

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: - (2011)

Rubrik: Umwelt = Environnement

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: 30.09.2025

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

Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz

Radioactivité de l'environnement
et doses de rayonnements en Suisse

Ergebnisse 2011
Résultats 2011



4

Umwelt
Environnement



Inhaltverzeichnis / Sommaire

4.1.a Reaktorunfalls in Fukushima Dai-ichi im März 2011: Auswirkungen auf Umwelt und Lebensmittel in der Schweiz	53
Einleitung	53
Messungen der Radioaktivität in der Luft	54
Bewertung der Ergebnisse	56
Weitere Anmerkungen zu den Messergebnissen	56
4.1.b Accident nucléaire de Fukushima: Conséquences pour l'environnement et les denrées alimentaires en Suisse	57
Introduction	57
Mesures de la radioactivité dans l'air	58
Evaluation des résultats	60
4.2 Radioactivité de l'air et des précipitations	61
Résumé	61
Air	61
RADAIR	
Réseau automatique de surveillance de l'air	63
Conclusions	68
4.3 Überwachung der Radioaktivität der Luft mit Militärflugzeugen	69
Zusammenfassung	69
Vorgeschichte	69
Sammlung der Proben	70
Messung der Proben	70
4.4 Radioaktivität in aquatischen Systemen	72
Zusammenfassung	72
Überwachung der Abgaben der Kernanlagen	72
Schwebstoffproben und Tritium im Rhein bei Weil	79
Allgemeine Überwachung	80
4.5 Radioactivité du sol et de l'herbe	81
Résumé	81
Introduction	81
Résultats et discussion	82
Conclusions	84
4.6 Natürliche und künstliche Radionuklide in Sedimenten von drei Schweizer Seen	85
Zusammenfassung	85
Einleitung	85
Probennahme und Aufarbeitung	86
Analysenverfahren	86
Resultate	88

4.1.a

Reaktorunfalls in Fukushima Dai-ichi im März 2011: Auswirkungen auf Umwelt und Lebensmittel in der Schweiz

S. Estier, P. Beuret, G. Ferreri, A. Gurtner, M. Müller, P. Steinmann, T. Marti

Sektion Umweltradioaktivität, URA / BAG, 3003 BERN

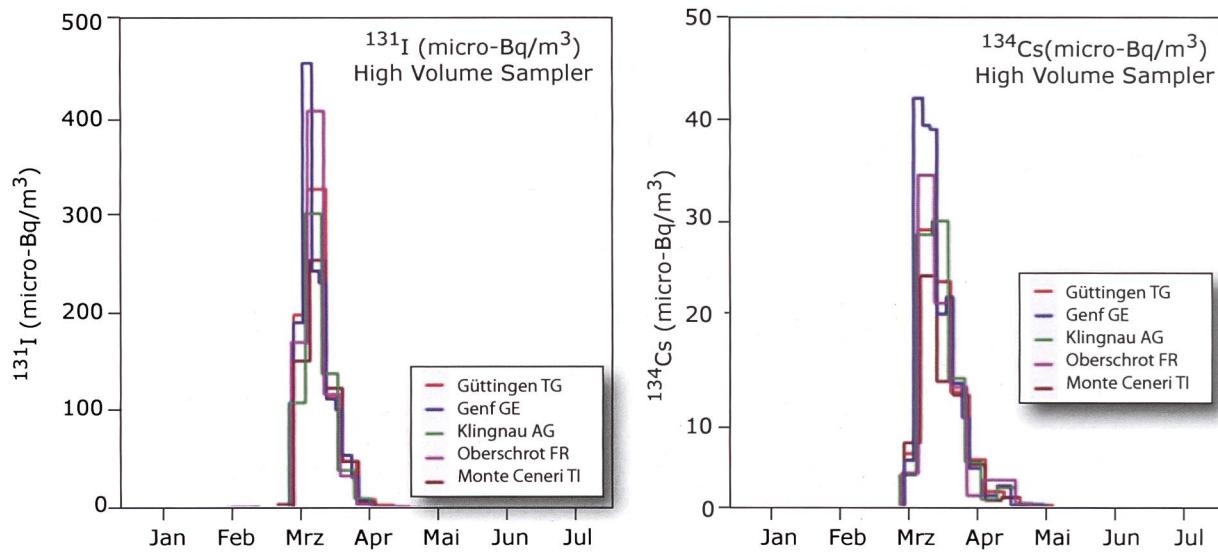
Einleitung

Am 11. März 2011 richteten ein extremes Erbeben und der damit verbundene Tsunami enorme Zerstörung an der Ostküste Japans an und forderten tausende von Menschenleben. Die Ereignisse verursachten gleichzeitig den kompletten Ausfall der Kühlssysteme in der Kernanlage Fukushima Dai-ichi. Dies führte in den darauf folgenden Tagen zur Freisetzung von grossen Mengen von Radioaktivität. Luftmassen mit Radioaktivität von diesem Reaktorunfall erreichten Ende März 2011 – stark verdünnt – auch die Schweiz.

Die Radioaktivität in der Umwelt und in Lebensmitteln wird in der Schweiz vom Bundesamt für Gesundheit (BAG) überwacht. Dies geschieht in Zusammenarbeit mit den kantonalen Laboratorien und weiteren spezialisierten Labors von Bund und Kantonen. Nach dem Reaktorunfall in Fukushima Dai-ichi wurde der ständige Probenahmeplan mit zusätzlichen Luftfilter-, Gras-, Gemüse- und Milchproben ergänzt. Der vorliegende Bericht dokumentiert die wichtigsten Messresultate und Schlussfolgerungen.

Die in der Schweiz gemessenen Radionuklid-Konzentrationen lagen unterhalb der Nachweisgrenzen der automatischen Alarmmessnetze (NADAM, MADUK, RADAIR) und waren 1'000 bis 10'000 mal tie-

fer als die Konzentrationen, die in der Schweiz nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl gemessen wurden. Mit empfindlichen Messeinrichtungen konnten in der bodennahen Luft in erster Linie erhöhte Konzentrationen von Jod-131 (^{131}I) festgestellt werden. In geringeren Konzentrationen wurden auch weitere aus Fukushima stammende Isotope, wie beispielsweise Cäsium-134 und Cäsium-137, nachgewiesen. ^{131}I kam in partikelgebundener Form sowie in bis zu sechsmal höherer Konzentration auch gasförmig vor. Die maximale in der Schweiz gemessene Gesamtkonzentration von ^{131}I (partikelgebunden und gasförmig) in der Luft betrug etwa 2'000 micro-Bq/m³. Ein μBq (micro-Becquerel) entspricht einem Millionstel eines Bq (Becquerel) und wird in diesem Bericht als Einheit für die Konzentrationen in der Luft verwendet. Über die Luft gelangten Spuren von ^{131}I auch ins Regenwasser sowie in Gras und Freilandgemüse (maximal wenige Bq pro Kilogramm Frischgewicht). Von den gemessenen Milchproben aus der Schweiz hingegen wies nur eine einzige Probe geringste Spuren von ^{131}I auf (0.1 Bq/l). Die in der Schweiz nachgewiesene Radioaktivität aus Fukushima war für die Schweizer Bevölkerung gesundheitlich unbedenklich. Seit Mitte April 2011 sind in der Schweiz die Konzentrationen aller aus Fukushima stammenden Isotope in der Luft zurückgegangen (Figur 1).

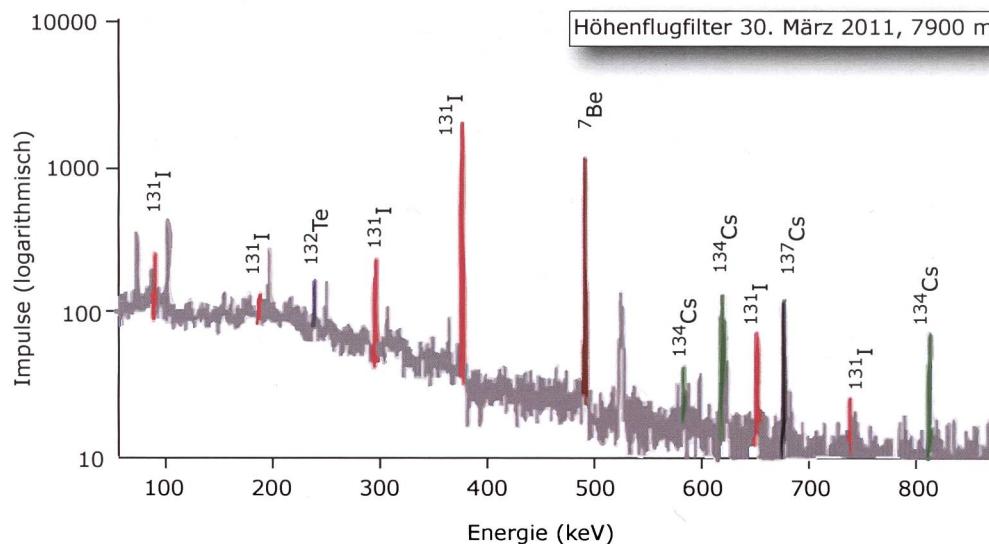


Messungen der Radioaktivität in der Luft

Hochvolumensammler (HVS, Luftfilter)

Proben für hochempfindliche Messungen der Radioaktivität im Luftstaub werden in der Schweiz an fünf Standorten mit sogenannten Hochvolumensammlern (HVS) erhoben. Dabei wird mit Hilfe einer starken Pumpe eine Woche lang Luftstaub (Aerosole) auf einem Filter gesammelt. Der Filter wird anschliessend im Labor am BAG in Bern mittels Gammaspektrometrie auf verschiedene radio-

aktive Nuklide analysiert. Ein Gammaspektrum ist in Figur 2 gezeigt. Bei allen fünf Stationen konnte die bei den Reaktorunfällen in Fukushima freigesetzte und weiträumig verfrachtete Radioaktivität klar nachgewiesen werden (vgl. Abbildung 1). Erhöht waren vor allem die Konzentrationen von ^{131}I (Halbwertszeit 8 Tage, maximale Konzentration $450 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$) sowie in geringerem Masse Cäsium-Isotope (^{137}Cs und ^{134}Cs , Halbwertszeiten 30 Jahre beziehungsweise 2 Jahre). Die maximalen Konzentrationen von ^{134}Cs waren rund 10 mal tiefer als jene



Figur 2:

Gammaspektrum eines Luftfilters aus der Schweiz mit Radioisotopen aus dem Reaktorunfall in Fukushima. Das gezeigte Spektrum stammt von einer Aerosolprobe, die am 30.3.2011 in einer Höhe von 7'900 m mit einem Flugzeug gesammelt wurde (Höhenflugfilter).

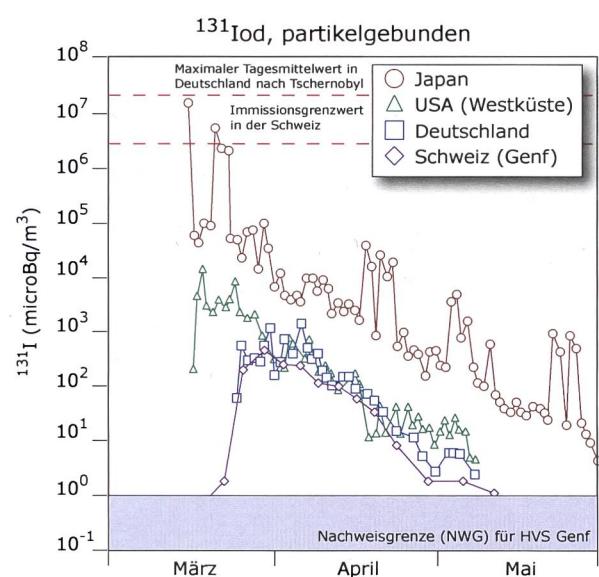
von ^{131}I . Das Verhältnis von ^{137}Cs zu ^{134}Cs lag nahe bei 1. In einigen Proben wurden auch kurzlebige Isotope wie Tellur-132 (^{132}Te), ^{132}I und ^{136}Cs nachgewiesen.

Partikelgebundenes ^{131}I

Figur 3 vergleicht den zeitlichen Verlauf der ^{131}I Konzentrationen in Genf mit einer Messstation in Japan, einer Station in den USA (Westküste) sowie der Station Schauinsland bei Freiburg in Deutschland im unmittelbaren Anschluss an die Unfälle in Fukushima (Quelle: www.bfs.de). Die europäischen Messstationen registrierten erhöhte Radioaktivität ungefähr ab dem 22. März 2011. Die höchsten Werte (bis $6'000 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ partikelgebundenes ^{131}I) traten zwischen dem 28. März und dem 6. April 2011 und eher im nördlichen Teil Europas auf. Gegen Ende Mai 2011 erreichten die Konzentrationen in Europa Werte wie vor dem Unfall, das heisst meist unterhalb der Nachweisgrenze.

Gasförmiges ^{131}I

In der Schweiz wird gasförmiges ^{131}I kontinuierlich von vier Detektoren (NaI) gemessen, welche bei erhöhten Werten automatisch alarmieren (RADAIR-Jod). Diese Detektoren stehen in den Kantonen Genf, Fribourg, Aargau und Tessin. Die nach den Unfällen in Japan aufgetretenen Mengen von gasförmigem ^{131}I in der Schweiz waren zu gering, um vom Jod-Alarmsystem direkt erfasst zu werden.



Figur 3:

Entwicklung der Konzentration von partikelgebundenem ^{131}I in der Atmosphäre. Gezeigt sind Werte aus Japan, den USA (Westküste), Deutschland (Freiburg im Breisgau) und der Schweiz (Genf). Die obere gestrichelte rote Linie zeigt den maximalen Tagesmittelwert wie er in Deutschland nach dem Unfall in Tschernobyl 1986 aufgetreten ist. Der schweizerische Immissionsgrenzwert (höchste zulässige länger dauernde Konzentration) ist ebenfalls dargestellt. Quelle (ausser Genf): www.bfs.de.

Hingegen wurden einige Kartuschen mit Silber/Nitrat-Granulat, welche gasförmiges Jod binden, im Labor nachgemessen, was eine tiefere Nachweisgrenze ermöglicht. Für die Zeit vom 31. März bis zum 7. April 2011 wurden so an drei RADAIR-Jod Standorten Aktivitäten von gasförmigem ^{131}I zwischen 1'000 und 1'800 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ bestimmt. Die Konzentrationen von gasförmigem ^{131}I waren damit vier- bis sechsmal höher als jene von partikelgebundenem ^{131}I , was gut mit Messungen in anderen europäischen Ländern übereinstimmt.

Höhenluft

Höhenluftproben wurden mit zwei an Tiger-F5 Jets der Schweizer Luftwaffe montierten Luftfiltern gesammelt. Die Höhenluft zeigte Ende März 2011 mit bis zu $1'900 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ eine ähnliche ^{131}I Aktivität partikelgebunden wie bodennahe Luft im nördlichen Europa. Dass in der Schweiz am Boden tiefere Werte gemessen wurden, lässt sich wahrscheinlich durch die Wetterlage (Südwind) erklären.

Lebensmittel- und Umweltproben aus der Schweiz

Die Kontamination der Luft hat auch zu geringer Deposition von Radionukliden auf dem Boden geführt. Messungen der Radioaktivität an Grasproben aus der Schweiz zeigten Werte in der Grössenordnung von einigen Bq/m^2 an. Die ^{131}I Aktivitäten im Gras betragen maximal einige wenige Bq/kg Frischgewicht. Die höchsten Werte traten in Höhenlagen auf, wo die Niederschlagsmengen grösser sind. Ähnliche Aktivitäten wie im Gras wurden erwartungsgemäss auch in ungewaschenem Blattgemüse gefunden. Für den Transfer von ^{131}I vom Gras in die Milch gilt näherungsweise ein Faktor 1/3; d.h. bei dauerhaft 3 Bq/kg Frischgewicht im Gras müssen bis zu 1 Bq/l in der Milch erwartet werden. Von den nach Fukushima gemessenen Milchproben enthielt jedoch nur vereinzelte Proben geringste Spuren von ^{131}I ($<1 \text{ Bq}/\text{l}$). Anfang April wurden viele Kühe noch nicht mit Frischgras gefüttert. Während ^{131}I auch im Regenwasser festgestellt wurde, war das Trinkwasser erwartungsgemäss von keiner radioaktiven Kontamination betroffen. Als weiteres eindeutig aus Japan stammendes Radioisotop wurden in einigen Grasproben ^{134}Cs in kleinsten Spuren nachgewiesen. Drei Milch- und drei Salatproben von Anfang April aus der Region Lausanne wurden auch auf Radiostrontium (^{90}Sr) untersucht. Es sind keine erhöhten Werte festgestellt worden. Eine Übersicht der in der Schweiz von Mitte März bis Ende April durchgeföhrten Messungen von Lebensmittel- und Umweltproben ist in Tabelle 1 gezeigt.

