
Section de surveillance de la radioactivité (SUER), Office fédéral de la santé publique
Ch. du Musée 3, 1700 FRIBOURG

M. Burger, E. Schmidt, F. Byrde, A. Jakob, M. Astner
Laboratorium Spiez, Budesamt für Bevölkerungsschutz des VBS, 3700 SPIEZ

Résumé

Des échantillons de sol et d'herbe ont été prélevés sur l'ensemble du territoire suisse afin d'en déterminer l'activité en ^{137}Cs et en ^{90}Sr. Deux profils de sol ont également été prélevés dans le Jura vaudois. Les résultats montrent que l'activité en ^{137}Cs et en ^{90}Sr provient des retombées des essais d'armes atomiques réalisés dans l'atmosphère durant les années 1950-1965 et de l'accident de la centrale nucléaire de Chernobyl en 1986. En Suisse, l'activité des sols et de l'herbe est fortement dépendante de l'altitude : le plateau suisse présente les activités les plus faibles, suivi du Jura et enfin des Alpes. L'activité en ^{90}Sr de l'herbe du Tessin est la plus élevée (8-50 Bq/kg) car cette région a été particulièrement touchée par les retombées globales de tirs nucléaires et par l'accident de Chernobyl. La géomorphologie du Tessin faite de montagnes, de forte déclivité et de précipitations abondantes, notamment lors de l'accident de la centrale de Chernobyl, est responsable de la contamination plus importante du Tessin par rapport à d'autres sites en Suisse. Deux profils de sol du Jura vaudois ont présenté des situations différentes dans les mécanismes de migration des différents radioéléments.

4.3.1 Introduction

La migration de radioéléments et leur transfert du sol aux plantes sont généralement estimés à partir de l'activité contenue dans le sol [1]. Les modèles de transfert utilisent les activités massiques ou surfaciques du sol pour prédire l'activité résultante dans les plantes puis éventuellement dans la chaîne alimentaire, notamment dans le lait. Des études récentes ont montré toutefois que, sur une surface de dimension restreinte, les activités pouvaient varier très fortement à l'intérieur d'une même région [2, 3]. Dans les sols de montagne, la déposition du ^{137}Cs de l'accident de Chernobyl est très hétérogène. Cette hétérogénéité est principalement le fait de l'accumulation de neige lors du passage du nuage de Chernobyl [2]. Dans les sols mêmes, la déposition peut également se répartir de manière inhomogène. La présence de flux préférentiels est cette fois-ci directement mise en cause [4]. De plus, certains radioéléments tels que le ^{90}Sr, un analogue chimique du calcium, migre dans les plantes et le lait en fonction de la quantité de calcium présent dans l'environnement [3, 5].

La consommation de lait contaminé est généralement la principale contribution à la dose interne due au ^{90}Sr et au ^{137}Cs. L'évaluation de la présence de ces deux radioéléments dans le sol et l'herbe est le préambule à toute étude des mécanismes de transfert vers la chaîne alimentaire. Dans ce travail, divers prélèvements de sol et d'herbe ont été effectués afin d'en déterminer la contamination en divers radioéléments (^{90}Sr, ^{137}Cs, plutonium, américium...). Une étude plus complète de deux profils de sol prélevés dans le Jura vaudois a permis d'évaluer la variabilité des dépositions dans le Jura ainsi que la présence de mécanismes de migration du ^{90}Sr, ^{137}Cs et plutonium dans l'un des deux profils.

4.3.2 Méthode

Herbe et sol :

Le ^{90}Sr est déterminé par la mesure de son produit de filiation, ^{90}Y. Après désorption des cendres de sol et d'herbe par micro-ondes en milieu HNO_3 8 M, le strontium et l'yttrium sont pré-concentrés sur un précipité d'oxalate de calcium. Après destruction de l'oxalate par micro-ondes sous pression en milieu nitrique 65 % et complexation de l'yttrium par l'acide dipicolinique, le complexe anionique $[Y(dipic)_3]^{3-}$ est retenu sur une colonne anionique (AG 1x4). Après lavage de la colonne, l'yttrium est élué par NaCl 1M. La source d'yttrium est obtenue par précipitation de l'oxalate et comptée dans un compteur proportionnel à flux de gaz. Le contenu en calcium des cendres et le rendement en yttrium du processus de séparation chimique sont déterminés par absorption atomique. La limite de détection pour le sol est de 0.3 Bq/ kg de masse sèche. Elle est de 0.1 Bq/ kg de masse sèche pour l'herbe.

4.3.3 Résultats de la surveillance

Les mesures sont effectuées sur un prélèvement de sol entre 0-5 cm, séché à l'étuve et tamisé à 2 mm. Pour la mesure du ^{90}Sr, environ 15 g de sol sont nécessaire (30 g pour la mesure du plutonium et de l'américium).

Tableau 1
Radioactivité du sol (0-5 cm) en 2003, en Bq/ kg de matière sèche (et Bq/ g Ca pour le ^{90}Sr), rapportée à la date du prélèvement. Les intervalles de valeurs indiquent plusieurs prélèvements pour un site.

Canton/Lieu	n	^{40}K	^{134}Cs	^{137}Cs	^{90}Sr	$^{239+240}Pu$	^{241}Am
AG (Voisinage KKB)	2	440 - 470	—	33 - 40	3.0 ± 0.3	0.23 ± 0.02	0.082±0.008
AG (KKB in-situ)	2	319 - 396	—	19 -19.5	—	—	—
AG (PSI-Oase/Radair)	1	430 ± 70	—	43 ± 6	—	—	—
AG (PSI in-situ)	1	301	—	17.9	—	—	—
AG (ZWILAG)		450 ± 60	—	22 ± 3	2.7 ± 0.5	—	—
AG (ZWILAG in-situ)	1	317	—	12.9	—	—	—
AG (Voisinage KKL)	4	400 - 420	—	15 - 22	2.8 ± 0.3	0.21 ± 0.02	0.065±0.008
AG (KKL in-situ)	4	309 - 347	—	15 - 16	—	—	—
AG/SO (VoisinageKKG)	4	410 - 480	—	15 - 23	2.7 ± 0.4	0.37 ± 0.03	0.116±0.009
AG/SO KKG in-situ)	4	283 - 336	—	10 - 15	—	—	—
BE (Voisinage KKM)	4	400 - 730	—	13 - 25	2.9 ± 0.3	0.25 ± 0.02	0.090±0.008
BE (KKM in-situ)	3	328 - 623	—	8.6 - 13.5	—	—	—
BE (Allmendhubel) [1]	1	532 ± 26	< 0.26	68 ± 3	17.3 ± 0.6	1.65 ± 0.06	0.66 ± 0.03
BE (Gimmelwald) [2]	1	339 ± 16	< 0.16	25 ± 1	9.6 ± 0.4	0.68 ± 0.04	0.25 ± 0.02
BE (Fahrni) [3]	1	482 ± 25	< 0.16	21 ± 1	8.5 ± 0.6	0.51 ± 0.02	0.16 ± 0.02
BE (Diesse/Jura)	1	421 ± 20	< 0.21	24 ±1	17.1 ± 0.8	0.84 ± 0.07	0.17 ± 0.02
BL (Sissach)	1	557 ± 24	< 0.2	8.5 ± 0.8	—	—	—
FR (Grangeneuve)	1	550 ± 17	< 0.9	20.4 ± 0.8	5.2 ± 0.3	0.43 ± 0.03	0.15 ± 0.02
FR (Fribourg, in-situ)	1	405	—	11.5	—	—	—
GE (Vois. CERN)	4	420 - 482	—	6 - 21	—	—	—
GE (CERN in-situ)	4	360 - 377	—	5 - 10	—	—	—
GR (Chur)	1	519 ± 17	< 1	25 ± 1	15.3 ± 0.9	0.50 ± 0.03	0.093±0.012
GR (Davos)	1	262 ± 23	< 3	191 ± 4	36.7 ± 0.5	n.m.	1.30 ± 0.07
GR (Hinterrhein)	1	600 ± 90	< 0.8	120 ± 16	—	—	—
GR (Hinterrhein) [5]	1	552	—	173	—	—	—
SZ (Ochsenboden)[4]	4	220 - 290	—	73 - 165	6.7 – 13.4	0.93 – 2.07	0.34 - 0.48
TG (Arenenberg)	1	364 ± 9	< 0.2	73 ± 8	4.0 ± 0.2	0.15 ± 0.02	0.06 ± 0.02
TI (Ambri)	1	450 ± 70	< 1.5	210 ± 210	—	—	—
Ti (Ambri-Ritom) [5]	1	502	—	90.3	—	—	—
TI (Caslano)	1	660 ± 100	0.6 ± 0.4	260 ± 33	—	—	—
TI (Caslano) [5]	1	506	0.6	137.2	—	—	—
TI (Coglio)	7	320 - 570	0.8 - 1.5	280 - 810	—	—	—
TI (Coglio-V. Maggia) [5]	1	541	0.9	340	—	—	—
TI (Magadino)	1	920 ± 140	< 2	180 ± 22	—	—	—
TI (Magadino) [5]	1	679	—	103	—	—	—
TI (Novaggio (≈ Sessa)	1	680 ± 30	< 0.2	61 ± 3	—	—	—
TI (Rasa)	1	775 ± 30	0.9 ± 0.4	461 ± 20	—	—	—
TI (Rodi-Fiesso)	1	617 ± 33	0.6 ± 0.4	46 ± 3	—	—	—
TI (Stabio)	1	630 ± 88	< 1.5	380 ± 50	—	—	—
TI (Stabio) [5]	1	471	0.8	224	—	—	—
VD (Marchairuz)	1	223 ± 9	0.45 ± 0.15	258 ± 3	12.8 ± 0.3	4.0 ± 0.2	1.44 ± 0.06
VD (Mollendruz)	1	275 ± 12	< 0.9	59 ± 2	6.7 ± 0.3	0.91 ± 0.04	—
VS (Ulrichen)	1	530 ± 80	1.5	26 ± 4	—	—	—
VS (Ulrichen) [5]	1	372	—	15	—	—	—
ZH Lindau	1	344 ± 10	< 0.5	18.7 ± 0.4	2.2 ± 0.4	0.17 ± 0.01	0.066±0.008