Tabelle 1:

Übersicht der nach den Reaktorunfällen in Fukushima gemessenen Umwelt- und Lebensmittelproben (15. März bis 30. April 2011). NWG: Nachweisgrenze.

Probentyp	Anzahl Proben	^{131}I Maximum	^{131}I Median
Luft (HVS)	44	456 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$	48 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$
Regen	12	1.4 Bq/l	0.2 Bq/l
Gemüse	29	1.2 Bq/kg	< 0.5 Bq/kg
Gras	22	4.6 Bq/kg	0.7 Bq/kg
Milch	61	0.1 Bq/l	< 0.2 Bq/l
Trinkwasser	22	< 0.1 Bq/l	
In-situ	3	< NWG	

Bewertung der Ergebnisse

Obwohl Spuren der in Fukushima Dai-ichi freigesetzten Radioaktivität mit hochempfindlichen Verfahren auch in der Schweiz nachgewiesen werden konnten, bestand zu keiner Zeit eine gesundheitliche Gefährdung für die Schweizer Bevölkerung. Die Dosisbeiträge durch Direktstrahlung und Inhalation waren vernachlässigbar klein. Die mit der Nahrung aufgenommene Radioaktivität aus Fukushima hätte selbst bei einem Verzehr von 25 kg des am stärksten kontaminierten Gemüses (Blattgemüse) nur 0.5 micro-Sievert (μSv) betragen. Das entspricht einem Zehntausendstel der jährlichen Strahlenbelastung der Bevölkerung (die etwa 5 mSv beträgt).

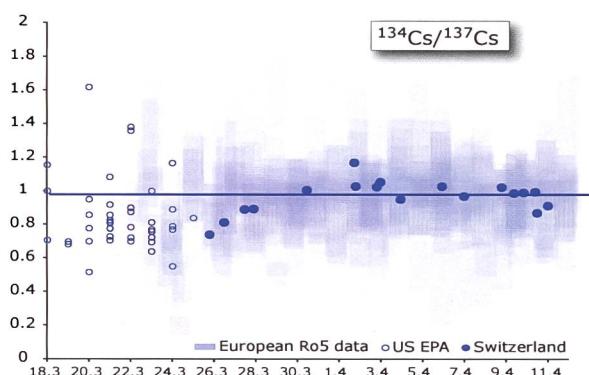
Weitere Anmerkungen zu den Messergebnissen**Das $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ Verhältnis**

Das weltweit gemessene $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ Verhältnis der Emissionen aus Fukushima Dai-Ichi lag nahe bei 1 und war damit höher als jenes nach dem Unfall in Tschernobyl (0.5 - 0.6). Abbildung 4 zeigt die in der Schweiz gemachten Messungen an Aerosolproben zusammen mit weltweiten Messergebnissen.

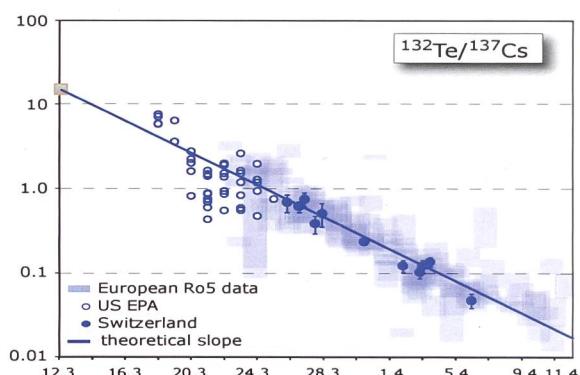
Die kurzlebigen Isotope ^{136}Cs und $^{132}\text{Te}/^{132}\text{I}$

Spuren von ^{131}I und ^{137}Cs werden regelmässig in Hochvolumensammler-Aerosolproben gemessen und sind alleine noch kein ausreichender Hinweis für aktuelle Freisetzung von radioaktivem Material aus einer Kernreaktion. Das langlebige ^{137}Cs kommt auch in Resuspension alter Ablagerungen vor (Atombombenversuche, Tschernobyl) und ^{131}I kann aus medizinischen Anwendungen stammen. Hingegen konnten die gleichzeitig gemessenen Isotope ^{134}Cs und vor allem die kurzlebigen ^{136}Cs und $^{132}\text{Te}/^{132}\text{I}$ nur durch einen Ursprung in den Unglücksreaktoren in Japan erklärt werden.

In Abbildung 5 ist das Verhältnis $^{132}\text{Te}/^{137}\text{Cs}$ gezeigt. Das Isotop ^{132}Te hat eine Halbwertszeit von nur 3.23 Tagen und seine Aktivität ist deshalb schnell zurückgegangen. Die weltweit gemessenen Werte¹ liegen nahe bei einem theoretischen Verlauf mit einer einmaligen Abgabe am 12.3.2011 und einem $^{132}\text{Te}/^{137}\text{Cs}$ Verhältnis von 13.5, wobei das Verhältnis von 13.5 jenem entspricht, welches auch für den Unfall in Tschernobyl ermittelt wurde.



Figur 4:
Verhältnis von $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ in den Abgaben vom Reaktorunfall in Fukushima Dai-Ichi.



Figur 5:
Verhältnis von $^{132}\text{Te}/^{137}\text{Cs}$ in den Abgaben vom Reaktorunfall in Fukushima Dai-Ichi.

¹ Masson, O. et al. 2011. Tracking of Airborne Radionuclides from the Damaged Fukushima Dai-Ichi Nuclear Reactors by European Networks. Environ. Sci. Technol., 45, 7670–7677.

4.1.b

Accident nucléaire de Fukushima: Conséquences pour l'environnement et les denrées alimentaires en Suisse

S. Estier, P. Beuret, G. Ferreri, A. Gurtner, M. Müller, P. Steinmann, T. Marti

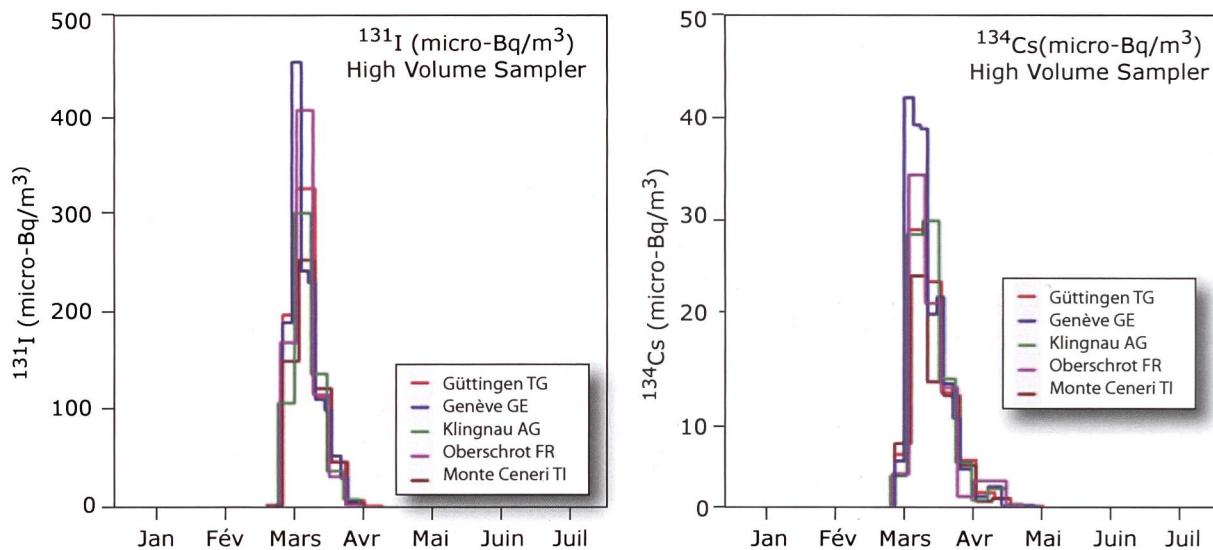
Section Radioactivité de l'environnement, URA / OFSP, 3003 BERN

Introduction

Le 11 mars 2011, un tremblement de terre extrêmement violent et un raz de marée ont détruit les systèmes de refroidissement de l'installation nucléaire de Fukushima Dai-ichi au Japon. Une grande quantité de radioactivité s'est échappée de l'installation et a atteint la Suisse, fortement diluée, fin mars 2011. A cette occasion, l'OFSP a intensifié ses mesures de la radioactivité dans des échantillons d'air, d'herbe, de légumes et de lait.

Les réseaux d'alarme automatiques de Suisse (NADAM, MADUK, RADAIR) n'ont pas pu déceler de radionucléides provenant de Fukushima. Des dispositifs de mesure plus sensibles ont détecté dans l'air, au niveau du sol, une augmentation des concentrations d'iode-131 (^{131}I) et, dans une plus faible mesure, d'autres isotopes, tels que le césium-134 (^{134}Cs) et le césium-137 (^{137}Cs). Globalement, les concentrations observées ont été 1'000 à 10'000 fois plus faibles que celles qui ont été mesurées en Suisse lors de l'accident de Tchernobyl.

L' ^{131}I est apparu dans l'air aussi bien lié à des particules que sous forme gazeuse. La concentration totale maximale mesurée en Suisse (iode lié à des particules et iodé gazeux) s'est élevée à environ 2'000 micro-Bq/m³ ($\mu\text{Bq}/\text{m}^3$) Des traces d' ^{131}I sont parvenues dans l'eau de pluie, ainsi que dans l'herbe et les légumes de plein champ (au maximum quelques becquerels par kilogramme de matière fraîche). Parmi les échantillons de lait, un seul a présenté des traces infimes d' ^{131}I (0.1 Bq/l). La radioactivité provenant de Fukushima n'a donc pas mis en danger la population suisse. La concentration des isotopes dans l'air diminue depuis la mi-avril 2011 (figure 1).

**Figure 1:**

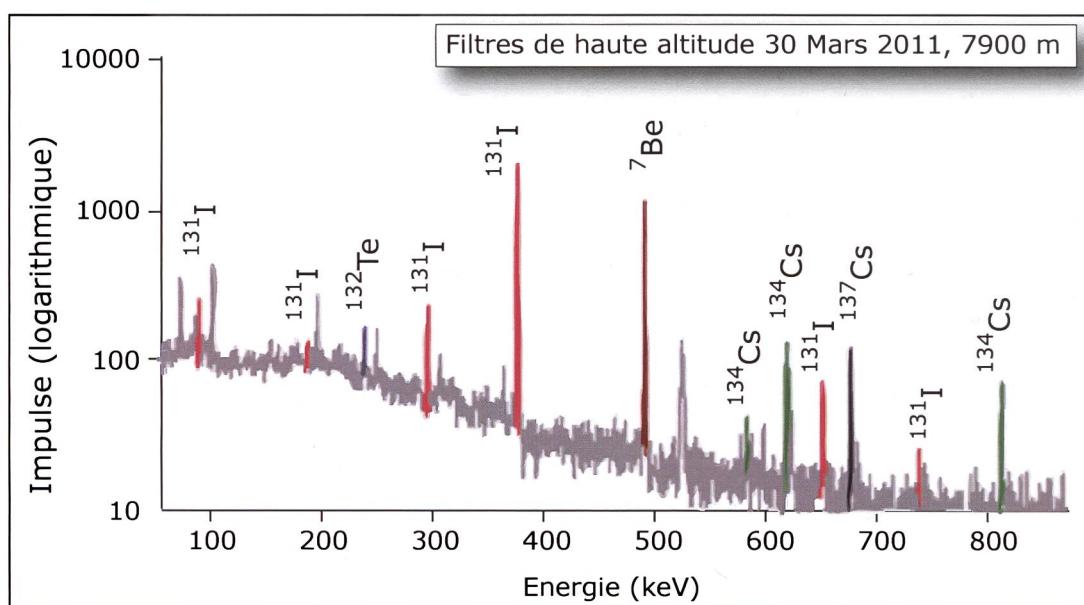
Evolution en Suisse des concentrations de ^{131}I (image de gauche, lié à des particules) et de ^{134}Cs (image de droite), entre début janvier et fin juillet 2011. Les émissions de Fukushima ont conduit à une nette augmentation des concentrations entre mars et avril 2011, qui n'a toutefois pas représenté de danger pour la santé.

Mesures de la radioactivité dans l'air

Collecteurs à haut débit (HVS)

La Suisse dispose de cinq stations dans lesquelles on collecte des échantillons d'aérosols à l'aide de prélevageurs à haut débit (HVS), afin de réaliser des mesures de haute sensibilité de la radioactivité liée aux particules en suspension dans l'air. Toutes les stations ont pu déceler la radioactivité libérée à Fukushima (voir la figure 1). On a constaté une hausse des

concentrations en ^{131}I (période de 8 jours, concentration maximale de $450 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$) et, dans une moindre mesure, en isotopes du cézium (^{137}Cs et ^{134}Cs , périodes de 30 ans, respectivement de 2 ans). Les concentrations maximales de ^{134}Cs ont été environ 10 fois plus faibles que celles de ^{131}I . Le rapport ^{134}Cs à ^{137}Cs était proche de 1. Dans quelques échantillons, on a aussi mis en évidence des isotopes de courte période, tels que le tellure-132 (^{132}Te), l' ^{132}I et le ^{136}Cs .

**Figure 2:**

Spectre gamma d'un filtre à air contenant des radioisotopes de l'accident nucléaire de Fukushima. Ce spectre provient d'un échantillon d'aérosols prélevé le 30 mars 2011 à une altitude de 7900 m lors d'un vol au dessus du territoire suisse (filtre de vol en altitude).

^{131}I particulaire

La figure 3 compare l'évolution de la concentration d' ^{131}I à Genève avec celle de stations de mesure situées au Japon, aux Etats-Unis (côte ouest), ainsi qu'à la station de Schauinsland à Fribourg-en-Brisgau, juste après l'accident de Fukushima (source: www.bfs.de). Les stations de mesure européennes ont enregistré une augmentation de la radioactivité à partir du 22 mars 2011. Les valeurs les plus élevées (jusqu'à 6'000 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ de ^{131}I particulaire) ont été enregistrées entre le 28 mars et le 6 avril 2011, plutôt dans le nord de l'Europe. Vers la fin mai 2011, les concentrations en Europe sont revenues aux valeurs d'avant l'accident.

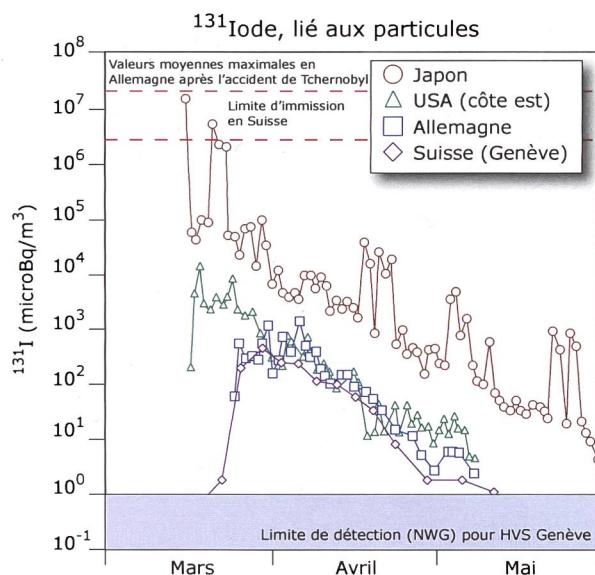


Figure 3:

Evolution de la concentration en ^{131}I particulaire dans l'atmosphère. Valeurs mesurées au Japon, aux Etats-Unis (côte ouest), en Allemagne (Fribourg-en-Brisgau) et en Suisse (Genève). La ligne supérieure rouge pointillée indique la moyenne journalière maximale mesurée en Allemagne après l'accident de Tchernobyl en 1986. La limite suisse d'immission (valeur maximale admissible pour une concentration de longue durée) est aussi représentée. Source (sauf Genève): www.bfs.de.

^{131}I sous forme gazeuse

La Suisse dispose d'un système d'alarme pour l'iode; il mesure l' ^{131}I , sous forme gazeuse, à l'aide de quatre détecteurs (NaI) automatiques, dans les cantons de Genève, de Fribourg, d'Argovie et du Tessin. Ce système n'a pas pu détecter l' ^{131}I sous forme gazeuse après Fukushima, car les quantités étaient trop faibles. Des mesures ultérieures plus précises, effectuées en laboratoire, ont mis en évidence, pour la période du 31 mars au 7 avril 2011, des activités situées entre 1'000 et 1'800 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Les concentrations en ^{131}I sous forme gazeuse ont été quatre à six fois plus élevées que celles en ^{131}I lié à des particules, ce qui concorde avec les mesures effectuées dans d'autres pays européens.

Air en haute altitude

Des avions Tiger des Forces aériennes suisses, équipés de filtres à air, ont prélevé des échantillons en haute altitude. Ces vols ont permis de déceler une activité en ^{131}I particulaire atteignant 1'900 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ à fin mars 2011, soit plus ou moins identique à celle détectée dans l'air au sol dans le nord de l'Europe. Les valeurs, plus faibles, mesurées au sol étaient certainement liées à la situation météorologique (vent du sud).

Echantillons prélevés dans l'environnement et les denrées alimentaires en Suisse

En Suisse, l'air contaminé a entraîné un faible dépôt de radionucléides sur le sol. L'activité en ^{131}I détectée dans l'herbe a atteint au maximum quelques Bq par kg de matière fraîche. Par ailleurs, la radioactivité décelée dans les prairies correspondait à quelques Bq/m^2 . Des activités en ^{131}I semblables à celles mesurées dans l'herbe se sont retrouvées dans les légumes à feuilles avant lavage. Les valeurs les plus élevées ont été observées sur les hauteurs présentant une forte pluviométrie. La contamination en ^{131}I de l'eau de pluie n'a toutefois pas contaminé l'eau potable.

Habituellement, près d'un tiers de l'activité en ^{131}I présente dans l'herbe est transféré dans le lait, c'est-à-dire que pour 3 Bq par kg de matière fraîche dans l'herbe on peut s'attendre à une concentration pouvant aller jusqu'à 1 Bq/l dans le lait. Parmi les échantillons de lait mesurés après l'accident de Fukushima, un seul contenait de faibles traces de ^{131}I (0.1 Bq/l), ceci probablement dû au fait qu'en avril, la plupart des vaches ne sont pas encore affourragées à l'herbe fraîche.

De faibles traces de ^{134}Cs , autre radioisotope provenant indéniablement du Japon, ont aussi été détectées dans quelques prélèvements d'herbe. Trois échantillons de lait et de salade collectés début avril dans la région lausannoise n'ont présenté aucune augmentation de l'activité en radiostrontium (^{90}Sr). Le tableau 1 apporte une vue d'ensemble des mesures effectuées en Suisse entre mi-mars et fin avril sur des échantillons de denrées alimentaires et de l'environnement.

Tableau 1:

Vue d'ensemble des mesures effectuées sur des échantillons prélevés dans l'environnement ou dans les denrées alimentaires après l'accident nucléaire de Fukushima (du 15 mars au 30 avril 2011). LD: Limite de détection. La valeur limite pour l'¹³¹I dans les denrées alimentaires importées du Japon s'élève à 300 Bq/kg pour les aliments liquides (lait) et à 2'000 Bq/kg pour toutes les autres denrées alimentaires.

Type d'échantillon	nombre échantillon	valeur maximale en ¹³¹ I	valeur médiane en ¹³¹ I
air (PHD)	44	456 µBq/m ³	48 µBq/m ³
pluie	12	1.4 Bq/l	0.2 Bq/l
légumes	29	1.2 Bq/kg	< 0.5 Bq/kg
herbe	22	4.6 Bq/kg	0.7 Bq/kg
lait	61	0.1 Bq/l	< 0.2 Bq/l
eau potable	22	< 0.1 Bq/l	
in-situ	3	< LD	

Evaluation des résultats

Malgré les traces de radioactivité détectées provenant de Fukushima, la population suisse n'a été à aucun moment mise en danger. Les contributions à la dose dues au rayonnement direct et à l'inhalation ont été négligeables. Même pour une consommation de 25 kg des légumes les plus contaminés (légumes à feuilles), la radioactivité ingérée avec la nourriture n'aurait conduit qu'à une dose de 0.5 micro-Sievert (μSv), ce qui correspond à un dix-millième de l'exposition annuelle de la population (qui est d'environ 5 mSv).

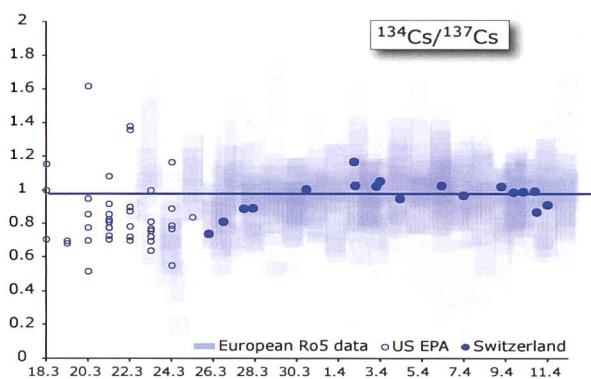


Figure 4:
Rapport ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs dans les rejets de l'accident nucléaire de Fukushima Dai-Ichi.

Autres remarques concernant les mesures après Fukushima**Rapport ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs**

Le rapport ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs des rejets de l'accident à Fukushima mesuré à l'échelle mondiale, était proche de 1. Cette valeur est plus élevée que celle après Tchernobyl (0.5 – 0.6). La figure 4 montre les résultats obtenus en Suisse avec des résultats internationaux.

Isotopes de courtes périodes

Des traces de ¹³¹I et ¹³⁷Cs sont observées régulièrement dans les échantillons de filtres à haut volume. Le ¹³⁷Cs peut être contenu dans des resuspensions de poussières de sol et le ¹³¹I est utilisé pour des traitements médicaux. Pour ces raisons des traces de ces deux isotopes ne sont pas forcément une preuve d'un accident nucléaire. La présence des isotopes de courtes périodes comme le ¹³⁶Cs et le ¹³²Te/¹³²I dans les filtres mesurées fin mars 2011 ne s'explique que par une seule origine possible: l'accident dans les centrales nucléaires à Fukushima.

La figure 5 montre le rapport ¹³²Te/¹³⁷Cs. L'isotope ¹³²Te a une période de 3.23 jours seulement. En conséquence son activité a diminué rapidement. Les valeurs obtenues pour le rapport ¹³²Te/¹³⁷Cs correspondent bien à une ligne théorique obtenue avec un rejet unique le 12.3.11 et un rapport initial de 13.5 (correspondant à la valeur observée après Tchernobyl).

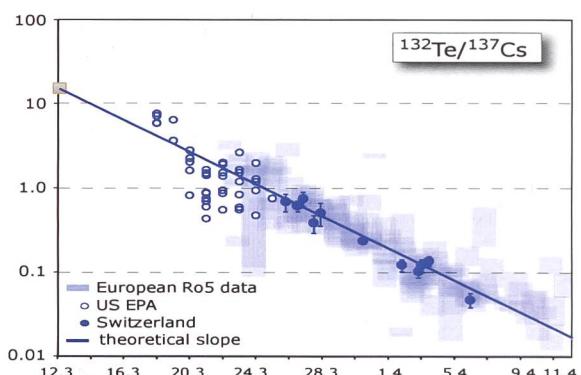


Figure 5:
Rapport ¹³²Te/¹³⁷Cs dans les rejets de l'accident nucléaire de Fukushima Dai-Ichi.

4.2

Radioactivité de l'air et des précipitations

S. Estier, P. Beuret, G. Ferreri, A. Gurtner, M. Müller, P. Steinmann, T. Marti

Section Radioactivité de l'environnement, URA / OFSP, 3003 BERN

Résumé

L'année 2011 a été marquée par l'accident survenu dans la centrale nucléaire japonaise de Fukushima Dai-ichi. Les retombées radioactives de cet accident ont pu être mesurées en Suisse, dans les filtres aérosols des collecteurs à haut débit, dès la fin mars et jusqu'à mi mai environ. Les principaux radioéléments détectés furent le ^{131}I , ainsi que le ^{134}Cs et ^{137}Cs . Notons que l'iode gazeux a également pu être mesuré grâce aux cartouches de collecte du réseau RADAIR-iode. Les activités maximales enregistrées n'ont toutefois pas dépassé 0.08% des valeurs limites d'immissions suisse. Des traces des mêmes radionucléides ont également été détectés dans les précipitations. En dehors de cette période, les résultats de la surveillance de la radioactivité dans l'air et les précipitations obtenus en 2011 sont restés conformes à ceux des années précédentes et montrent la prédominance de la radioactivité naturelle dans ces compartiments environnementaux.

Air

L'OFSP exploite trois réseaux de surveillance de la radioactivité dans l'air. Le premier se compose de collecteurs d'aérosols à moyen débit ($40 \text{ m}^3/\text{h}$) et est principalement dédié à la surveillance des centrales nucléaires (Gösgen, Leibstadt et Mühleberg), ainsi qu'à la surveillance de sites en altitude (Jungfraujoch). L'environnement autour de la centrale nucléaire de Beznau est surveillé par un collecteur du PSI à Villigen. Le deuxième réseau de l'OFSP, d'une très grande sensibilité, est constitué de collecteurs d'aérosols à haut débit (env. $500 \text{ m}^3/\text{h}$) situés jusqu'en 2010 à Oberschrot/FR, Monte-Ceneri/TI, Güttingen/TG, au CERN/GE et à Klingnau/AG. Les collecteurs situés à Oberschrot/FR et au Monte-Ceneri/TI ont été déménagés en juin 2011 à Posieux/FR, respectivement à Cadenazzo/TI dans le cadre de l'implémentation de la nouvelle stratégie de surveillance de l'OFSP. L'objectif étant de disposer de trois stations de référence (1 pour l'ouest du Plateau suisse, 1 pour l'est du Plateau suisse et 1 pour le Sud des Alpes) pour la surveillance de la radioactivité dans l'environnement en Suisse, où l'ensemble des compartiments environnementaux (aérosols, précipitations, sols, herbes, lait) sont analysés. Finalement, l'OFSP gère les 11 stations automatiques de surveillance de l'air composant le réseau RADAIR.

Ces réseaux se distinguent par leur sensibilité et leur rapidité de réponse (intervalle de temps entre le début de la période de collection et la disponibilité des résultats de mesure) et remplissent des rôles bien distincts. Le réseau RADAIR, par exemple, est un système d'alerte dont l'objectif est de permettre une détection rapide d'une éventuelle hausse significative de la radioactivité dans l'air: les aérosols sont ainsi collectés et mesurés en continu sur des filtres déroulants et les résultats sont envoyés à la centrale toutes les 30 min. Cependant la limite de détection pour une activité bêta artificielle nette n'est que d'environ 0.5 Bq/m³ pour des durées de collection et de mesure de 30 min. Dans le cas des collecteurs d'aérosols à haut débit, la période de collection s'élève à 1 semaine, les filtres sont ensuite envoyés par poste puis mesurés en laboratoire, le délai pour l'obtention de résultats est donc de quelques jours, par contre les limites de détection sont très faibles, env. 0.5 µBq/m³ pour le ¹³⁷Cs. Ces installations permettent ainsi d'évaluer les niveaux réels de radioactivité présents dans l'environnement.

Collecteurs d'aérosols à haut débit

Les concentrations des différents radionucléides mesurées dans les filtres à aérosols provenant des 5 collecteurs à haut débit (High Volume Sampler) sont disponibles en ligne à l'adresse suivante: www.bag.admin.ch/hvs/

Ces filtres sont changés chaque semaine, puis envoyés au laboratoire de l'OFSP où ils sont analysés par spectrométrie gamma.

L'année 2011 a été marquée par l'accident qui s'est produit dans la centrale nucléaire japonaise de Fukushima Dai-ichi après le tremblement de terre et le raz de marée du 11 mars. Les retombées radioactives consécutives à cet accident ont pu être détectées en Suisse, sur les filtres aérosols, dès la fin mars et jusqu'à fin mai environ (voir aussi chapitre 4.1), mais les activités les plus élevées ont été enregistrées entre le 27.03 et le 05.04 2011. Les principaux radioéléments détectés furent le ¹³¹I, ainsi que le ¹³⁴Cs et ¹³⁷Cs. Les activités maximales mesurées pour ces radioisotopes sur les filtres aérosols des collecteurs à haut débit (situés en plaine) ont été respectivement de 456, 42 et 43 µBq/m³. A la Jungfraujoch (collecteur à moyen débit), les activités maximales ont atteint respectivement 916, 39 et 33 µBq/m³.

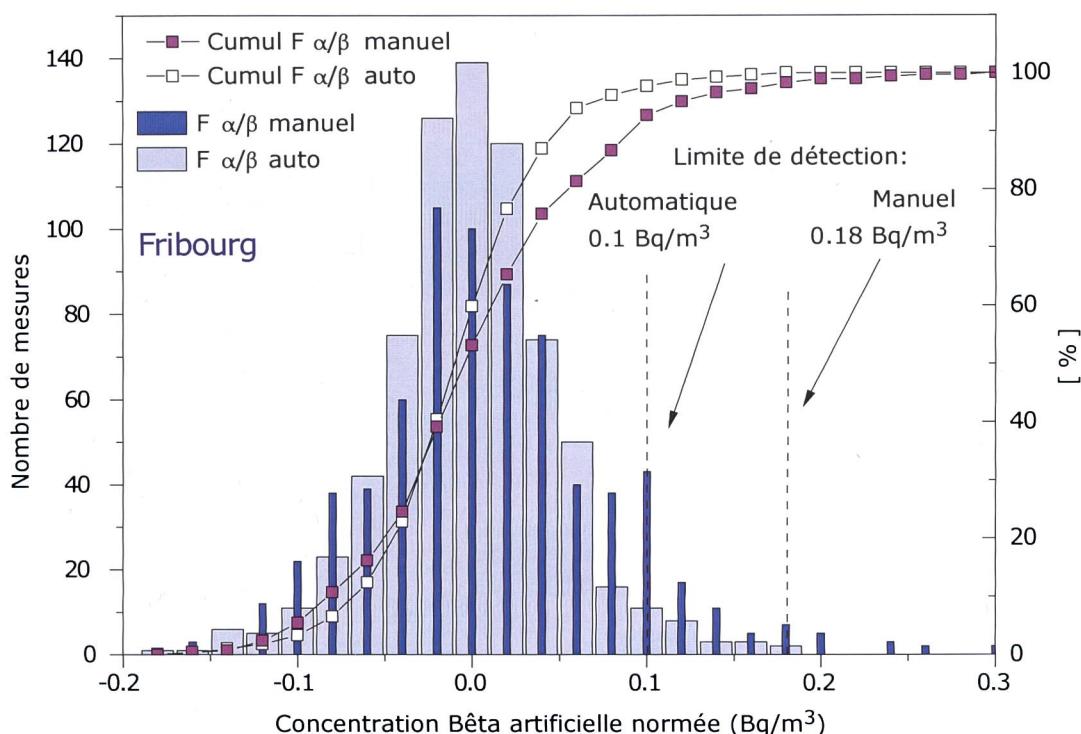
Malgré l'accident de Fukushima, les résultats des mesures 2011 ont montré que les radioéléments d'origine naturelle, ⁷Be et ²¹⁰Pb, prédominent dans les aérosols. Des valeurs comprises entre 1.0 et 8.2 et entre 0.1 et 3.0 mBq/m³ ont été enregistrées respectivement pour ces deux isotopes. Des traces de ²²Na, également d'origine naturelle, ont été détectées dans les 5 stations (valeurs comprises entre 0.1 et 1.2 microBq/m³). Le ¹³⁷Cs, attribuable à la remise en suspension dans l'air des anciennes dépositions de Tchernobyl et des essais nucléaires atmosphériques des années 50 et 60, est l'unique radioélément d'origine artificielle identifié régulièrement sur l'ensemble de l'année, et ce, dans les 5 stations. Les activités mesurées pour cet isotope, en dehors de la période mars à mai, sont toutefois très faibles (Exemple de Güttingen/TG: valeur médiane 0.55 µBq/m³, maximum 2.9 µBq/m³).