n = nombre d'échantillons
1) Alpage
2) Vallée
3) Plaine
4) Echantillons prélevés en 2002: Ochsenboden/SZ: 707.700/213.250; Chalchboden: 707.485/213.850; Schwyzerblätz: 707.845/212.215; Studen-Ort: 706.970/213.940 (voir rap. annuel 2002, chap. B.4.3)
5) Mesures in-situ

Tableau 2
Radioactivité de l'herbe en 2003, en Bq/ kg de matière sèche, rapportée à la date de prélèvement. Les intervalles de valeurs indiquent plusieurs prélèvements pour un site.

Canton/Lieu	n=	^{40}K	^{134}Cs	^{137}Cs	^{90}Sr
AG (Voisinage KKB)	5	570 - 1200	< 3	< 4	4.8 ± 0.9
AG (PSI-Oase)	1	580 ±70	< 1	4.5 ± 1	—
AG (ZWILAG)	2	620 - 660	< 1.5	1.6 - 1.9	—
AG (Voisinage KKL)	8	500 - 950	< 3	< 2 - 5	—
AG/SO (Voisinage KKG)	8	430 - 970	< 3	2.0 - 6.2	4.3 ± 1.0
BE (Voisinage KKM)	8	330 - 1200	< 3	2 - 3	2.4-4.5
BE (Almendhubel) 1)	1	568 ± 60	< 0.33	4.13 ± 0.3	41± 4
BE (Gimmelwald) 2)	1	1090 ± 50	< 0.28	0.99 ± 0.13	4.7 ± 0.4
BE (Fahrni) 3)	2	969 - 1079	< 0.47	< 0.58	3.8 - 6.3
BE (Diesse/Jura)	2	550 - 1194	< 047	0.63 - 0.99	1.1 - 3.7
BL (Sissach)	1	512 ± 90	< 0.2	< 0.3	—
FR (Grangeneuve)	1	944 ± 26	< 0.7	0.9 ± 0.8	4.1 ± 0.9
GE (CERN)	1	600 ± 20	< 2	< 2	13.8 ± 0.3
GR (Chur)	1	717 ± 22	< 0.7	1.0 ± 0.4	6.5 ± 0.7
GR (Davos)	2	1110 - 1488	< 1	0.5 - 1.0	9.0 ± 0.6
TG (Arenenberg)	1	821 ± 23	< 0.6	1.2 ± 0.3	3.6 ± 0.2
TI (Caslano)	1	770 ± 120	< 3	8 ± 3	—
TI (Magadino)	1	810 ± 140	< 3	17 ± 4	—
TI (Stabio)	1	500 ± 100	< 3	6 ± 3	—
TI (Rasa-Intragna)	1	757 ± 27	< 1	20 ± 1	50.2 ± 0.6
TI (Rodi-Fiesso)	1	823 ± 20	< 0.5	19.0 ± 0.6	8.0 ± 0.2
TI (Novaggio)	1	813 ± 31	< 1	2.3 ± 0.8	11.7 ± 0.4
ZH (Lindau)	1	1385 ± 46	< 2	< 2	5.3 ± 1.0

1) Alpage 2) Vallée 3) en plaine

4.3.4 Discussion

Les mesures effectuées en 2003 montrent que la contamination du sol et de l'herbe varie en fonction de l'altitude du prélèvement. En Suisse, la géomorphologie compliquée du pays se traduit par des dépositions atmosphériques de ^{137}Cs et ^{90}Sr très variables. Par exemple le plateau suisse est relativement peu touché par les retombées. Dans le sol, l'activité en ^{137}Cs ne dépasse pas 20 Bq/kg, à l'exception du site d'Arenenberg, particulièrement touché par les retombées de l'accident de Chernobyl (73 Bq/kg). L'activité en ^{90}Sr ne dépasse pas 5 Bq/kg. Dans le Jura, site d'altitude intermédiaire entre le plateau suisse et les régions alpines, l'activité en ^{137}Cs peut atteindre en certaines occasions 250 Bq/kg et celle en ^{90}Sr 13 Bq/kg. Dans les régions alpines, des activités en ^{137}Cs entre 50 et 200 Bq/kg sont mesurées régulièrement alors que certaines valeurs du Tessin dépassent parfois les 300 Bq/kg (Max. 810). L'intervalle d'activité en ^{90}Sr dans les régions alpines se situe en 2003 entre 8 et 37 Bq/kg.

Ces mesures indiquent des contaminations très variables malgré les dimensions réduites du pays, notamment en ^{137}Cs. Certains sites contiennent une proportion de ^{137}Cs de l'accident de Chernobyl inférieure à 50% (Jura, Alpes), alors que d'autres (Arenenberg, Tessin) contiennent jusqu'à 80% de ^{137}Cs dont l'origine est l'accident de Chernobyl.

La méthodologie de la surveillance de l'environnement consiste souvent à prélever les premiers 5 cm du sol. Elle a le mérite d'être simple et de limiter le nombre d'échantillons à analyser. La couche supérieure du sol est en effet le premier lieu de stockage de radioéléments provenant d'une déposition atmosphérique. Toutefois elle ne renseigne que qualitativement sur la contamination effective du site échantillonné. En effet, les radioéléments, bien que fortement adsorbés sur les particules de sol, peuvent migrer en profondeur ou alors être recyclés en surface s'ils sont transférés aux plantes. Le seul moyen d'avoir une

idée précise de ces mécanismes est de procéder à l'extraction d'une « carotte » de sol qui est sectionnée en couches dans lesquelles l'activité est déterminée. Deux profils de sol du Jura ont été analysés de cette manière et les résultats sont présentés dans les Figures 1 et 2. Le premier est issu d'un sol du col du Marchairuz. Le socle rocheux a été atteint à 40 cm, ce qui relativement profond pour un sol du Jura, où le socle est souvent atteint vers 10-15 cm. Le deuxième profil est issu d'un sol saturé (col du Mollendruz), dans une légère dépression. Des plantes typiques de tourbières se trouvaient sur ce site. Après 30 cm, le sol contenait une forte proportion d'argile et de petites pierres. Les résultats des analyses de ^{90}Sr, ^{137}Cs et de plutonium montrent une situation assez classique pour le sol du Marchairuz, avec une décroissance exponentielle de l'activité en ^{137}Cs et en plutonium, selon un modèle de diffusion dans le sol. Le ^{90}Sr, beaucoup plus mobile, est pratiquement homogène sur tout le profil. La contribution de Chernobyl à l'activité en ^{137}Cs est de 34%.