Des traces de ²⁴Na et de ¹³¹I ont par ailleurs été sporadiquement détectées dans les filtres aérosols du CERN (valeurs comprises entre 19 et 90 µBq/m³ et entre 0.6 et 1.4 µBq/m³ respectivement). Ces radioisotopes, d'une demi-vie de 15 h pour le ²⁴Na et de 8 jours pour le ¹³¹I, sont produits dans les accélérateurs de particules du centre de recherche. Notons que ces concentrations sont nettement inférieures aux limites d'immissions stipulées dans l'ORaP (100 Bq/m³ pour le ²⁴Na, et 2.7 Bq/m³ pour le ¹³¹I).

Remarquons encore qu'une faible activité de ¹³¹I (0.6-0.9 µBq/m³) a été enregistrée dans tous les filtres aérosols collectés par les stations HVS au cours de la période fin février-début mars. Ce signal a également été détecté en Autriche et en France (R. Gurriaran, comm. pers.). Son origine n'a pu être déterminée. Les traces de ¹³¹I détectées début novembre sur les filtres aérosols des stations de Güttingen et Klingnau proviennent de rejets dans l'atmosphère de ¹³¹I par l'institut hongrois «Institute of Isotopes Ltd, Budapest». Ces rejets ont pu être détectés dans la majeure partie des pays d'Europe à l'aide des collecteurs d'aérosols à grand volume.

Voisinage des centrales nucléaires

Les résultats des mesures des filtres aérosols des environs des centrales nucléaires de Mühleberg, Gösgen, Beznau (mesures PSI) et Leibstadt ne se sont pas distingués de ceux enregistrés dans les filtres collectés aux stations de référence, situées hors influence de ces installations. En effet, en dehors du ¹³¹I, du ¹³⁴Cs et du ¹³⁷Cs, dus à l'accident de Fukushima et détectés dans toute la Suisse entre fin mars et mi mai, ainsi que des traces de ¹³⁷Cs, attribuables à la remise en suspension d'anciennes contaminations (essais d'armes atomiques des an-

**Figure 1:**

Calcul de la concentration bêta artificielle à l'aide des deux méthodes de compensation.

nées 50 et 60 ainsi que l'accident de Tchernobyl), aucun radionucléide d'origine artificielle, attribuable à l'exploitation des centrales nucléaires, n'a pu être mis en évidence dans ces échantillons. La radioactivité des aérosols collectés au voisinage des centrales nucléaires est ainsi essentiellement d'origine naturelle. En effet, avec des valeurs comprises respectivement entre 1.4 et 5.8 et entre 0.1 et 1.5 mBq/m³, les radionucléides ⁷Be et ²¹⁰Pb sont nettement prépondérants.

RADAIR Réseau automatique de surveillance de l'air

Les modifications apportées en 2011

La nouvelle centrale qui gère la collecte et la gestion des données radiologiques et météorologiques ainsi que les transmissions d'alarmes radiologiques et techniques est achevée. Elle est équipée d'une fenêtre de télémaintenance qui permet la commande manuelle de diverses fonctions de contrôle à distance des moniteurs du réseau. En outre, elle permet l'exportation et le tri des données de tous les moniteurs ainsi que des données météo pour utilisation avec des tableurs ou des logiciels graphiques.

L'application Radair-Web est prévue pour être utilisée dans le domaine public et remplacer le site actuel www.radair.ch. L'utilisateur y trouvera une carte des données actuelles et passées, une information sur l'état technique des moniteurs et pourra afficher les données de chaque moniteur sur une période maximale d'une année.

A titre d'essai, le moniteur de Fribourg est équipé d'un logiciel pilote pour la compensation du facteur α/β . L'expérience a montré que le facteur de compensation avec lequel l'activité β est calculée fluctue quotidiennement et en fonction de la saison. Il est donc difficile de remplacer ce facteur par une valeur constante. L'idée est de faire une moyenne glissante des rapports entre les activités α et les activités β sur les « n » dernières mesures et d'utiliser cette moyenne pour le calcul de la concentration β de la dernière mesure. Le but étant, d'une part d'automatiser la mesure le mieux possible et d'autre part d'améliorer la sensibilité. La figure 1 montre, sur un intervalle de 15 jours, la différence entre les 2 méthodes de compensation.

Principe de mesure

Rappelons que les activités α totales mesurées dans l'environnement sont supposées d'origine naturelle: le gaz radon émanant du sol ainsi que ses produits de filiation.

Des mesures de radon ($^{222}\text{Rn} + ^{220}\text{Rn}$) ont été effectuées en 2011 aux stations de Bellinzona et de Genève, proche des lignes d'aspiration. Les figures 2 et 3 montrent que la contribution des concentrations α mesurées par les moniteurs FHT59S provient bien essentiellement du radon et de ses produits de filiation.

Les moniteurs FHT59S utilisent un algorithme de compensation pour calculer la contribution potentielle d'émetteurs β artificiels à partir de la mesure d' α total et du rapport α/β . Une alarme est déclenchée si la valeur du β artificiel calculé dépasse un seuil prédéfini.

Résultats de mesure

Collecteurs d'aérosols:

Les activités α/β totales, mesurées par les moniteurs RADAIR, peuvent être consultées en temps réel sur Internet, à l'adresse www.radair.ch (mise à jour toutes les 30 min).

La figure 4 montre les concentrations alpha naturelles mensuelles moyennes et maximales relevées en 2011 aux stations de Bâle, de Genève, de Bellinzona et du Weissfluhjoch ainsi que les histogrammes des concentrations bêta artificielles obtenues après compensation.

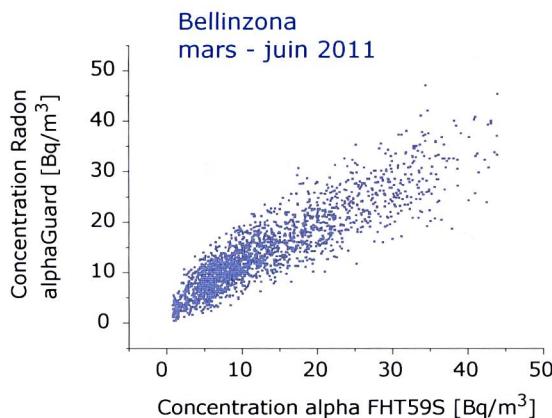


Figure 2:

Comparaison des concentrations alpha mesurées par le moniteur d'aérosols "FHT59S" et un appareil de mesure du Radon "AlphaGuard" (mesures effectuées sur le site de Bellinzona). On remarque une très bonne correspondance pour la période étudiée.

Les concentrations alpha maximales enregistrées dans les différentes stations dépendent de la situation géographique ainsi que de la nature géologique du sol. Pour une station donnée, ces valeurs fluctuent également au cours de l'année, d'un facteur 2 pour les stations de plaine et d'un facteur 5 pour les stations de montagne (cf Figure 4).

Les différences marquées entre concentrations maximales et concentrations moyennes reflètent les importantes fluctuations diurnes-nocturnes de radioactivité naturelle allant de 5 à 90 Bq/m³ suivant les sites (le phénomène d'inversion thermique limite la dispersion verticale du radon et de ses produits de filiation qui s'accumulent alors près du sol durant la nuit). L'automne ayant été relativement sec et ensoleillé, il fut propice aux fortes inversions thermiques, donc à des concentrations α plus élevées que durant le reste de l'année. Notons encore, d'une manière générale, que les concentrations naturelles les plus faibles se rencontrent au printemps où le brassage des masses d'air est plus important.

Plus les fluctuations de radioactivité naturelle sont importantes, plus une contribution supplémentaire d'origine artificielle est difficile à mettre en évidence et donc plus la limite de détection de la concentration bêta artificielle sera élevée. On observe ainsi un rapport d'environ 80 à 150 entre la limite de détection des concentrations β artificielles et les valeurs maximales des concentrations α . La présence irrégulière du radon et de ses produits de filiation sur le sol suisse est ainsi responsable des différences notables observées en fonction des sites dans les limites de détection de la radioacti-

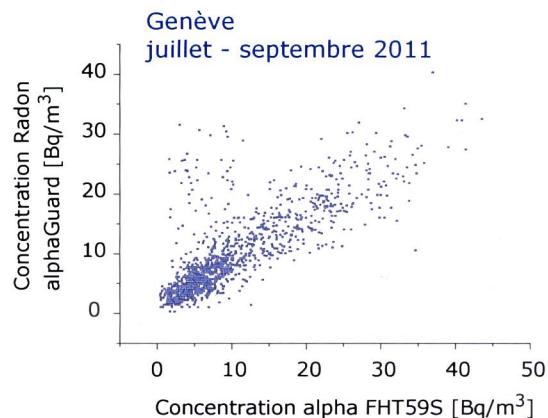
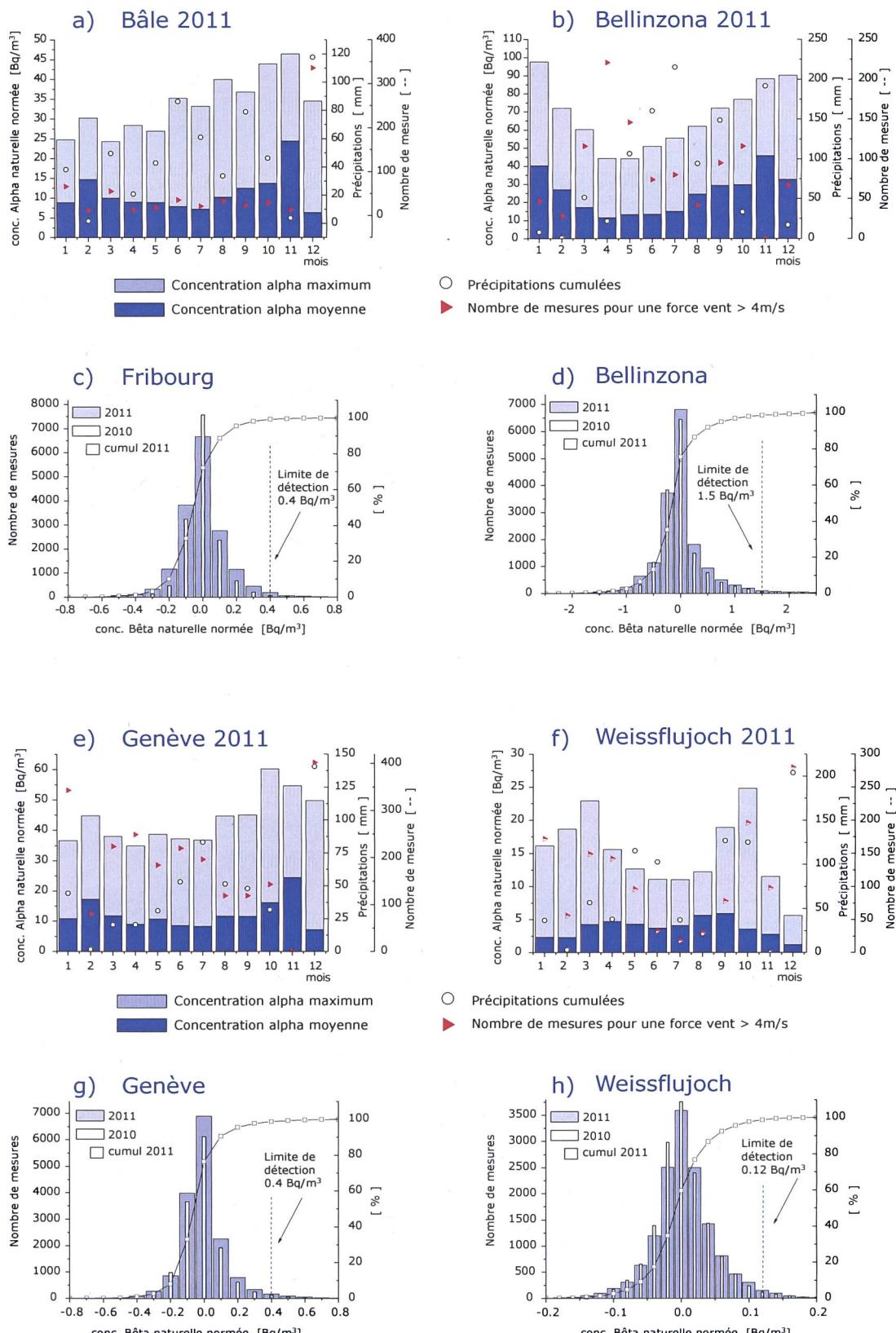


Figure 3:

Comparaison des concentrations alpha mesurées par le moniteur d'aérosols "FHT59S" et un appareil de mesure du Radon "AlphaGuard" (mesures effectuées sur les sites de Genève). On remarque un nuage de points avec des concentrations élevées en radon mais des concentrations faibles en α . Cette configuration correspond à une situation suivant un épisode de précipitations. Ces pluies lessivent les produits de filiation attachés à des particules mais ne changent pas les concentrations du radon (gaz noble).

**Figure 4 :**

Les graphiques a), b), e) et f) montrent les concentrations alpha totales (d'origine naturelle) mensuelles moyennes et maximales et les précipitations mensuelles moyennes ainsi que la densité des vents enregistrés en 2011 aux stations de Bâle, Genève, Bellinzone et Weissfluhjoch. Les graphiques c), d), g) et h) représentent les histogrammes des concentrations bêta artificielles compensées obtenus en 2010 et 2011 à ces mêmes stations.

vité β d'origine artificielle. Les histogrammes de la concentration bêta (Figure 4 c, d, g et h) montrent ces limites. Malgré un bon suivi de la compensation, les incidents de radioactivités plus petits que 0.4 à 1.5 Bq/m³ ne sont pas décelables par les moniteurs situés en plaine. Cette limite s'abaisse à 0.2 Bq/m³ pour les stations d'altitude.

De manière générale, les histogrammes des concentrations β artificielles moyennes normées enregistrés en 2010 et en 2011 montrent que les limites de détection sont restées sensiblement les mêmes pour ces deux années. Pour les stations de plaine, la forte fluctuation diurne-nocturne contraint à avoir un facteur de compensation sensiblement plus bas afin d'éviter les pics de mesures de la radioactivité β d'origine naturelle ; l'histogramme est alors décentré vers les valeurs négatives.

Notons pour terminer qu'aucune activité β d'origine artificielle supérieure à la limite de détection n'a été enregistrée par les collecteurs α/β en 2011. Suite à l'accident de Fukushima, les concentrations β de l'iode particulaire (attaché aux aérosols) ainsi que des isotopes du césum furent trop faibles pour être décelées par ce type de moniteur.

Collecteur de Iode-131 :

Au mois d'avril, les moniteurs de Bellinzona, de Fribourg, de Meyrin et du PSI mesurant l'iode gazeux (¹³¹I) ont décelé des activités légèrement supérieures aux valeurs usuelles, de l'ordre de 1 Bq par cartouche suite à l'accident de Fukushima.

Durant le prélèvement, l'iode gazeux se combine chimiquement avec les granules de nitrate d'argent et s'accumule dans la cartouche de collecte du moniteur. Avec deux points par jour, la figure 5 montre

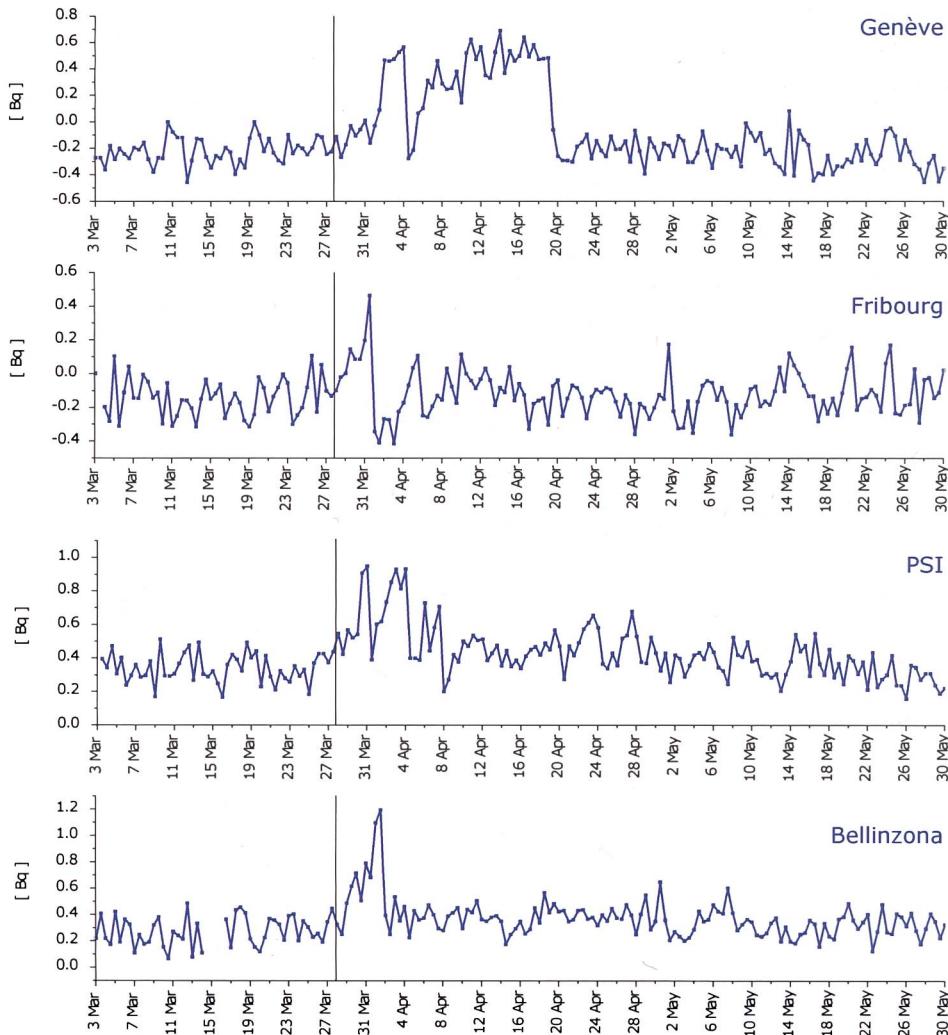


Figure 5:

Activités moyennes (sur 12 heures) du ¹³¹I accumulées dans les cartouches de nitrate d'argent et mesurées sur site par les scintillateurs des moniteurs du réseau RADAIR-iode de Bellinzona, Fribourg, Genève et PSI entre début mars et fin mai.

l'arrivée de l'iode gazeux au niveau du sol le 27 mars. Les granules de chaque station ont été mesurés en laboratoire (voir également chapitre 4.1). Les brusques descentes de l'activité correspondent au renouvellement des granules. Avec la dilution dans l'air et la courte demi-vie de l'¹³¹I (8 jours), au mois de mai l'activité n'était plus mesurable par ces moniteurs.

Moniteur spectroscopique γ :

Suite au dégât sur le disque dur et à la perte du programme de commande de l'automate, le moniteur de spectroscopie γ (FHT59N) a été réparé en avril. La figure 6 montre les concentrations journalières du ²¹⁴Pb et du ²¹⁴Bi en parallèle avec les concentrations α journalières du collecteur d'aérosols pour la même période. Les concentrations des autres nucléides naturels ²⁰⁸Tl, ²¹²Pb et ²¹²Bi sont visibles, mais négligeables. La contribution principale des α mesurés avec les collecteurs d'aérosols provient de la chaîne de désintégration de l'²³⁸U.

Les pannes:

Grâce à un entretien suivi, le taux de bon fonctionnement des moniteurs s'est situé en 2011 entre 85 et 97% suivant les stations pour les collecteurs d'aérosols et entre 93 à 98% pour les moniteurs d'iode pour lesquels les pannes mécaniques sont inexistantes. D'une manière générale, les pannes les plus courantes ont été, dans l'ordre de fréquence: des problèmes de réglage de l'embrayage de la bobine tractrice, le positionnement incorrect des filtres lors du changement de ces derniers, des pannes de climatisation des locaux, quelques courtes pannes de secteur et un défaut d'une carte électronique dans la chaîne de mesure.

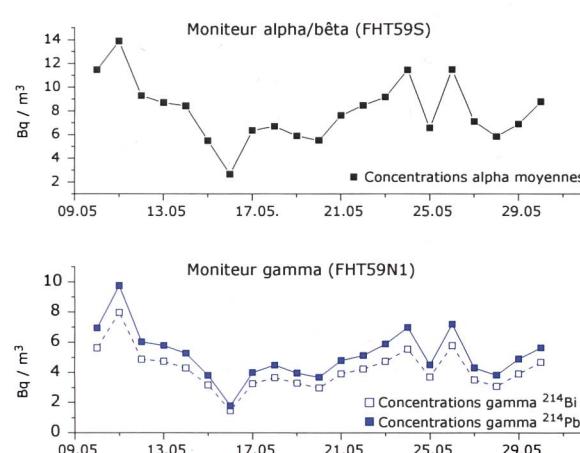


Figure 6:

Comparaison entre les concentrations alpha totales du moniteur d'aérosols FHT59S et les concentrations gamma des radionucléides naturels mesurées par le moniteur spectroscopique FHT59N. Les deux moniteurs étaient à Fribourg, sur le même site.

Précipitations

Mesure des émetteurs gamma

En 2011, des échantillons de pluie ont été collectés en continu aux environs des centrales nucléaires de Mühleberg, Leibstadt, Gösgen-Däniken et Beznau, au voisinage du PSI ainsi qu'à Cernier/NE, à Davos/GR et à Göttingen/TG pour l'analyse mensuelle des émetteurs gamma. Les pluviomètres situés à Fribourg et à Locarno-Monti/TI ont été déplacés en cours d'années, respectivement à Posieux/FR et à Cadenazzo/TI (stations de référence).

L'¹³¹I, le ¹³⁴Cs et le ¹³⁷Cs provenant de l'accident de Fukushima ont pu être détectés dans certains échantillons de précipitations des mois de mars à mai (concentrations maximales de 40 mBq/l en mars pour l'¹³¹I et de respectivement 10.3 et 9.4 mBq/l pour le ¹³⁴Cs et le ¹³⁷Cs en avril). En dehors de cette période et à l'exception de traces sporadiques de ¹³⁷Cs provenant de l'accident de Tchernobyl, aucun émetteur gamma d'origine artificielle n'a été détecté dans les précipitations au cours de l'année 2011. Des valeurs comprises entre 0.1 et 1.8 Bq/l ont été mesurées pour le ⁷Be naturel.

Mesure du tritium

L'Université de Berne a cessé, fin 2010, les mesures du tritium à très bas niveau. En effet, les investissements importants auxquels il aurait fallu procéder pour renouveler le système de mesure couplés aux réductions en personnel ont rendu cette activité nettement déficitaire. Le suivi du tritium à très bas niveau dans les échantillons de précipitations de Meiringen et du Grimsel dans l'Oberland Bernois, de Nyon et La Brévine en Suisse romande et de Locarno et Pontresina au Sud des Alpes s'est donc arrêté fin 2010. Pour compenser en partie cette réduction, l'OFSP analysera dès 2012 les concentrations en tritium dans les échantillons de précipitations des stations de référence de Cadenazzo/TI et de Göttingen/TG en plus de ceux de la station de Fribourg/Posieux, qu'il suit depuis de nombreuses années. Pour cette station de référence, les teneurs en tritium enregistrées en 2011 n'ont que rarement été supérieures à la limite de détection de 2 Bq/l et ont atteint, au maximum, 2.7 ± 0.7 Bq/l.

L'OFSP mesure le ³H dans les précipitations du voisinage des centrales nucléaires de Mühleberg, Gösgen et Leibstadt. Le PSI analyse chaque mois les échantillons de pluie du voisinage du PSI, du ZWILAG ainsi que de la centrale nucléaire de Beznau. Les concentrations mensuelles de ³H enregistrées en 2011 dans les pluies du voisinage des centrales nucléaires de Mühleberg, de Gösgen et de Leibstadt sont restées proches de celles enregistrées dans les pluies de la Suisse romande.

gistrées dans les stations de référence situées hors influence de ces installations, avec des concentrations maximales de 3 - 4 Bq/l. A proximité de Beznau, du PSI et du ZWILAG, les concentrations sont généralement restées proches du seuil de détection de 1 à 2 Bq/l avec ponctuellement des valeurs légèrement plus élevées (valeur maximale de 35 Bq/l enregistrée au voisinage du PSI). Ces valeurs sont cependant très inférieures aux valeurs limites autorisées (voir Chapitre 8.6).

La surveillance des entreprises utilisatrices de tritium s'est poursuivie comme par le passé. Les concentrations de tritium mesurées dans les échantillons de précipitations prélevés au voisinage de l'entreprise RC-Tritec à Teufen/AR ont nettement diminué par rapport aux années précédentes. Celles enregistrées près de l'entreprise mb-Microtec à Niederwangen/BE sont, en revanche, restées stables. Avec une concentration de 2'100 Bq/l, c'est dans la station située à proximité immédiate de cette entreprise (station "Firma") qu'a été enregistrée la plus forte teneur en tritium dans un échantillon de précipitations au premier semestre 2011. Cette valeur représente environ 17.5 % de la valeur limite d'immissions fixée dans l'ordonnance sur la radioprotection pour les eaux accessibles au public. Les résultats des mesures du tritium dans les précipitations au voisinage des industries utilisatrices de tritium sont détaillés au Chapitre 9.3.

Notons encore que malgré la disparition totale des ateliers de posage spécialisés dans l'application de peintures luminescentes à base de tritium dans la région de La Chaux-de-Fonds depuis 2008, la surveillance du tritium dans les précipitations a été maintenue. Les résultats des mesures ont montré que les concentrations en ^3H dans ces échantillons sont généralement restées inférieures à 2 Bq/l, avec une valeur plus élevée (32 Bq/l) en juin.

Conclusions

Les différents réseaux de surveillance de la radioactivité dans l'air, exploités par l'OFSP, ont parfaitement rempli leur rôle en 2011. La mesure des filtres aérosols des collecteurs à haut débit a permis de déceler les retombées (^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs) de l'accident survenu dans la centrale nucléaire japonaise de Fukushima Dai-ichi sur le territoire suisse dès la fin mars, traces qui n'ont pu être détectées par les réseaux de mesure automatiques. Même si les concentrations maximales enregistrées sont restées nettement inférieures aux limites légales, l'expérience a montré qu'il était indispensable de disposer d'un réseau d'une très grande sensibilité, permettant de mesurer les niveaux réels de radioactivité dans l'environnement afin de pouvoir informer de manière transparente la population et les instances publiques.

Bien que les concentrations en radionucléides bêta soient restées inférieures à la limite de détection des moniteurs alpha-beta du réseau RADAIR, les cartouches de nitrate d'argent du réseau RADAIR iodé, mesurées en laboratoire, ont permis l'évaluation de la fraction de ^{131}I présent dans l'air sous forme gazeuse suite à l'accident de Fukushima.

En dehors de la période fin mars-fin mai, les résultats de la surveillance de la radioactivité dans l'air et les précipitations obtenus en 2011 sont restés conformes à ceux des années précédentes et ont montré la prédominance de la radioactivité naturelle dans ces compartiments environnementaux.

4.3 Überwachung der Radioaktivität der Luft mit Militärflugzeugen

M. Müller, S. Estier

Sektion Umweltradioaktivität, URA / BAG, 3003 BERN

Zusammenfassung

Mittels zwei an Militärflugzeugen montierten Sammelgeräten werden in 8'000 bis 12'000 m Höhe Luftproben erhoben. Im Falle eines Ereignisses mit Radioaktivitätsfreisetzung kann somit im Idealfall der Nuklidzusammensetzung bereits bestimmt werden, bevor sich die Radioaktivität auf Boden und Pflanzen absetzt. Das Einsatzkonzept sieht im Normalfall 6 Flüge pro Jahr vor, im Ereignisfall können nach Absprache zusätzliche Sammelflüge durchgeführt werden.

Vorgeschiede

In den 60er-Jahren wurden von den Grossmächten (USA, Grossbritannien, der damaligen UdSSR, später auch von Frankreich und China) zahlreiche Kernwaffenversuche (zuerst A-Bomben später auch H-Bomben) in der Atmosphäre durchgeführt. Diese führten zu einem deutlichen Anstieg der künstlichen Radioaktivität in Luft und Niederschlägen und als Folge davon auch in Boden, Pflanzen und Nahrungsmitteln. Die damalige KUER (Eidg. Kommission zur Überwachung der Radioaktivität) wurde deshalb in den 50er-Jahren vom Bundesrat beauftragt, ein Überwachungsnetz für die Radioaktivität von Luft und Niederschlägen aufzubauen, um Behörden und Bevölkerung laufend über die Umweltradioaktivität und die daraus resultierenden Strahlendosen informieren zu können.

Bei Kernwaffenexplosionen sowie auch bei Unfällen in Kernanlagen erfolgt die Freisetzung der Radioaktivität in die Atmosphäre, und die radioaktive Wolke wird je nach Art der Freisetzung in einer gewissen

Höhe mit dem Wind verfrachtet.

Im Ernstfall (d.h. bei einem Kernwaffeneinsatz oder einem schweren Kernkraftwerk-Unfall) müssen die Einsatzorgane rasch über allfällige Schutzmassnahmen für die Bevölkerung entscheiden können. Es ist deshalb notwendig, Zusammensetzung (Nuklidvektor), Ausmass und Lage einer solchen radioaktiven Wolke möglichst frühzeitig zu erfassen, bevor sich deren Radioaktivität auf Boden und Pflanzen ablagert. Dies führte dazu, dass in den 60er-Jahren in Zusammenarbeit der KUER mit den damaligen Flugzeugwerken Emmen Sammelgeräte entwickelt und im Windkanal kalibriert wurden, welche ermöglichten, mittels Militärflugzeugen Luftproben (Aerosole) aus 8'000 bis 12'000 m Höhe zu sammeln um hernach deren Radioaktivität im Labor mittels Gamma-Spektrometrie quantitativ und qualitativ zu analysieren. Ebenfalls ab Mitte der 60er-Jahre wurden am Physikinstitut der Universität Freiburg die ersten Ge(Li)-Detektoren in Betrieb genommen, die vom Labor der KUER für die Analyse von Luftfiltern benutzt werden konnten.

Ab dem Jahr 2000 war ein Einsatz mit den Sammelgeräten der ersten Generation nicht mehr möglich, da die Tiger-Flugzeuge über eine andere Aufhängevorrichtung verfügen; zudem zeigte sich auch, dass die seit rund 30 Jahren eingesetzten Geräte einer Überholung bedurften. Mit dieser Erneuerung und Anpassung sowie der erneuten Flugzulassung wurde RUAG Aerospace (die Nachfolgerin der Flugzeugwerke Emmen beauftragt. Seit 2004 sind die Geräte wieder einsatzbereit und flugerprobt.

Sammlung der Proben

Die Probenahme der Aerosolpartikel erfolgt mit Sammelaggregaten, die unter dem Flügel eines Tigers F-5F/E befestigt werden. Der Lufteinlass kann vom Piloten geöffnet und geschlossen werden, was eine Probenahme unter vorgewählten Bedingungen (bzgl. Flughöhe, Flugroute, Dauer, Geschwindigkeit) ermöglicht. Die Geräte wurden im Windkanal kalibriert, sodass bei bekannter Flughöhe, Geschwindigkeit und Flugdauer die Anzahl gesammelter Kilogramm Luft ermittelt werden kann.