La situation est très différente sur le site saturé du col du Mollendruz, où les activités de tous les radioéléments déterminés sont presque homogènes sur l'ensemble du profil. La présence d'argile à partir de 30 cm empêche un écoulement des eaux dans l'aquifère et sature le profil en eau pendant de longues périodes. Un recyclage des radioéléments dans le sol entre la surface et les premiers 30 cm est ainsi possible dû à la présence du vecteur « eau ». Le sol étant également fortement organique (type tourbière) des acides humiques présents dans la fraction liquide du sol peuvent également participer à la mobilisation des radioéléments, en particulier le plutonium. Celui-ci est totalement homogène sur l'ensemble du profil (Figure 2). La contribution de Chernobyl à l'activité en ^{137}Cs est de 30% sur ce site, distant d'environ 20 km à vol d'oiseau du précédent.

Lors d'une étude du devenir à long terme des radioéléments déposés dans le sol, on constate qu'il est indispensable de prélever la totalité du profil. Dans bien des cas, la couche de 5 cm ne contient plus qu'une fraction de la déposition totale. Certains sols, comme les sols alpins par exemple, ont au contraire la faculté de retenir les radioéléments dans les premiers centimètres du sol, ce qui se traduit par une activité en ^{90}Sr dans les plantes plus élevée [5]. Un exemple typique est le site de Davos, où l'activité du sol, de l'herbe et du lait en ^{90}Sr est supérieure à la moyenne nationale.

Le Tableau 3 présente les résultats obtenus ces dernières années sur des profils de sol du Jura. Souvent la couche de sol ne dépasse pas 10 cm. Dans ces cas, il est possible qu'une partie de la déposition ait déjà atteint l'aquifère. En calculant la fraction de ^{137}Cs provenant de Chernobyl (voir annexe I), on constate que les sites où il est possible de prélever du sol jusqu'à 40 cm présente une contribution de Chernobyl inférieure ou proche de 40 %. Pour les sites où l'épaisseur de sol ne dépasse pas 10 cm, cette proportion grimpe jusqu'à 60%, indiquant probablement qu'une partie de la déposition plus ancienne (retombées globales des années soixante) se trouve déjà dans l'aquifère.

Tableau 3
Dépositions surfaciques (Bq/m^2) de ^{90}Sr, ^{137}Cs et plutonium de certains sites du Jura vaudois, échantillonnés et mesurés entre 1999 et 2003.

Site	Altitude (m)	^{137}Cs	% Chernobyl	^{90}Sr	$^{239/240}Pu$
Marchairuz (0-40 cm)	1385	18330±400	35	2700±170	400±22
Mollendruz (0-30 cm)	1200	10320±280	30	1300±80	250±11
St-Cergue (0-40 cm)	1041	11400±350	41	1480±180	225±10
Chasseron (0-40 cm)	1520	11850±330	45	2530±200	220±10
Nouvelle Censière (0-10 cm)	1152	6880±70	61		90±4
Givrine (0-20 cm)	1228	8620±400	55	1380±100	130±6
Châtel -Mollendruz (0-10 cm)	1200	12900±700			
Châtel-Mollendruz (croix) (0-10 cm)	1432	9260±500			
Mont-Tendre (chalet) (0-10 cm)	1615	7830±380	63		95±3
Dôle(0-10 cm)	1440	8200±400	56		120±7

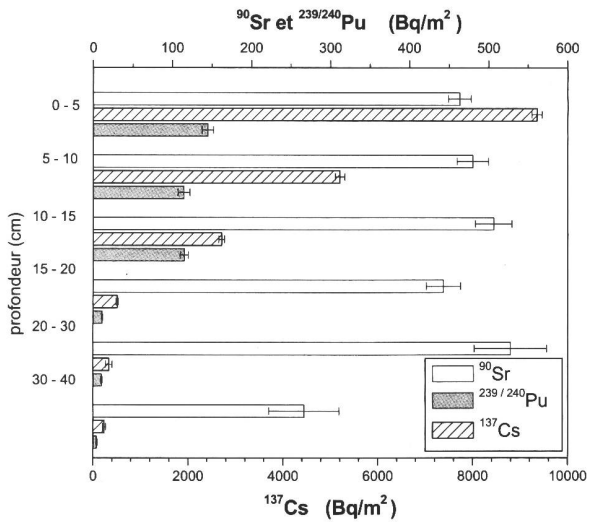


Figure 1
Profil de sol du col du Marchairuz (VD), en activité surfacique (Bq/ m^2) pour ^{90}Sr, ^{137}Cs et $^{239/240}Pu$.

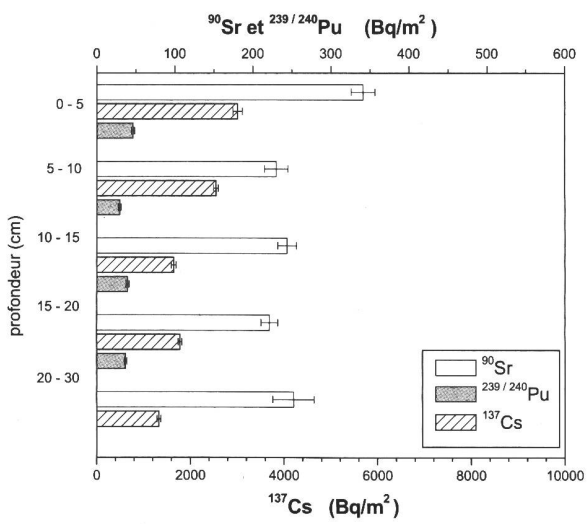


Figure 2
Profil de sol du col du Mollendruz (VD), en activité surfacique (Bq/ m^2) pour ^{90}Sr, ^{137}Cs et $^{239/240}Pu$.

4.3.5 Conclusions

Les mesures de radioactivité du sol indiquent trois catégories de sites : le plateau suisse avec une faible contamination en ^{137}Cs et en ^{90}Sr, le Jura avec une situation intermédiaire et les Alpes et le Tessin, régions pour lesquelles les activités les plus élevées sont observées en Suisse. Seuls le ^{90}Sr et, dans une moindre mesure, le ^{137}Cs sont transférés du sol vers les plantes. Les activités les plus élevées en ^{137}Cs dans l'herbe sont mesurées au Tessin (20 Bq/kg). L'activité maximale de l'herbe en ^{90}Sr a été mesurée dans le Jura vaudois (col du Marchairuz, 13 Bq/kg). Un profil de sol du Jura a montré que dans un sol fortement organique et saturé (de type tourbière), les radioéléments sont totalement homogénéisés sur tout le profil. Les résultats des études réalisées dans le Jura ces dernières années montrent qu'il est nécessaire de prélever l'ensemble du profil si l'on veut avoir une idée très précise de la contamination de surface et des mécanismes de migration des radioéléments. Sur des sites où la couche de sol ne dépasse pas 10 cm, une partie de la déposition peut déjà avoir atteint l'aquifère.

Remerciements

Que toutes les personnes qui ont contribué à ce travail en fournissant les échantillons trouvent ici l'expression de notre reconnaissance.

Bibliographie

[1] Ehlken, S., Kirchner, G., *J. Environ. Radioact.* **2002**, 58, 97.

[2] Pourcelot, L., Louvat, D., Gauthier-Lafaye, F., Stille, P. Formation of radioactivity enriched soils in mountain areas. *J.Environ. Radioact.* **2003**, 68, 215-233.

[3] Poucelot, L., Froidevaux, P. Impact of the variability of uplands soil radioactive contamination on dairy products: implication for environmental survey and fraud detection. *Environ.Sci.Technol.*, soumis.

[4] Bundt, M., Albrecht, A., Froidevaux, P., Blaser, P., Flühler, H. Impact of preferential flow on radionuclide distribution in soil. *Environ. Sci.Technol.*, **2000**, 34, 3895-3899.

[5] Gastberger, M., Steinhäsler, F., Gerzabeck, M., Hubmer, A. Fallout strontium and caesium transfer from vegetation to cow milk at two lowland and two Alpine pastures. *J.Environ. Radiact.* **2001**, 54, 267-273.

Annexe I

Calcul de la composante de Chernobyl dans la déposition de ^{137}Cs :

$$A_{Chernobyl} = A_{total} - \left(\frac{A_{Cs-137}}{A_{Pu-239/240}} \right)_{retombéesglobales} A_{Pu-239/240}$$

$$\%_{Chernobyl} = \frac{A_{Chernobyl}}{A_{total}} \bullet 100$$

avec $A_{Chernobyl}$ l'activité en ^{137}Cs due à l'accident de Chernobyl, A_{totale} l'activité en ^{137}Cs mesurée dans l'échantillon.

$$\left(\frac{A_{Cs-137}}{A_{Pu-239/240}} \right)_{retombéesglobales}$$

est le rapport du ^{137}Cs au $^{239/240}Pu$ dû uniquement aux retombées des essais d'armes atomiques et vaut 30 en 2003.