Die Flughöhe kann vom Auftraggeber gewählt werden, je nachdem, ob bei einem Ereignis die radioaktive Wolke bis in die Stratosphäre aufsteigt. Im Normalfall sind 6 Sammelflüge pro Jahr vorgesehen, wobei seit Anfangs 2010 Hin- und Rückflug abwechselungsweise über resp. unter der Tropopause erfolgen. Die Höhe der Tropopause wird täglich mit einem Ballonflug durch MeteoSchweiz in Payerne ermittelt.

Die Fluggeschwindigkeit beträgt normalerweise etwa 0.8 Mach. Bei einer durchschnittlichen Flugdauer von 20 bis 30 Minuten liegt die gesammelte Luftmenge somit zwischen 2'000 und 4'000 kg.

Als Filtermaterial wird ein Zellulosefilter (Sorte 0048, Art. Nr. 348987) von Whatman mit den Dimensionen 555 x 526 mm verwendet. Für die Mes-

sungen wird der Filter halbiert und eine Hälfte mit einer hydraulischen Presse mit 25 Tonnen zu einer Tablette von 63 mm Durchmesser und ca. 10 mm Dicke gepresst. Die andere Hälfte dient als Rückstellprobe sowie gegebenenfalls für weitere Analysen.

Der Vorteil dieses Überwachungsverfahrens ist der erhebliche Zeitgewinn im Falle eines Ereignisses mit einer Radioaktivitätsfreisetzung, indem der Nuklidvektor bereits bestimmt werden kann, bevor sich die Radioaktivität aus der Luft auf Boden und Pflanzen abgesetzt hat.

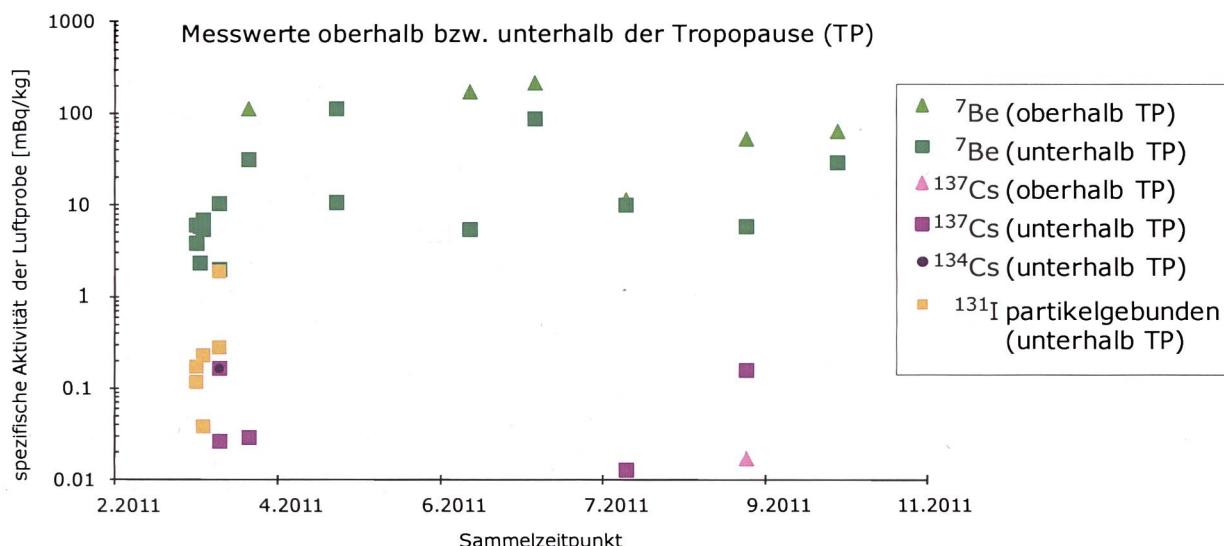
Messung der Proben

Die Messung erfolgt im Labor mittels hochauflösender Gammaspektrometrie, wo nach 1-2 Tage Messzeit für ^{137}Cs eine Nachweisgrenze von 10 - 50 $\mu\text{Bq}/\text{kg}$ Luft erreicht wird. Anschliessend können an den Filtern weitere Untersuchungen, z.B. radiochemischer oder massenspektrometrischer Art durchgeführt werden.

Infolge des Reaktorunfalls Fukushima (Japan) im Frühling 2011 wurden zusätzliche Sammelflüge in einer Höhe von 5-8 km durchgeführt. Wie in Figur 3 ersichtlich wurde dabei eine erhöhte ^{131}Iod -Konzentrationen gemessen.



Figur 1 & 2:
Höhenluftfilter-Aggregate montiert an den beiden Flügeln
eines Tiger sowie Detail-Aufnahme eines Sammelgerätes.



Figur 3:
 ${}^7\text{Be}$ - , ${}^{134}\text{Cs}$ - , ${}^{137}\text{Cs}$ - und partikelgebundene ${}^{131}\text{I}$ - Messwerte in mBq/kg Luft im Jahr 2011.

Der höchste Wert von 1.89 mBq/kg stammt vom 30. März 2011, wobei infolge meteorologischen Einflüssen und der relativ kurzen Halbwertszeit von 8 Tagen das Radionuklid eine gute Woche später bereits nicht mehr nachgewiesen werden konnte. Die gemessenen Werte sind im Bezug zum Immissionsgrenzwert¹⁾ von 2'700 mBq/m³ gering. Für einen direkten Vergleich müsste jedoch noch berücksichtigt werden, dass in diesem Fall nur das partikelgebundene Iod gemessen wird (ca. 1/5 der gesamten Iod-Konzentration). Die geschätzte maximale Iod-Konzentration - auf Normaldruck gerechnet - lag somit bei ca. 10 mBq/m³.

Die ${}^{137}\text{Cs}$ -Werte, welche in Bodennähe nach dem 11. März deutlich über dem Jahresdurchschnitt lagen, sind dagegen in mehreren Kilometern Höhe vom vom Bombenfallout stammenden ${}^{137}\text{Cs}$ kaum zu unterscheiden. Im Gegensatz dazu lässt sich das gemessene ${}^{134}\text{Cs}$ eindeutig dem Reaktorunfall in Japan zuordnen, da dieses Nuklid ansonst in der Atmosphäre nicht vorkommt.

Andere künstliche Radionuklide konnten im Berichtsjahr nicht nachgewiesen werden.

Quellen:

- 1) Immissionsgrenzwerte für Radionuklide in der Luft im öffentlich zugänglichen Bereich gemäss Art. 102 der Schweizer Strahlenschutzverordnung (StSV).

4.4

Radioaktivität in aquatischen Systemen

J. Beer, M. Fujak, S. Bollhalder

Eawag, Abteilung Surf/RT, 8600 Dübendorf

M. Zehringen

Kantonales Laboratorium Basel-Stadt, Postfach, 4012 Basel

Zusammenfassung

In den monatlichen Wasserproben von Aare und Rhein wurden hauptsächlich ^{58}Co , ^{60}Co und ^{54}Mn vom Kernkraftwerk Mühleberg, aber auch ^{137}Cs vom Tschernobylunfall nachgewiesen. Als Folge der in den letzten Jahren erfolgten Reduktionen der Abgaben von ^{58}Co und ^{60}Co durch das KKW Beznau lagen die Konzentrationen in den Wasserproben von Klingnau und Pratteln häufig unter der Nachweisgrenze. In Fischen waren keine künstlichen Radionuklide nachweisbar, in Wasserpflanzen ^{40}K und geringe Spuren von ^{58}Co , ^{60}Co , ^{54}Mn und ^{137}Cs und überraschenderweise auch mehrfach ^{131}I . Messungen im Grundwasser der Pumpstationen Aarberg, Döttingen und Pratteln ergaben keine Hinweise auf infiltrierte künstliche Radionuklide. Im Abwasser der ARA Werdhölzli in Zürich konnten keine Spuren künstlicher Radionuklide gefunden werden. Drei Monatsproben aus der Rauchgas-Waschanlage der Kehrichtverbrennungsanlage Hagenholz zeigten Spuren von ^{137}Cs und fünf Proben enthielten Spuren von ^{131}I ($<3 \text{ Bq/L}$). Insgesamt führten die gefundenen Aktivitäten in aquatischen Systemen zu keiner messbaren Erhöhung der Strahlenbelastung.

Methoden

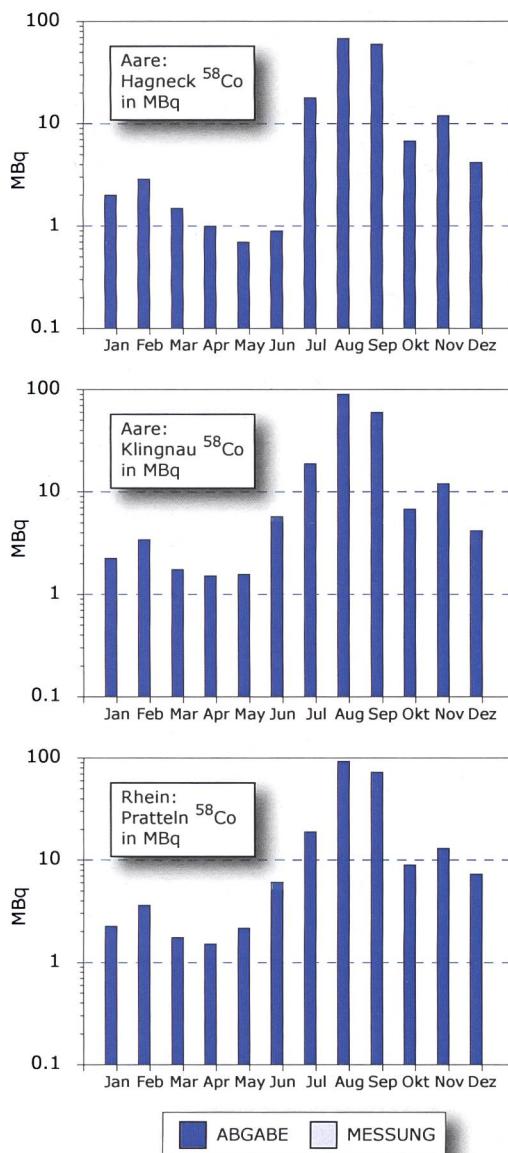
Die Aktivitäten aller an der Eawag gemessenen Radionuklide werden mittels Gammaspektrometrie bestimmt. Sedimente, Fisch- und Pflanzenproben werden gefriergetrocknet und die Aktivität auf das Trockengewicht bezogen. In den grossvolumigen monatlichen Sammelproben von Hagneck, Klingnau und Pratteln werden die Radionuklide durch eine Eisenhydroxidfällung aufkonzentriert und gemessen. Entsprechend dem jeweiligen Abfluss werden pro Tag automatisch zwischen 20 und 40 Proben genommen, was über einen Monat eine Gesamtprobe zwischen 50 und 200 Liter ergibt. Die mittleren Abflussmengen der drei Stationen waren 2011 bei Hagneck ca. $130 \text{ m}^3/\text{s}$, bei Klingnau ca. $380 \text{ m}^3/\text{s}$ und bei Pratteln ca. $800 \text{ m}^3/\text{s}$. Die Nachweisgrenzen für ^{58}Co , ^{60}Co , ^{54}Mn und ^{137}Cs liegen je nach Wasserführung des Flusses bei $50 - 100 \text{ MBq}$ un Hagneck, bei $100 - 300 \text{ MBq}$ in Klingnau und bei $500 - 1'000 \text{ MBq}$ in Pratteln.

Die Rheinproben von Diepoldsau und Rekingen werden direkt gemessen. Dasselbe gilt für die Wasserproben aus Rhone und Ticino, die von der Sektion Umweltradioaktivität (URA) auf Gammaaktivität überwacht werden. Die Bestimmung der Tritiumaktivität wird ab 2003 durch die Sektion URA und die Bundesanstalt für Gewässerkunde in Koblenz/D durchgeführt. Das Kantonale Labor Basel Stadt macht tägliche Tritiummessungen von Proben aus der Rheinüberwachungsstation Weil.

Bei den Probenahmestellen Hagneck, Klingnau und Pratteln sammelt die Eawag monatliche Schwebestoffproben in Sedimentfallen. Die Schwebestoffe im Rhein wurden zusätzlich bei der Rheinüberwachungsstation in Weil unterhalb von Basel beprobt und vom kantonalen Labor Basel Stadt gemessen.

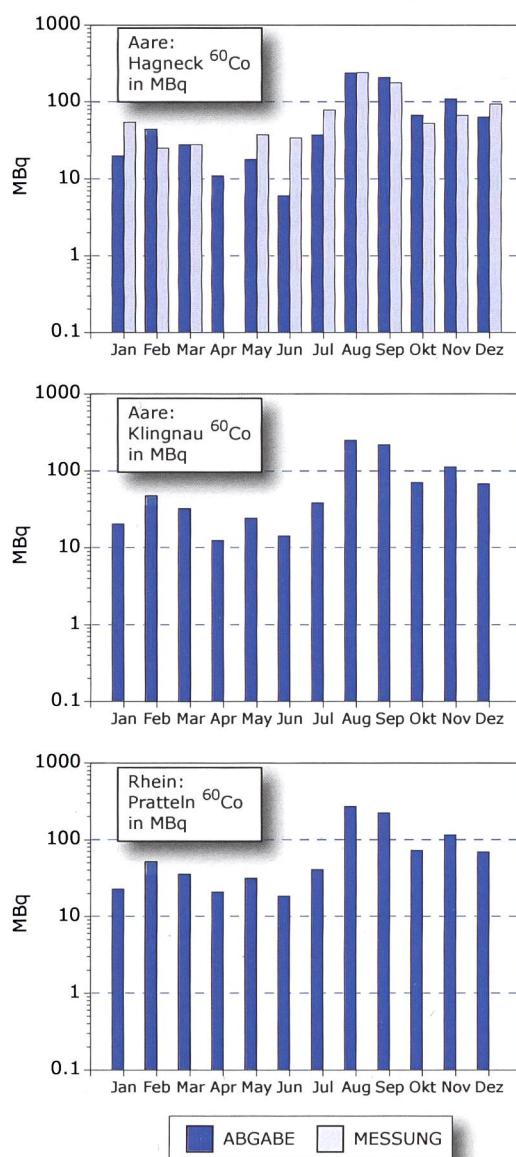
Wasserproben

Die Abgaben der Kernkraftwerke werden mittels abflussproportionalen monatlichen Wasserproben an drei Standorten entlang von Aare und Rhein überwacht. 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.



Figur 1:
 ^{58}Co -Aktivitäten an den drei Probenahmestationen Hagneck, Klingnau und Pratteln. Die Abgaben (blau) zeigen, dass Total der flussaufwärts liegenden Kernkraftwerke und erfolgten vor allem während der Revisionen in den Sommermonaten. Sie sind so gering, dass sie durch die Messungen des Flusswassers nicht mehr nachgewiesen werden konnten. ^{58}Co stammt zum grössten Teil von Mühleberg und Beznau.

Die Figuren 1 bis 4 zeigen jeweils für die drei erwähnten Probenahmestationen die total von den flussaufwärts liegenden Kernkraftwerken abgegebenen Aktivitäten von ^{58}Co , ^{60}Co , ^{137}Cs und ^{54}Mn zusammen mit den aufgrund der Messungen ermittelten Aktivitäten (gemessene spezifische Aktivität x mittlerer monatlicher Abfluss x Dauer der Sammelperiode).