$A_{Pu-239/240}$ est l'activité en plutonium dans l'échantillon.

Cette relation n'est valable que si on admet que la déposition en plutonium due à l'accident de Chernobyl a été négligeable en Suisse, ce qui est le cas.

4.4. Radiocäsium im Lago Maggiore

E. Klemt [1], H. Paliachenka [1], V. Putyrskaya [1], G. Zibold [1], M. Astner [2], St. Röllin [2]

1) Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, University of Applied Sciences, P.O.B. 1261
D-88241 WEINGARTEN
2) Bundesamt für Bevölkerungsschutz, Labor Spiez, CH-3700 SPIEZ

Zusammenfassung

Um die ^{137}Cs Bilanz im Lago Maggiore und insbesondere das Migrationsverhalten von ^{137}Cs in seinen Sedimenten zu untersuchen, wurde im Jahr 2003 begonnen an zwei Positionen im nördlichen Becken mehrere Sedimentkerne zu entnehmen und die Tiefenverteilung von ^{137}Cs sowie die Assoziation des ^{137}Cs an unterschiedliche geochemische Fraktionen zu bestimmen. Zusätzlich wurden die ^{137}Cs-Aktivitätskonzentration sowie weitere relevante Parameter in der Wassersäule des oligotrophen Sees gemessen.

Auf Grund von zahlreichen Turbiditen sind die Tiefenverteilungen im Sediment schwierig zu interpretieren. Das ^{137}Cs ist hier aber deutlich fester als an vergleichbaren Positionen im benachbarten Luganersee gebunden.

4.4.1 Einleitung

Der Lago Maggiore in 194 m Meereshöhe ist mit seiner Oberfläche von 212 km^2 und mit einer maximalen Tiefe von 370 m einer der ganz großen Trinkwasserspeicher am südlichen Alpenrand (Figur 1). Er wird von Nord nach Süd vom Ticino durchflossen, dessen Flusstal in der letzten Eiszeit durch Gletscher neu geformt wurde. Weitere Zuflüsse sind im Norden Versasca und Maggia, im Westen Toce und im Osten Tresa, der Abfluß des Luganersees. Die Zuflüsse haben häufig Hochwasser und tragen allochthones Material in den See ein. Auf Grund der steilen Abhänge kommt es oft zu unterseeischen Sedimentlawinen, den Turbiditen. Der Lago Maggiore, der ursprünglich ein sehr nährstoffarmer See (oligotroph) war, wurde in den 70iger Jahren nährstoffreicher (mesotroph), ist aber mittlerweile wieder oligotroph geworden (Calderoni et. al., 1996).

Nach dem Unfall von Tschernobyl im Jahr 1986 wurden, wie beim benachbarten Luganersee, etwa 20 kBq/m^2 ^{137}Cs über die Seeoberfläche in den See eingetragen. Im Gegensatz zum Luganersee (Klemt et. al, 2001, und Berichte in dieser Reihe in den vorangegangenen Jahren) ist das Schicksal des ^{137}Cs im Lago Maggiore noch praktisch unerforscht. Beim Luganersee zeigte es sich, dass sich unterschiedliche Positionen innerhalb des Sees hinsichtlich der Bindung des ^{137}Cs recht unterschiedlich verhalten (Klemt et. al, 2000). Beim Lago Maggiore erwarten wir weitere deutliche Unterschiede, da der See wesentlich nährstoffärmer ist. Im Gegensatz zum Luganersee herrschen auch im Tiefenwasser oxische Bedingungen, so dass die Konzentration der NH_4^+-Ionen, eines wesentlichen Konkurrenzions des ^{137}Cs für selektive Bindungsplätze, nur sehr gering sein kann. Weiterhin hat der Lago Maggiore mit 6599 km^2 ein deutlich größeres Wasser-Einzugsgebiet aus unterschiedlichen Regionen, was ebenfalls zu Unterschieden in den einzelnen Becken und zu Unterschieden zum Luganersee führen sollte.

Figur 1
Probennahmepositionen im Lago Maggiore im Jahr 2003.

Deswegen haben wir am 12. Mai 2003 mit der Beprobung im nördlichen Teil des Lago Maggiore begonnen. An den Positionen 1 und 2 (s. Figur 1) wurden jeweils mehrere Sedimentkerne entnommen und zur Bearbeitung nach Weingarten gebracht. An der Position 2 wurden am 13. Mai und am 3. November zusätzlich Wasserproben in 30 m Tiefen-Schritten entnommen. Da diese Untersuchungen nur den Zustand im nördlichen Becken

widerspiegeln können, soll die Beprobung im Jahr 2004 in anderen Becken fortgesetzt werden.

4.4.2 Tiefenverteilung von ^{137}Cs und von weiteren Parametern in der Wassersäule

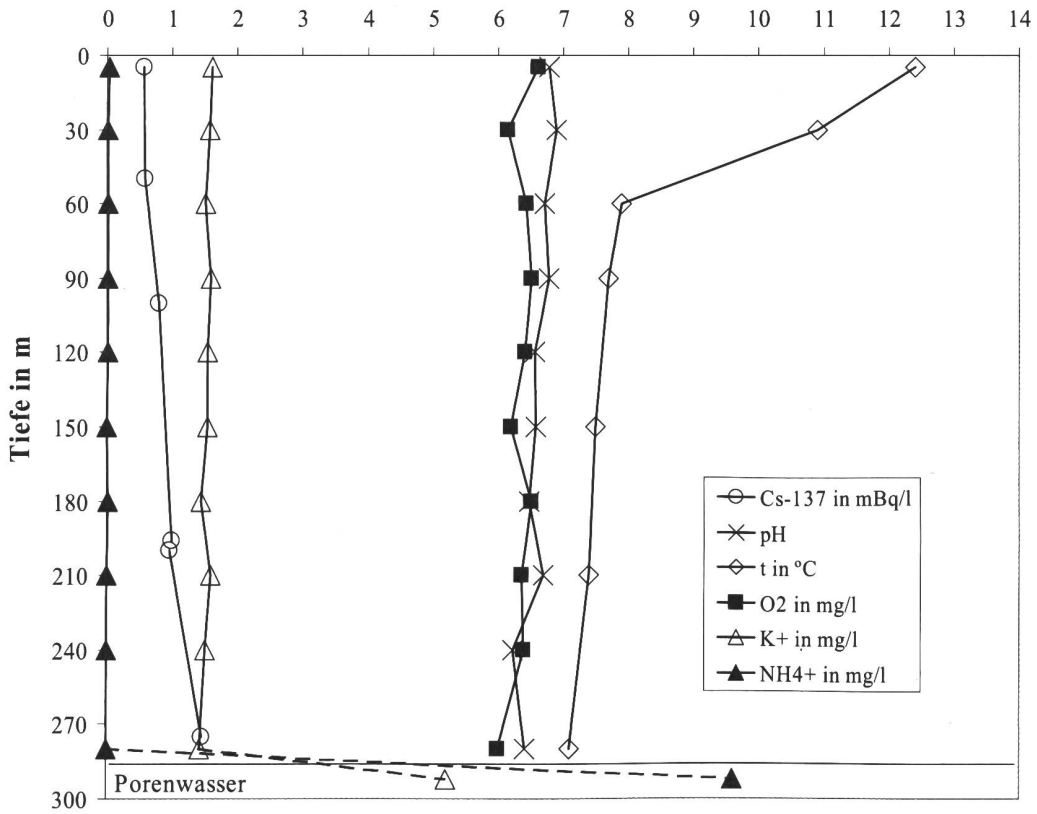
In Figur 2 ist u. a. die Tiefenverteilung des ^{137}Cs in der Wassersäule des Lago Maggiore an der Position 2 dargestellt. Die Aktivitätskonzentration beträgt im Mittel etwa 1 mBq/l und steigt mit zunehmender Tiefe geringfügig an. Um eine derart geringe Aktivitätskonzentration überhaupt messen zu können, wurden pro Tiefenstufe etwa 500 l Wasser hoch gepumpt, gefiltert (Schleicher&Schüll: blue ribbon) und durch einen Cs-Absorber gedrückt, dessen Aktivität dann gemessen wurde.

Im Seewasser ist auch die Summe der Konzentrationen der Konkurrenzionen auf die selektiven Bindungsplätze des ^{137}Cs konstant: Die K^+-Konzentration ist mit knapp 2 mg/l in etwa konstant, die NH_4^+-Konzentration ist vernachlässigbar. Dies ändert sich beim Übergang vom freien Seewasser zum Porenwasser des Sedimentes. Dort betragen die Konzentrationen von K^+ und NH_4^+ 5 mg/l und mehr als 9 mg/l. Beide Konkurrenzionen haben hier Einfluss auf die Migration des ^{137}Cs, indem sie die Diffusion im Sediment erhöhen.

In Figur 2 ist weiterhin zu sehen, dass der pH-Wert mit knapp 7, ebenso wie die Konzentration des gelösten O_2 mit etwa 6,5 mg/l, über die Wassersäule in etwa konstant sind. Es besteht allerdings eine Tendenz, dass der pH-Wert mit der Tiefe geringfügig abnimmt, die H^+-Konzentration also zunimmt. Diese zunehmende H^+-Konzentration könnte u. U. die geringe Zunahme der ^{137}Cs Aktivitätskonzentration mit der Tiefe steuern (z. B. Albrecht, 1998).

In den oberen 30 m (jedenfalls < 60 m) befindet sich eine warme Wasserschicht, das Epilimnion, mit einer Temperatur von 11 bis 12 °C; in der Schicht darunter, dem Hypolimnion, beträgt die Wassertemperatur 8 °C und nimmt mit der Tiefe geringfügig ab.

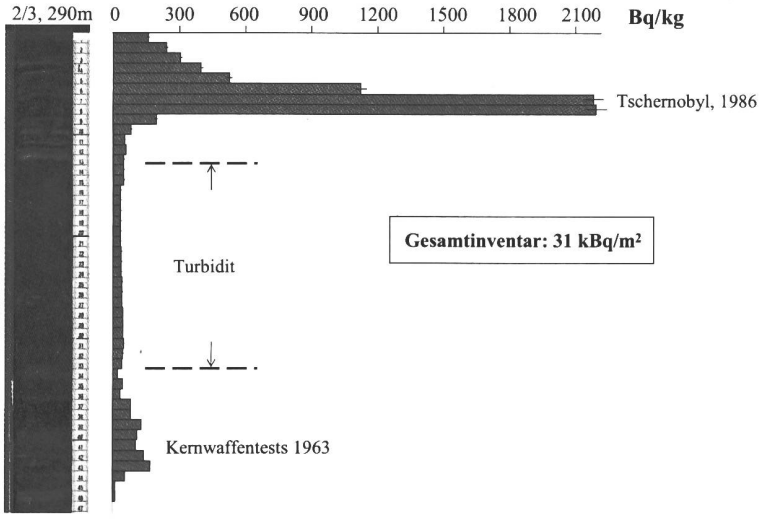
Mit Ausnahme der 4 obersten Messungen der ^{137}Cs Aktivitätskonzentration vom 13. Mai, wurden alle Messungen in Figur 2 am 3. November durchgeführt, was die niedrigen Wassertemperaturen im Epilimnion erklärt.



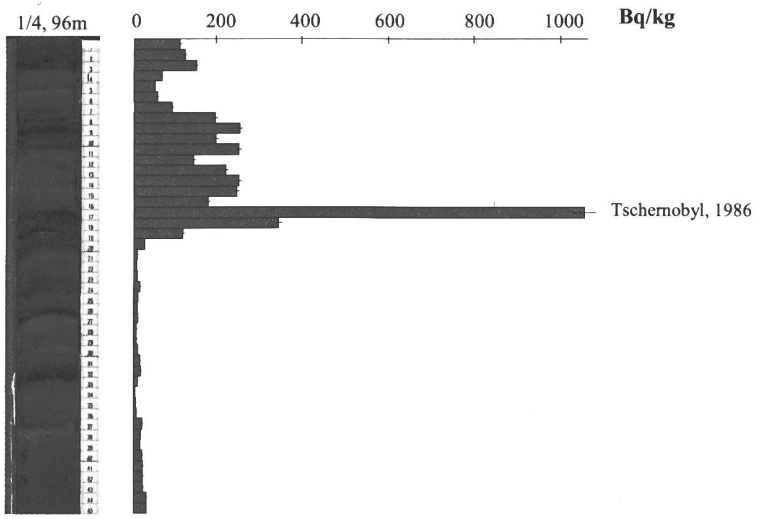
Figur 2
Tiefenverteilung der ^{137}Cs Aktivitätskonzentration, pH, Temperatur, Sauerstoff-, Kalium- und Ammoniumkonzentration in der Wassersäule des Lago Maggiore an der Position 2.

4.4.3 Tiefenverteilung von ^{137}Cs im Sediment

Auf der linken Seite in Figur 3 ist ein Foto eines längs aufgeschnittenen Sedimentkerns der Position 2 zu sehen. Gut erkennbar ist die Lamellierung der jährlich eingetragenen Schichten. Im Bereich zwischen 13 und 33 cm Tiefe fällt ein Bereich mit einheitlicher Färbung auf: Hier sind auch die ^{137}Cs und die ^{210}Pb Aktivitätskonzentrationen sowie die Dichte konstant, woraus wir schließen, dass in dieser Schicht ein einziges Ereignis, ein Turbidit, abgebildet wird. Auf der rechten Seite in Figur 3 ist die Tiefenverteilung der ^{137}Cs Aktivitätskonzentration im Sediment (im selben räumlichen Maßstab wie im Foto) dargestellt. Zu erkennen sind zwei Maxima, die den Fallouts nach dem Unfall von Tschernobyl, bzw. nach den atmosphärischen Kernwaffentests der sechziger Jahre, zuzuordnen sind. Diese Zuordnung erfolgt nicht nur nach der logischen Abfolge des Sedimentaufbaus, sondern geschieht auch durch den Nachweis von ^{134}Cs (aus stabilem ^{133}Cs durch Neutroneneinfang im Reaktor produziert) im oberen Maximum und das um mehr als eine Größenordnung erhöhte $^{241}Am/^{137}Cs$ Verhältnis (Kernwaffenexplosionen) im unteren Maximum. Unterhalb des in Figur 3 dargestellten Bereiches konnte das künstliche Radionuklid ^{137}Cs praktisch nicht mehr nachgewiesen werden. Das ^{137}Cs Tschernobyl-Inventar, das in diesem Sedimentkern gefunden wurde, beträgt 20 kBq/m^2 und entspricht damit etwa dem Eintrag über die Wasseroberfläche nach dem Unfall im Jahre 1986.



Figur 3
^{137}Cs Tiefenverteilung im Sediment des Lago Maggiore an der Position 2 (0 cm – 47 cm). Zerfallskorrigiert auf den 1 Mai 1986.



Figur 4
^{137}Cs Tiefenverteilung im Sediment des Lago Maggiore an der Position 1 (0 cm – 45 cm), Gesamtinventar >33 kBq/m^2. Zerfallskorrigiert auf den 1 Mai 1986.

An der Position 1, im Einschwemmungsbereich von Ticino, Versasca und Maggia ist die Sediment-Depositionsrate deutlich höher als an Position 2. Gleichzeitig ist hier die Konsistenz des Sedimentes härter, so dass mit dem verwendeten Sedimentstecher nicht das gesamte ^{137}Cs Inventar erreicht wurde. In Figur 4 ist das Maximum der Aktivitätskonzentration in einer Tiefe von 16 bis 17 cm zu erkennen. In einer Tiefe von 45 cm ist das Maximum des Fallouts von den Kernwaffentests vermutlich noch nicht erreicht, da die Aktivitätskonzentration hier mit der Tiefe weiter ansteigt. Die Tiefenverteilung der ^{137}Cs Aktivitätskonzentration hat an der Position 1 keinen so glatten Verlauf wie an der Position 2. Dies lässt sich so verstehen, dass nach heftigen Regenfällen, die in dieser Region häufig vorkommen, durch die Zuflüsse große Mengen an allochthonem Material in den See eingeschwemmt werden. Es gibt also keine gleichmäßige Sedimentation von autochthonem Material. Solche fast jährlich oder auch mehrfach im Jahr vorkommenden „Mini-Turbidite", wie sie in Figur 4 z. B. bei 2,5 bis 6,5 cm Tiefe (2 aufeinander folgende) oder bei 32,5 bis 36 cm Tiefe zu finden sind, zeichnen sich, im Vergleich zu benachbarten Schichten, nicht nur durch eine unterschiedliche ^{137}Cs Aktivitätskonzentration, sondern auch durch unterschiedliche Dichte und deutlich unterschiedliche ^{210}Pb-Aktivitätskonzentration aus. Eine Sedimenttiefen-Sedimentalters-Relation ist hier mit der Standard-^{210}Pb-Methode gänzlich ausgeschlossen.