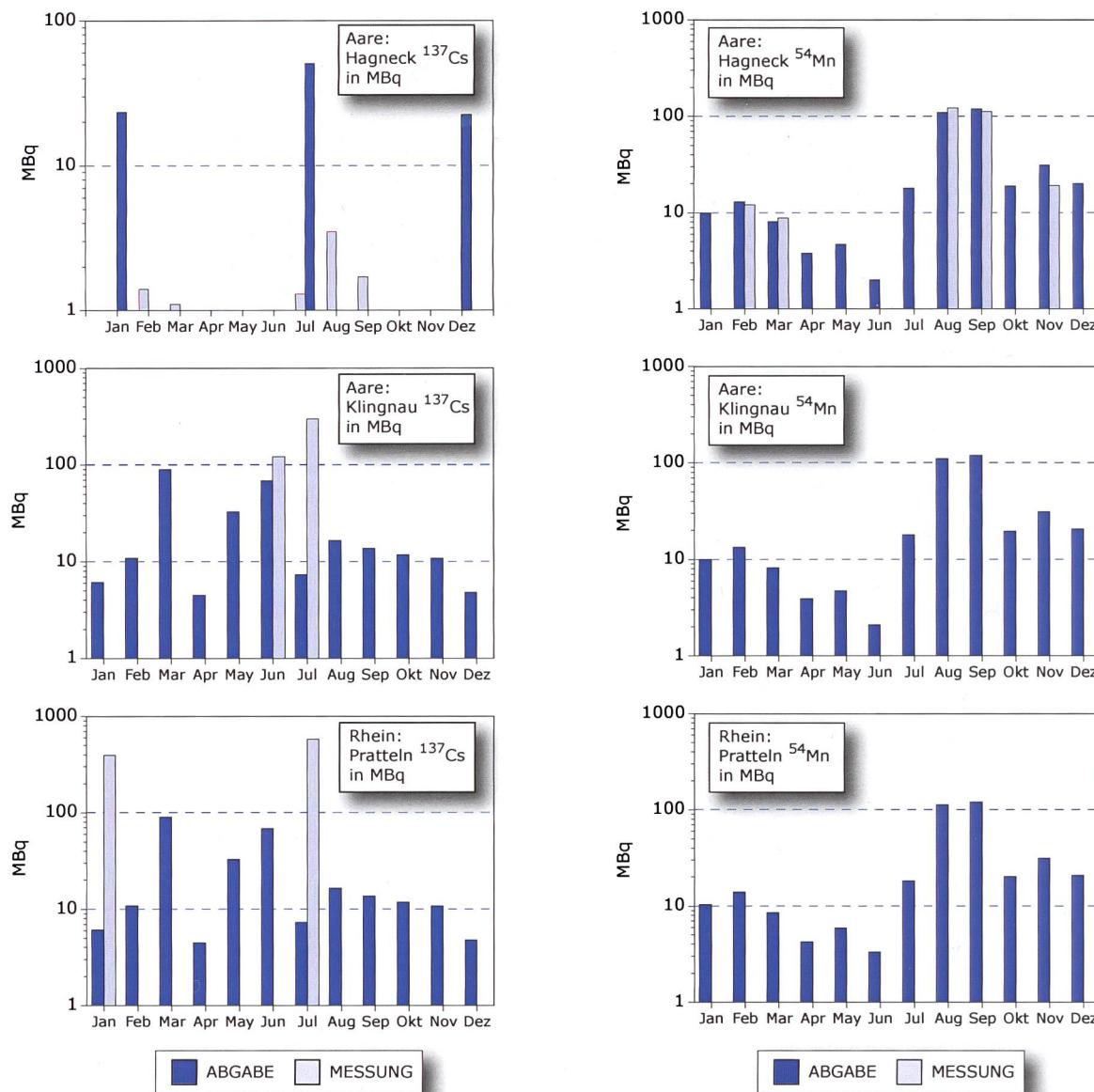


Figur 2:
 ^{60}Co -Aktivitäten an den drei Probenahmestationen Hagneck, Klingnau und Pratteln. Die Abgaben stammen vor allem von Mühleberg. Die grössten Abgaben erfolgten im August und September während der Revision des KKW's Mühleberg. Die Messungen bei Hagneck stimmen gut mit den Abgaben von Mühleberg überein. Bei den folgenden Probenahmestellen liegen alle Messwerte unter der Nachweisgrenze.

Das meiste ^{58}Co , ^{60}Co und ^{54}Mn stammt aus dem Kernkraftwerk Mühleberg. Die grössten Abgaben erfolgten im August und September während der Revision. Diese stimmen mit den Messungen bei Hagneck gut überein. Da sich die chemisch reaktiven Radionuklide zum Teil an Partikel anlagern und im Bielersee und den Flüssen Aare und Rhein sedimentieren sowie als Folge von Verdünnung durch Zuflüsse liegen die Messwerte bei Klingnau und

Pratteln meist unter der Nachweisgrenze von ca. 100 MBq.

Im Falle von ^{137}Cs (Fig. 3) liegen viele Messungen über den Abgaben. Dieses Phänomen, das auch in früheren Jahren beobachtet wurde, ist auf die Remobilisierung von ^{137}Cs vom Tschernobyl-Unfall zurückzuführen und überwiegt die Abgaben.

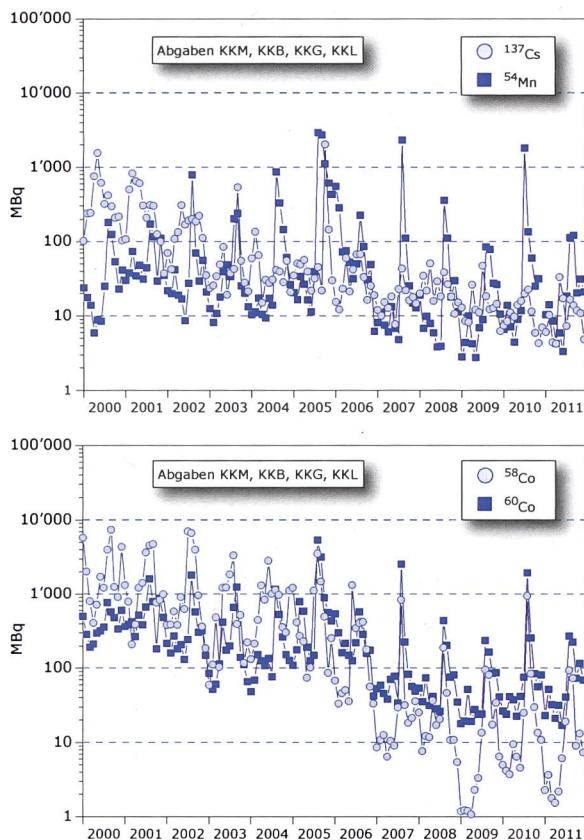


Figur 3:
 ^{137}Cs -Aktivitäten an den drei Probenahmestationen Hagneck, Klingnau und Pratteln. Der Vergleich der Messwerte mit den Abgaben zeigt, dass ^{137}Cs zum grössten Teil vom Tschernobylunfall und nicht aus den Kernkraftwerken stammt.

Figur 4:
 ^{54}Mn -Aktivitäten an den drei Probenahmestationen Hagneck, Klingnau und Pratteln. Die Abgaben stammen vor allem von Mühleberg während der Revision im Herbst und stimmen gut mit den Messungen überein. Bei den Stationen Klingnau und Pratteln liegen die ^{54}Mn Aktivitäten unter der Nachweisgrenze.

Ausser den in den Figuren dargestellten Radionukliden wurden keine weiteren gammaaktive künstliche Radionuklide nachgewiesen, wohl aber natürliche wie ^{7}Be , ^{40}K und ^{210}Pb .

Beim Tritium zeigten die Wasserproben aus der Aare oberhalb des Kernkraftwerkes Mühleberg tiefe Aktivitäten von 2 Bq/l ^{3}H oder weniger. Die Tritiumaktivitäten in den Monatsproben von der Aare bei Brugg/AG und vom Rhein bei Weil, unterhalb Basel, sind ebenfalls unter 2 Bq/l geblieben mit Ausnahme der Monate April bis Juni. In dieser Zeit gab das Kernkraftwerk Gösgen, wie jedes Jahr, Tritium-haltiges Wasser ab, was zu leicht erhöhten Tritiumkonzentrationen im Flusswasser führte (siehe Figur 11 sowie Kapitel 8.6).



Figur 5:
Monatliche Abgaben von ^{137}Cs und ^{54}Mn (oben) und ^{60}Co und ^{58}Co (unten) aller KKW's seit dem Jahr 2000.

Jahresgesamtbilanz Pratteln ^{58}Co und ^{60}Co

Tabelle 1 und 2 zeigen einen Vergleich zwischen den total von allen KKW's abgegebenen ^{58}Co und ^{60}Co Aktivitäten mit den aufgrund der Messungen in Pratteln hochgerechneten Aktivitäten, welche die Schweiz im Rhein verlassen haben. Mit Ausnahme des Jahres 2009, das nur aufgrund der Julidaten hochgerechnet wurde, zeigt die Bilanz, dass im allgemeinen rund 50% der Aktivitäten die Schweiz verlassen. Allerdings können in den letzten Jahren als Folge der deutlich geringeren Abgaben und der damit verbundenen Unterschreitung der Nachweisgrenze nur noch obere Grenzwerte angegeben werden.

Tabelle 1:

Vergleich der totalen jährlichen Abgaben von ^{58}Co mit den im Rhein bei Pratteln gemessenen Aktivitäten in GBq. M/A zeigt das Verhältnis zwischen Messung (M) und Abgabe (A), das unter 1 liegen sollte.

Jahr	Abgabe (GBq)	Messung (GBq)	M/A
2001	20.7	13.2	0.6
2002	22.3	13.3	0.6
2003	9.6	4.2	0.4
2004	10.6	4.3	0.4
2005	9.2	10.2	1.1
2006	3.0	1.0	0.3
2007	1.0	< 1.0	< 1.0
2008	0.4	< 0.1	< 0.3
2009	0.3	< 0.2	< 0.7
2010	1.1	< 0.1	< 1.0
2011	0.2	< 1.1	< 4.7
mittel	7.1	< 4.5	< 1.0

Tabelle 2:

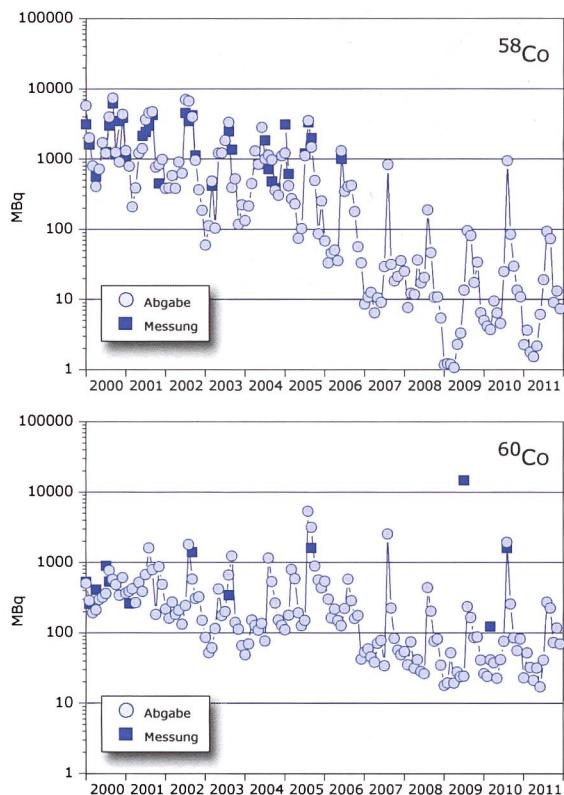
Vergleich zwischen den total von allen KKW's abgegebenen ^{60}Co Aktivitäten mit den Messungen in Pratteln.

Jahr	Abgabe (GBq)	Messung (GBq)	M/A
2001	6.9	0.3	0.04
2002	4.6	1.4	0.30
2003	3.3	0.3	0.10
2004	2.9	< 0.1	< 0.1
2005	12.4	1.6	0.13
2006	2.9	0.4	0.14
2007	3.3	< 0.1	< 0.1
2008	1.1	< 0.1	< 0.1
2009	0.8	14*	
2010	2.7	1.7	0.62
2011	1.0	< 0.1	< 0.1
mittel	3.8	< 1.8	< 0.1

* Dieser Wert beruht auf dem Monat Juli, der durch ein starkes Hochwasser ausgezeichnet war

Jahresgesamtbilanzen aller KKW's

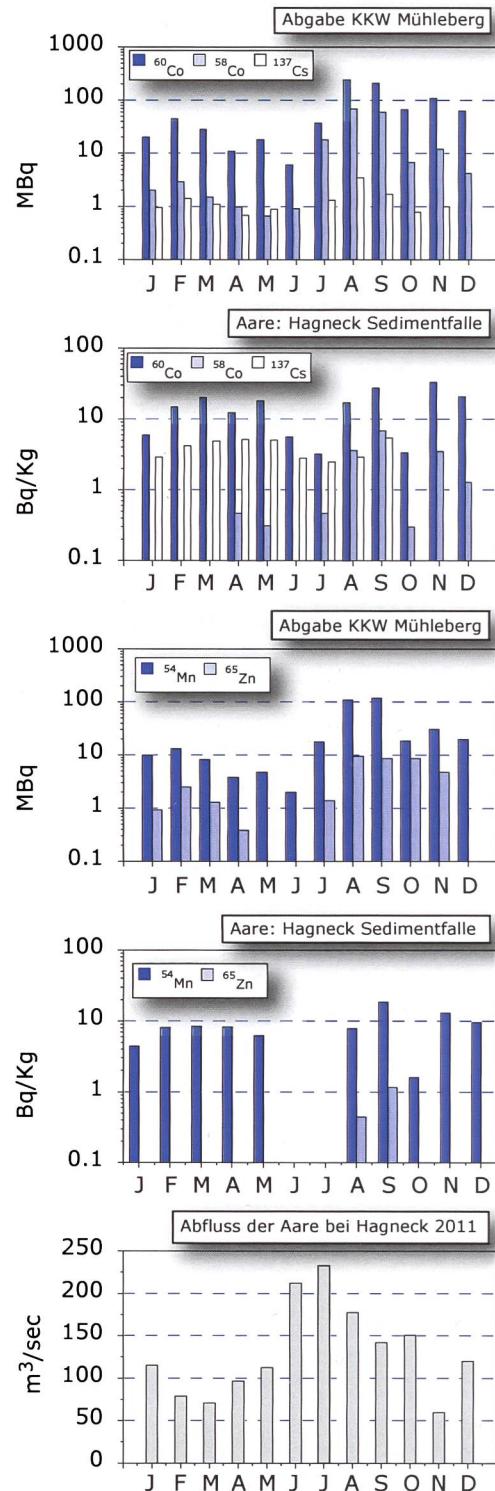
Figur 5 zeigt die gesamten monatlichen Abgaben aller KKW's seit dem Jahr 2000. Als Folge der Revisionen sind die Abgaben jeweils im Sommer am höchsten. Generell ist eine deutliche Abnahme zu beobachten, vor allem zwischen 2006 und 2007. In Figur 6 sind die Abgaben der Co-Isotope zusammen mit den im Flusswasser gemessenen Werten dargestellt. Die tieferen Abgaben der letzten Jahre konnten mit den Messungen oft nicht mehr erfasst werden.



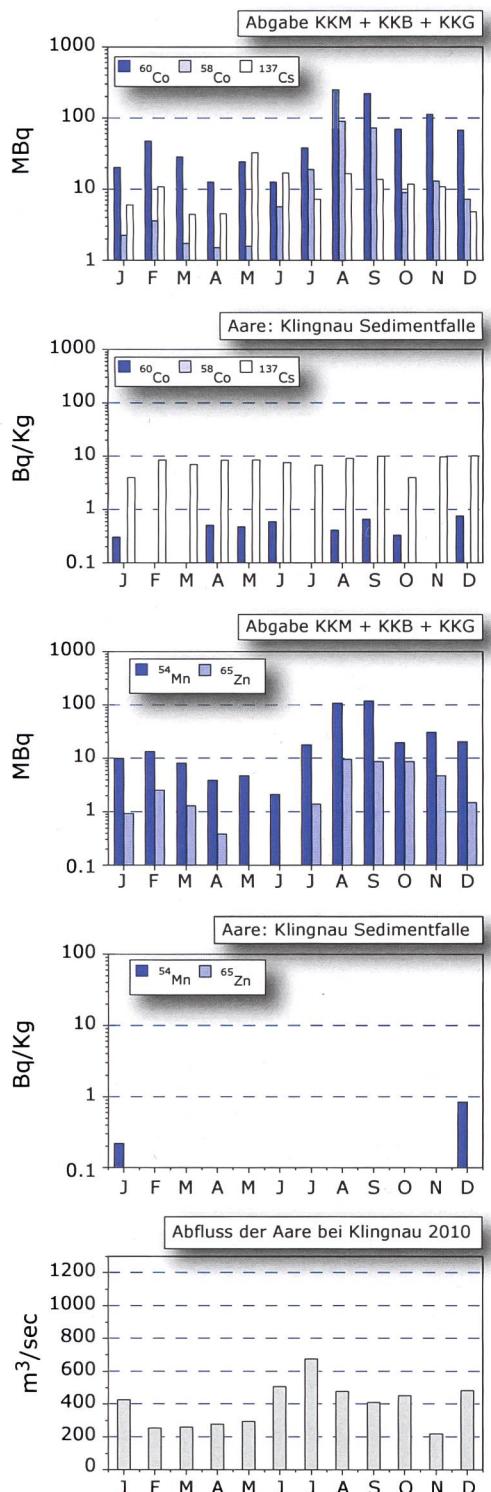
Figur 6:
Monatliche Abgaben und Messungen ^{58}Co und ^{60}Co während den letzten elf Jahren. Es ist klar ersichtlich, dass die Abgaben vor allem im Sommer während der Revisionen erfolgen und über die Jahre deutlich abgenommen haben.