4.4.4 Sequentielle Extraktionsexperimente

Um die Assoziation des ^{137}Cs an die wesentlichen Fraktionen des Sedimentes zu untersuchen, wurden mit Sedimentmaterial der Position 1 (aus dem Bereich des Tschernobylmaximums) sequentielle Extraktionsexperimente durchgeführt (gegenüber dem in Klemt, 2000, beschriebenen Extraktionsschema wurden hier die Schritte 3 und 4 vertauscht). Es stellte sich heraus, dass das ^{137}Cs sehr fest an das Sediment gebunden ist. Nur 0,45 % des ^{137}Cs ließ sich gegen NH_4^+-Ionen austauschen, die hinsichtlich der selektiven Bindungsplätze dem Cs fast äquivalent sind. Nur 0,2 % des ^{137}Cs ist mit den Karbonaten assoziiert. Oxide und Hydroxide von Eisen und Mangan, die häufig auf den Oberflächen von Partikeln zu finden sind, beinhalten nur 0,15 % des im Sediment vorkommenden ^{137}Cs. Ein etwas größerer Anteil von 2,2 % ist in der organischen Materie zu finden. Im 5. und letzten Extraktionsschritt wurden die amorphen Silikate zersetzt. Sie sind das Strukturmaterial der in allen Gewässern der Erde vorkommenden Kieselalgen. Dieses Material beinhaltet 5,5 % des ^{137}Cs. Der Rest des Sedimentes besteht im Wesentlichen aus Tonmineralen, Quarz und Feldspäten. Diese Fraktion, insbesondere der Anteil an Tonmineralen, bindet also 91,5 % des ^{137}Cs äußerst fest. Die Gefahr der Diffusion von ^{137}Cs im Sediment und einer Rücklösung aus dem Sediment in das Wasser des Lago Maggiore ist damit verschwindend gering.

4.4.5 Der ^{137}Cs Verteilungskoeffizient K_D

Der Verteilungskoeffizient K_D berechnet sich aus dem Verhältnis des an Feststoffe gebundenen ^{137}Cs in Bq/kg zu dem sich in Lösung befindlichen ^{137}Cs in Bq/l (s. Duursma et al.). Der K_D-Wert, der damit aussagt, welcher Anteil des ^{137}Cs im Gleichgewicht an Feststoffe gebunden ist, ist keine dynamische Größe; aus Ermangelung besser geeigneter Parameter wird er jedoch sehr häufig bei der Modellierung lakustrischer Systeme verwendet. Da die Aktivitätskonzentration an der Position 2 sowohl im Wasser als auch in den Schwebstoffen bestimmt wurde, kann hier der K_D-Wert angegeben werden. An der Wasseroberfläche beträgt er (33 000 ± 5 000) l/kg, darunter beträgt er im gewichteten Mittel (92 000 ± 18 000) l/kg. Berechnet man einen K_D-Wert aus der Aktivitätskonzentration der obersten Sedimentschicht dividiert durch die Aktivitätskonzentration des Tiefenwassers, erhält man (72 000 ± 7 000) l/kg. Diese Zahlen legen nahe, dass die Schwebstoffe aus den unteren Wasserschichten mit ihrer Aktivität in das Sediment eingetragen werden. Innerhalb des Sedimentes erwarten wir kleinere K_D-Werte, da hier die Konzentration der Konkurrenzionen (NH_4^+, K^+) deutlich erhöht ist.

4.4.6 Vergleich mit dem Luganersee und Ausblick

Zunächst muss festgehalten werden, dass ^{137}Cs aus den Tschernobyl- und Kernwaffentest-Fallouts im Lago Maggiore genauso wie im Luganersee zu finden ist. Das Inventar in der Mitte eines Beckens ist in beiden Seen von gleicher Größenordnung und stimmt in etwa mit dem ursprünglichen Eintrag über die Wasseroberfläche überein.

Während im Lago Maggiore die Aktivitätskonzentration im Wasser mit etwa 1 mBq/l über die Tiefe in etwa konstant ist, stieg sie im Luganersee mit der Tiefe von 1 mBq/l auf bis zu 10 mBq/l an. Im Luganersee ist dieser Anstieg offensichtlich NH_4^+-gesteuert, während die NH_4^+-Konzentration im Wasser des Lago Maggiore so gering ist, dass sie praktisch ohne Bedeutung ist.

Gemäß den Ergebnissen der Extraktionsexperimente an der Position 1 im Lago Maggiore ist ^{137}Cs hier um etwa einen Faktor 4 weniger austauschbar, als an vergleichbaren Positionen im Luganersee (vor Cassarate- bzw. Vedeggio-Mündung). Ver-

gleicht man den Prozentsatz des insgesamt extrahierbaren ^{137}Cs an diesen Positionen, so ist er im Lago Maggiore um einen Faktor 2 bis 3 geringer; das ^{137}Cs ist hier also deutlich fester gebunden.

Auf Grund der im Lago Maggiore vorgefundenen Turbidite ist eine Modellierung der Tiefenverteilung des ^{137}Cs im Sediment (s. Klemt, 2001) deutlich schwieriger als beim Luganersee. Trotzdem soll es versucht werden, um z. B. Verteilungskoeffizienten K_D zu bestimmen und zu vergleichen.

Dazu sollen im Jahr 2004 weitere Positionen beprobt werden: Zum einen um Positionen mit ungestörter Sedimentation zu finden, zum anderen um in anderen Becken den Einfluss anderer Zuflüsse untersuchen zu können. Für die Bilanzierung der ^{137}Cs Flüsse soll auch die Aktivitätskonzentration in den Zuflüssen gemessen werden.

Danksagung

Wir danken Dr. Piero Guilizzoni und seinem Kapitän Stefano Vanetti vom „CNR-Instituto per lo Studio degli Ecosystemi" (I.S.E.) in Verbania Pallanza, Italien, die uns die Probennahme mit dem Schiff ihres Institutes ermöglichten und uns dabei tatkräftig unterstützten.

Referenzen

[1] Albrecht, A.: The Behavior of Nuclear Reactor Derived Metallic Radionuclides in the Aquatic System of Switzerland. Schriftenreihe der EAWAG Nr. 13 (1998)

[2] Calderoni, A., Mosello, R.: L´eutrofizzazione del Lago Maggiore e il suo risanamento. Documenta Ist. ital. Idrobiol., **56,** (1996) 5-20.

[3] Duursma, E., Carroll, J.: Environmental Compartments. Springer-Verlag Berlin-Heidelberg 1996

[4] Klemt, E., Kaminski, S., Miller, R., Zibold, G., Astner, M., Burger, M., Schmid, E.: Normierung von Extraktionsexperimenten zur Bestimmung der Bindung von Radiocaesium an Sedimente des Luganersees. In: Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz 1999, Bundesamt für Gesundheit (2000) B.4.4.1-5.

[5] Klemt, E., Zibold, G., Burger, M., Schmid, E., Barbieri, A., Simona, M.: Eintrag von Radiocaesium in Sedimente des Luganersees. In: Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz 2000, Bundesamt für Gesundheit (2001) B.4.4.1-4.

4.5. Natürliche Radionuklide in Grundwässern des Kantons Graubünden

Otmar Deflorin
Kantonales Labor und Lebensmittelkontrolle, Planaterstrasse 11, 7000 CHUR

Heinz Surbeck
Centre d'Hydrogéologie de l'Université de Neuchâtel (CHYN), Rue Emile-Argand 11, 2007 NEUCHATEL

Zusammenfassung

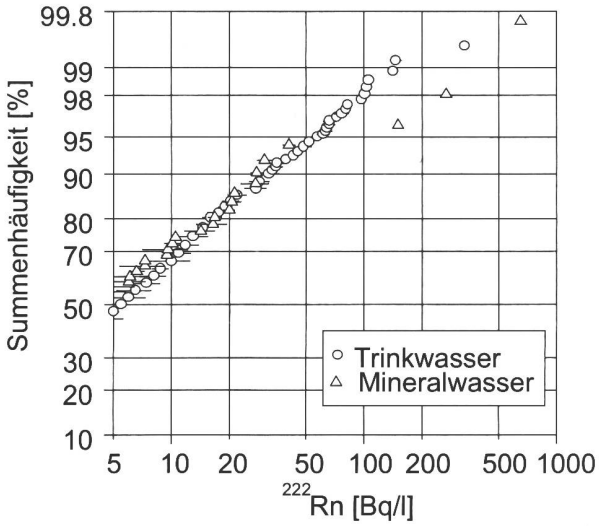
Wie bereits im letztjährigen Bericht "Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz" (Seite B.4.4.7) erwähnt, wurden im Rahmen einer Dissertation an der Uni Neuenburg sämtliche Trinkwasser-Netze des Kantons Graubünden beprobt und die Gehalte an Uran, ^{222}Rn und ^{226}Ra bestimmt [1]. Die Bestimmung des Urans erfolgte mittels ICP-MS am Kantonalen Labor Zürich. ^{222}Rn wurde durch Ausgasen und anschliessende Messung der Radonkonzentration im Luftkreislauf bestimmt (Niton RAD7). ^{226}Ra wurde durch Adsorption des Radiums an einer MnO_2-Schicht und anschliessende Alphaspektrometrie gemessen [2].

Inzwischen wurden auch bei 42 Mineralwasser-Quellen Proben erhoben und analysiert. Ausserdem wurden sämtliche für die ^{226}Ra Bestimmung benützten MnO_2-beschichteten Plättchen noch einmal mittels Alpha-Spektrometrie ausgemessen. Aus der Aktivtät des sich inzwischen aus dem ^{228}Ra aufgebauten ^{228}Th und seinen alphastrahlenden Tochterprodukten lässt sich das ursprünglich vorhandene ^{228}Ra bestimmen [3].

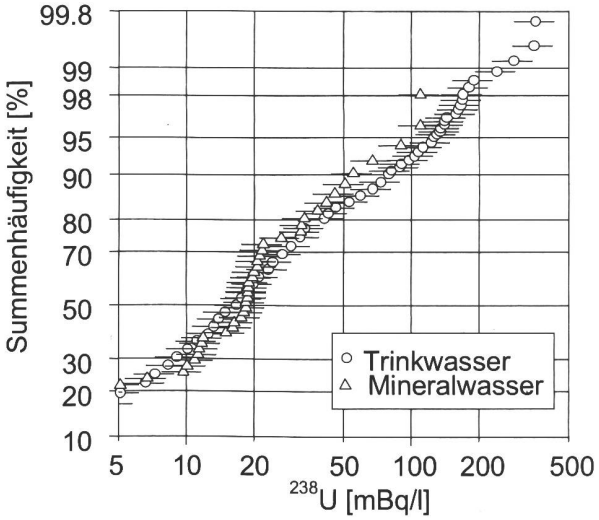
Die umfangreichen Untersuchungen im Kanton Graubünden erlauben nun erstmals einen vollständigen Ueberblick über Häufigkeitsverteilung und räumliche Verteilung der dosisrelevanten natürlichen Radionuklide im Trinkwasser eines Kantons. Mit untersucht wurden auch Mineralwässer, d.h. Wässer mit von Trinkwässern deutlich verschiedener und zeitlich konstanter chemischer Zusammensetzung. Sie sind meist, aber nicht immer stärker mineralisiert als die Trinkwässer. Nur wenige der 42 beprobten Mineralwässer sind als Flaschenwasser im Handel erhältlich. Der grösste Teil wird als Badewasser oder als Kurwasser genutzt.

Häufigkeitsverteilung der Aktivitätskonzentrationen und Vergleich mit den gesetzlichen Limiten

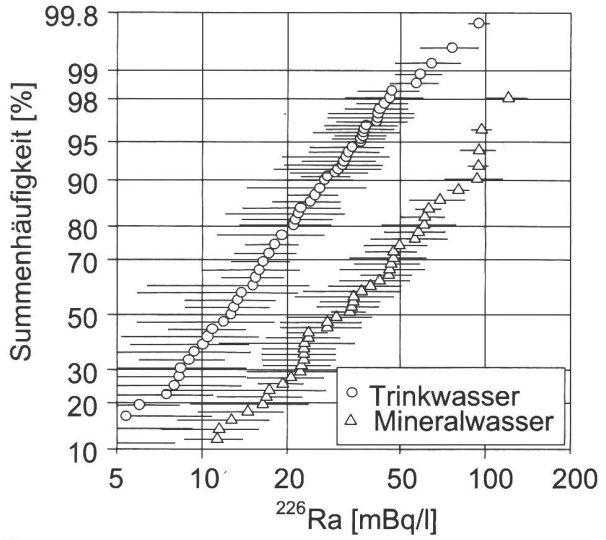
Die Figuren 1 bis 4 zeigen die Häufigkeitsverteilungen für ^{222}Rn, ^{238}U, ^{226}Ra und ^{228}Ra für Trinkwässer (360 Proben) und Mineralwässer (42 Proben). Alle Daten stammen aus der Dissertation von Otmar Deflorin [4]. Für die Darstellung wurden bei tiefen Werten nicht alle Punkte eingezeichnet. Bis zu einer Summenhäufigkeit von 80% ist jeder zehnte Wert dargestellt, von 80% bis 90% jeder fünfte Wert, von 90% bis 95% jeder zweite Wert. Ab einer Summenhäufigkeit von 95% sind alle Werte eingetragen. Die Fehlerbalken entsprechen +/- 1 σ.



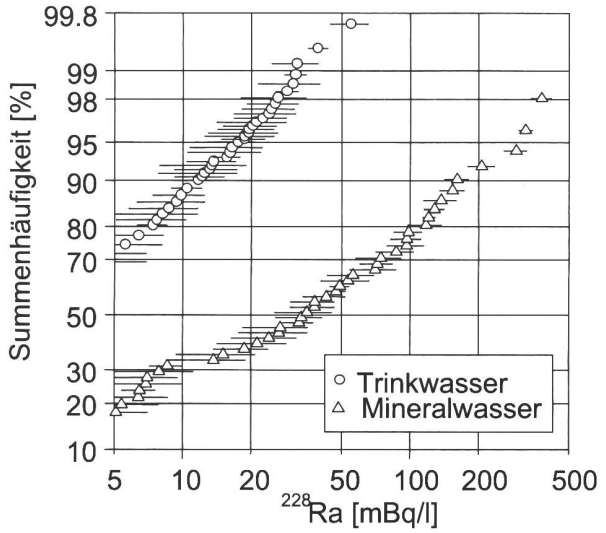
Figur 1
Häufigkeitsverteilung der ^{222}Rn Werte



Figur 2
Häufigkeitsverteilung der ^{238}U Werte. Aus den ICP-MS Messungen umgerechnet mit ^{238}U-Konzentration = 12.4 mBq/l) / ppb U.



Figur 3
Häufigkeitsverteilung der ^{226}Ra Werte.



Figur 4
Häufigkeitsverteilung der ^{228}Ra Werte.

Die Aktivitätskonzentrationen in allen beprobten Wässern, auch in den Mineralwässern sind deutlich unter den in der Fremd- und Inhaltsstoff Verordnung festgelegten Limiten, die bei 1 Bq/l für (^{226}Ra + ^{228}Ra) und bei 10 Bq/l für (^{238}U + ^{234}U) liegen. Das gilt selbst für den Fall eines extrem grossen Ungleichgewichts zwischen ^{238}U und ^{234}U, z.B. einem ^{234}U Ueberschuss von einem Faktor 4, dem höchsten Wert der bisher in Schweizer Grund- und Quellwässern gefunden wurde.

Für das ^{222}Rn im Trinkwasser gibt es in der Schweiz keine Limite.

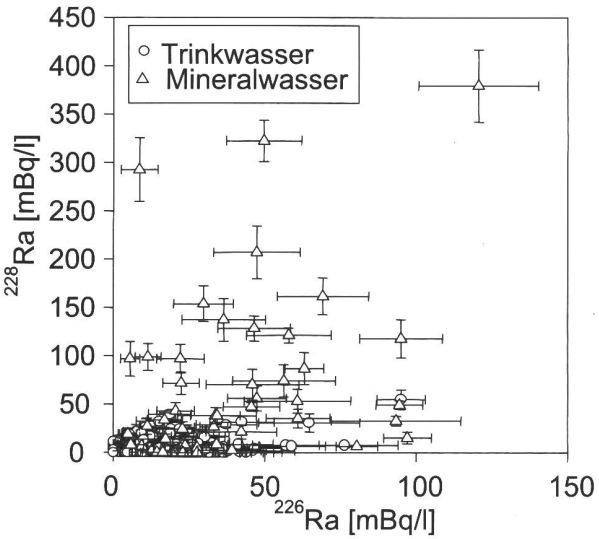
Vergleich zwischen Trinkwässern und Mineralwässern

Bei ^{222}Rn und ^{238}U sind kaum Unterschiede in den Verteilungen für Mineralwassser gegenüber Trinkwasser zu sehen. Beim ^{222}Rn erscheint das vernünftig, da die Radon-Konzentration durch die sehr lokale hydrogeologische Umgebung geprägt wird. Beim Uran könnte das daher rühren, dass die Löslichkeit des Uran im wesentlichen vom Sauerstoffgehalt und nur wenig von der Mineralisation bestimmt wird.

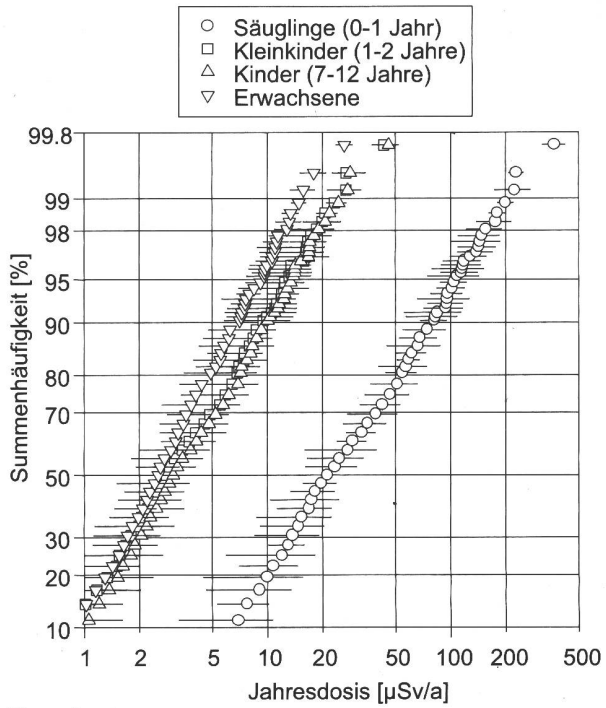
Grössere Unterschiede zeigen sich beim ^{226}Ra und insbesondere beim ^{228}Ra. Es wird vermutet, dass das mit verstärkten Ionentausch-Prozessen bei stärker mineralisierten Wässern zu tun hat. Ausserdem sind Mineralwässer häufiger sauerstoffarm als die als Trinkwasser genutzten Grund- und Quellwässer. In anoxischen Wässern bleibt das Radium eher in Lösung, da weniger Metall-Hydroxide gebildet werden, die das Radium absorbieren können. Viel mehr als eine Arbeitshypothese ist das aber nicht. Es ist auch das erste Mal, dass ein so grosses Datenmaterial für die Schweiz vorliegt. Da bleibt noch einiges an Interpretation und Zusatzuntersuchungen zu tun.

Korrelation zwischen den ^{226}Ra und den ^{228}Ra Konzentrationen

Das ^{226}Ra kann leichter als das ^{228}Ra gemessen werden. Daher wird häufig auf die Messung des ^{228}Ra verzichtet, in der Hoffnung, dass eine Korrelation zwischen den beiden Radiumisotopen besteht. Eine solche Korrelation würde es erlauben den Dosisbeitrag des ^{228}Ra abzuschätzen. Figur 5 zeigt klar, dass das zumindest für die Grundwässer im Kanton Graubünden nicht zutrifft. Das ist eigentlich auch nicht zu erwarten, da ^{226}Ra und ^{228}Ra aus unterschiedlichen Zerfallsreihen stammen. Für eine Abschätzung der Dosisbelastung genügt es daher nicht, nur das ^{226}Ra zu messen.



Figur 5
^{226}Ra vs. ^{228}Ra



Figur 6
Häufigkeitsverteilung der aus den gemessenen Aktivitätskonzentrationen berechneten Jahresdosis für verschiedene Altersklassen,

Dosisabschätzung

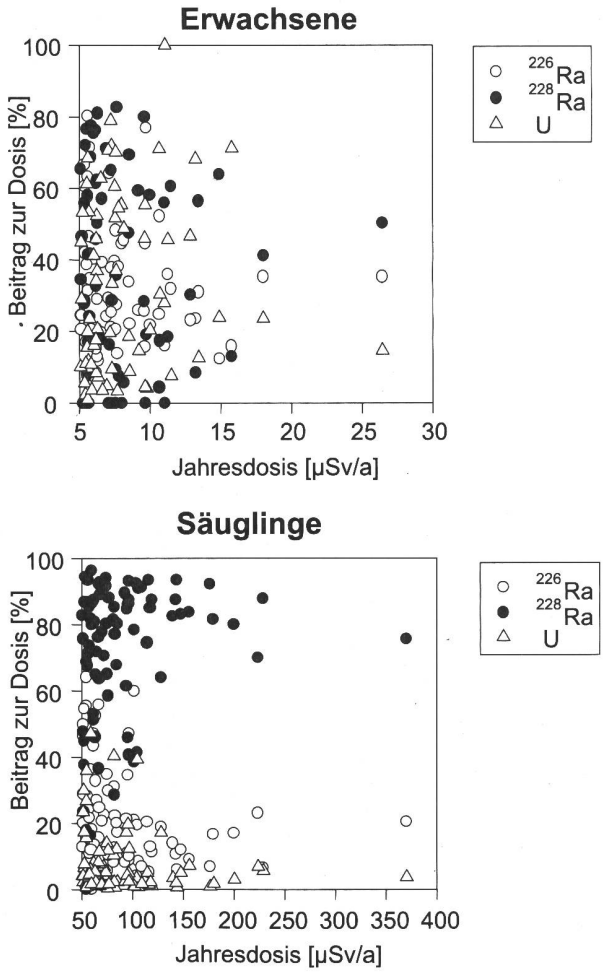
Figur 6 zeigt die Verteilung der aus den Aktivitätskonzentrationen berechneten Jahresdosis für die 360 Trinkwasserproben.

Da in der Schweizerischen Strahlenschutzverordnung keine Konsumraten und für das ^{228}Ra nur Dosisfaktoren für Erwachsene erwähnt sind, wurden folgende Konsumraten und Dosisfaktoren des Deutschen Bundesamtes für Strahlenschutz für die Dosisberechnung übernommen :

Altersgruppe	Dosisfaktor [µSv/Bq]			
	Konsumrate [l/Jahr]	^{238}U	^{226}Ra	^{228}Ra
0-1 Jahr	170 *)	0.34	4.7	30
1-2 Jahre	100	0.12	0.96	5.7
7-12 Jahre	150	0.068	0.8	3.9
Erwachsene	350	0.045	0.28	0.69

*) Nahrung ausschliesslich mit Trinkwasser zubereitet, nicht gestillt

Für die Berechnung wurde ein Gleichgewicht zwischen ^{238}U und ^{234}U und der gleiche Dosisfaktor der beiden Uranisotopen angenommen. Bei den Säuglingen würde bei 5% der Trinkwässer die EU-Limite von 100 µSv/a überschritten. Diese Limite gilt aber für die Schweiz nicht.



Figur 7
relativer Beitrag der einzelnen Radionuklide zur Jahresdosis.

Figur 7 zeigt die relativen Beiträge der verschiedenen Nuklide zur Gesamtdosis bei Erwachsenen und bei Säuglingen. Insbesondere bei den Säuglingen ist das ^{228}Ra wesentlich für erhöhte Dosiswerte verantwortlich.

Danksagung

Dem Kantonalen Labor Zürich, besonders Daniel Imhof, Susanne Pfenninger und den Mitarbeitern der Abteilung "Elemente" danken wir für die Durchführung der ICP-MS-Messungen. Den Mitarbeitern des Kantonalen Labors und der Lebensmittelkontrolle Graubünden danken wir für die Unterstützung beim Erheben und Untersuchen der Wasserproben. Diese Untersuchungen profitierten von der Unterstützung durch das BAG, Abteilung Strahlenschutz.

Literatur

1) Deflorin, O. und Surbeck, H., Natürliche Radionuklide im Trinkwasser am Beispiel des Kantons Graubünden. GWA (Gas, Wasser, Abwasser), 1, 2003, 40 - 45.

2) Surbeck, H., Alpha spectrometry sample preparation using selectively adsorbing thin films, Applied Radiation and Isotopes 53 (2000) 97-100

3) Eikenberg, J., Tricca, A., Vezzu, G., Bajo, S., Ruethi, M. and Surbeck, H., Determination of Ra-228, Ra-226 and Ra-224 in natural water via adsorption on MnO_2-coated discs, J. Environmental Radioactivity 54 (2001), 109-131

4) Deflorin, O., Natürliche Radionuklide in Grundwässern des Kantons Graubünden, Dissertation, Université de Neuchâtel, 2004