Sedimentproben

Wie bereits erwähnt, sind die meisten der von den Kernkraftwerken abgegebenen Radionuklide partikelaktiv. Ein Teil wird deshalb je nach den Fliess-eigenschaften 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 jeweils über einen Monat ablagern.

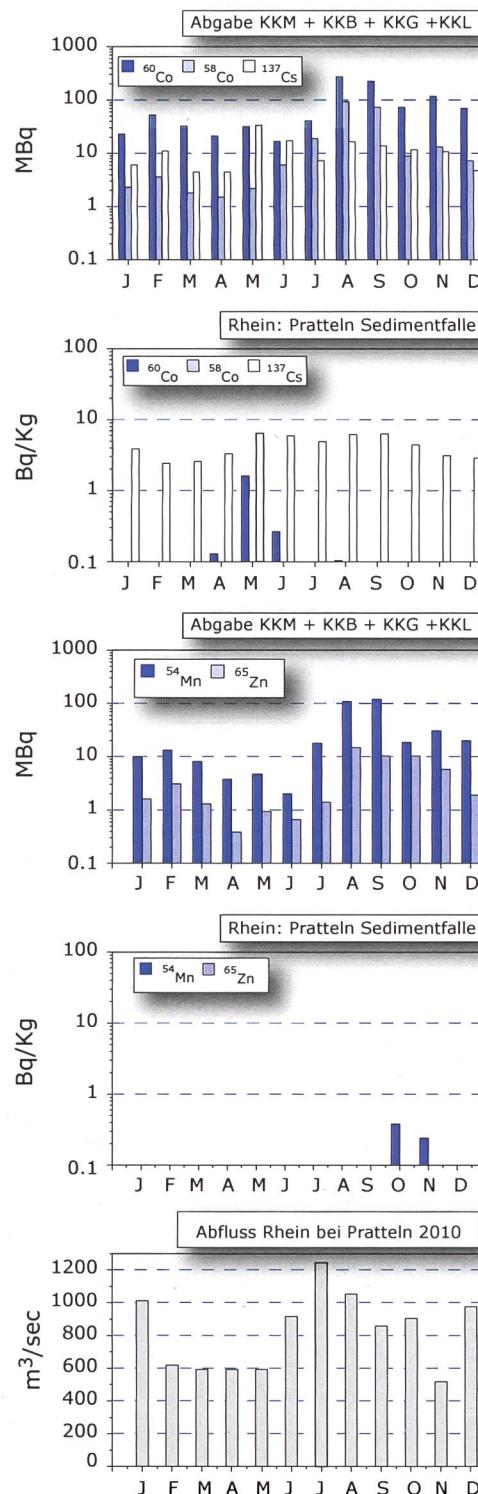


Figur 7:
In den ersten 4 Teilfiguren sind abwechselungsweise die Abgaben des Kernkraftwerks Mühleberg und anschliessend die entsprechenden gemessenen Aktivitäten in den Sedimentfallenproben von Hagneck dargestellt. Die 5. Teilfigur zeigt die mittleren monatlichen Abflussmengen der Aare bei Hagneck. Abgaben und gemessene Konzentrationen zeigen mit Ausnahme von ^{137}Cs einen ähnlichen Verlauf mit hohen Werten im August und September.



Figur 8:

Die Sedimentfallenproben von Klingnau zeigen vor allem ^{137}Cs , das nur zu einem geringen Teil aus den flussaufwärts liegenden Kernkraftwerken stammt. Vereinzelt sind noch Spuren von ^{60}Co und ^{54}Mn nachweisbar.



Figur 9:

Ähnlich wie in Klingnau zeigen die Sedimentfallen von Pratteln nur noch ab und zu geringe Konzentrationen von ^{60}Co und ^{54}Mn . ^{137}Cs stammt vermutlich zum grössten Teil vom Tschernobylunfall.

Die in den Sedimentfallen gemessenen spezifischen Aktivitäten sind in den Figuren 7 bis 9 dargestellt, wobei jeweils im oberen Teil der Figuren die abgegebenen Aktivitäten in MBq angegeben sind und im unteren Teil die entsprechenden gemessenen 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 als Folge des grösseren Abstandes von Mühleberg in Klingnau und Pratteln die Konzentrationen deutlich geringer sind und teilweise unter der Nachweisgrenze liegen. Bis auf ^{137}Cs , das auch aus der Umgebung stammt, und ^{65}Zn , das als Folge der geringen Abgaben fast nicht messbar war, zeigen die Messungen von Hagneck (Figur 7) generell den aufgrund der Abgaben erwarteten Verlauf. ^{65}Zn war nur während der Revision im August und September messbar.

Nach dem Durchfliessen des Bielersees und des Klingnauer Staubeckens konnten nur noch relativ geringe spezifische Aktivitäten von ^{60}Co und fast kein ^{54}Mn gemessen werden (Fig. 8). Keine Übereinstimmung zwischen Messungen und Abgaben findet man bei ^{137}Cs . Wie bereits erwähnt, lässt sich dieses Phänomen auf die Erosion von Böden zurückführen, die mit dem Tschernobyl-Ausfall kontaminiert worden waren.

Auch in Pratteln war ^{137}Cs trotz der vergleichsweise geringen Abgaben immer gut messbar. ^{60}Co und ^{54}Mn waren nur vereinzelt nachweisbar, ^{58}Co gar nicht mehr.

Fische und Wasserpflanzen

Im Jahr 2011 wurden an 3 Stellen Fische aus der Aare untersucht. Ein Alet aus der alten Aare bei Lyss unterhalb des Kernkraftwerks Mühleberg, ein Alet aus der Aare bei Aarau unterhalb von Gösgen und ein Alet aus der Gegend unterhalb von Beznau. Aus dem Rhein unterhalb Leibstadt wurde kein Fisch untersucht. Alle Fische wurden zuerst filetiert und gefriergetrocknet. Bei zwei Fischen wurde natürliches ^{40}K ($\sim 500 \text{ Bq/kg}$) gefunden. Künstliche Radionuklide konnten keine nachgewiesen werden.

In Wasserpflanzen, die am 30.6.2011 der Aare bei Hagneck entnommen wurden, waren wie üblich Spuren von ^{54}Mn ($5.1 \pm 0.3 \text{ Bq/kg TS}$), ^{60}Co ($6.6 \pm 0.3 \text{ Bq/kg TS}$) und ^{137}Cs ($1.0 \pm 0.2 \text{ Bq/kg TS}$) vorhanden, während die natürlichen Radionuklide ^{7}Be und ^{40}K Aktivitäten von bis zu 800 Bq/kg zeigten. Etwas überraschend wurde auch das kurzlebige in der Nuklearmedizin eingesetzte ^{131}I gefunden. Deshalb wurden zusätzliche Proben erhoben. Die Resultate sind in Tabelle 3 zusammengestellt und zeigen einen Maximalwert von $188 \pm 7 \text{ Bq/kg}$ am 27.10.2011. Auch im Wohlensee, der oberhalb des KKW Mühleberg aber unterhalb der ARA Bern

liegt, wurde ^{131}I gefunden. Eine weitere Probe noch weiter flussaufwärts (Bern Enge), oberhalb der ARA Bern, enthielt hingegen kein ^{131}I . Dies deutet darauf hin, dass es sich um durch Abwasser eingetragenes ^{131}I aus der Nuklearmedizin handelt. Obwohl leicht höher als in früheren Messungen, sind die gemessenen ^{131}I Konzentrationen unproblematisch und liegen sogar deutlich unter dem Grenzwert für Lebensmittel. Iod wird von den Wasserpflanzen angereichert, was erklärt, warum die ^{131}I Aktivitäten in den Sedimenten durchwegs geringer sind. Da die Aufnahme von Iod in verschiedenen Wasserpflanzen unterschiedlich sein kann, wurde in den Proben vom November 2011 auch stabiles Iod gemessen (Abteilung LMS, Sektion chemische Risiken, BAG). Auf stabiles Iod normiert sind die Aktivitäten von ^{131}I : $4.2 \pm 0.3 \text{ Bq/mg Iod}$ (Wohlensee 15.11.11), $1.9 \pm 0.3 \text{ Bq/mg Iod}$ (Wohlensee 28.11.11) und $< 0.1 \text{ Bq/mg Iod}$ (Bern Enge 28.11.11).

Die zusätzlich untersuchten Wasserpflanzen wurden während oder nach der Zeit mit höheren Abgaben aus dem Kernkraftwerk Mühleberg genommen, weshalb die Konzentrationen der künstlichen Radionuklide ^{60}Co , ^{58}Co und ^{54}Mn etwas höher waren als bei der Probe vom Juni, vergleichbar mit den Konzentrationen in den Sedimenten zur gleichen Zeit (^{60}Co : $18 - 86 \text{ Bq/kg Trockengewicht}$; ^{58}Co : $7 - 26 \text{ Bq/kg Trockengewicht}$; ^{54}Mn : $15 - 51 \text{ Bq/kg Trockengewicht}$).

Tabelle 3: ^{131}I in Wasserpflanzen.

Datum	Ort	^{131}I	
		Bq/kg	$\pm 2\sigma$
30.06.2011	Hagneck	32	2.0
28.07.2011	Hagneck	21	1.0
	Klingnau	< 4.2	
01.09.2011	Wohlensee	46.7	2.8
	Hagneck	14	1.0
29.09.2011	Pratteln	60.9	3.1
27.10.2011	Hagneck	188	7.0
	Klingnau	< 1.8	
	Pratteln	< 4.6	
15.11.2011	Wohlensee	69.4	1.0
28.11.2011	Bern Enge	< 2.0	
	Wohlensee	49.5	6.0
04.01.2012	Hagneck	< 24	

Grundwasser

Am 28.7.2011 wurden in Aarberg und Pratteln, und am 29.9.2011 in Döttingen Grundwasserproben von je 100 Litern genommen. In keiner der Proben konnten künstliche Radionuklide nachgewiesen werden. Die Werte liegen typischerweise unter $0.4 \text{ Bq pro 1'000 Liter}$.

Schwebstoffproben und Tritium im Rhein bei Weil

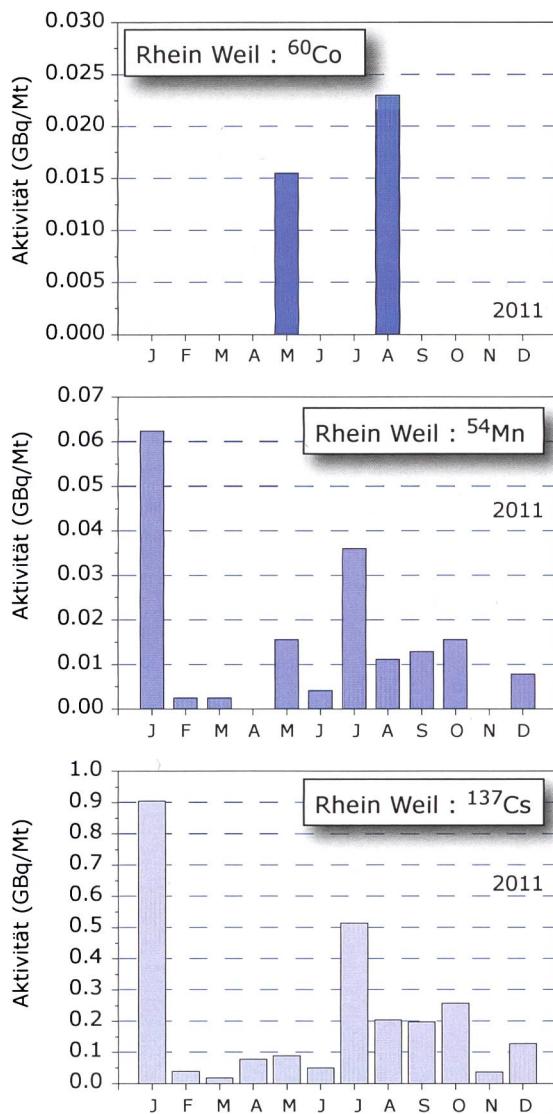
Das Amt für Umweltschutz Basel-Stadt zieht monatlich Schwebstoffproben im Rhein bei Basel (internationale Rheinüberwachungsstation Weil a. R.). Während 2 bis 5 Tagen wird Rheinwasser aus der Rheinquerprofilmischung zentrifugiert.

Die gewonnenen Schwebstoffe werden gefriergetrocknet und gemahlen. Zur Berechnung der Monatsfrachten werden die aus den Aktivitäten ermittelten Tagesfrachten mit dem mittleren Monatsabfluss in Monatsfrachten umgerechnet. Zur Frachtberechnung werden die Tagesabflussdaten der Messstelle Rheinhalle bei Basel verwendet.

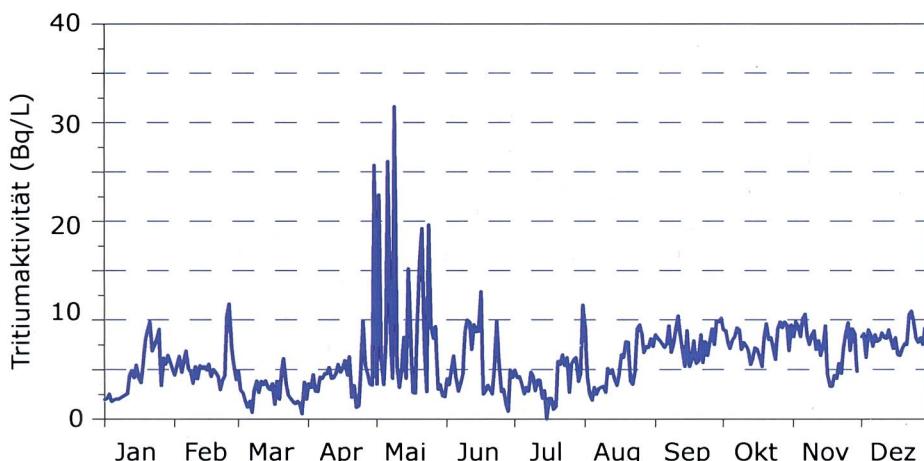
Der Vergleich der Messwerte mit den Abgaben (siehe Figur 10) zeigt, dass ^{137}Cs primär noch vom Tschernobylunfall und nicht aus den Kernkraftwerken stammt. Erhöhte Aktivitäten von ^{60}Co und ^{54}Mn wurden im August gemessen als Folge der erhöhten Abgaben während der Revision des KKW's Mühleberg.

Da die Abgaben der Kernkraftwerke nicht kontinuierlich erfolgen, ist die Hochrechnung auf den ganzen Monat mit einer relativ grossen Unsicherheit behaftet und die Werte können nicht ohne weiteres mit denjenigen der Figuren 2 und 4 verglichen werden.

Die täglichen Tritium-Messungen des Kantonslators Basel sind in Figur 11. dargestellt und zeigen deutlich die etwas höheren Werte im Mai als Folge der Abgaben des Kernkraftwerkes Gösgen (siehe auch Kapitel 8.6).



Figur 10:
 ^{60}Co , ^{54}Mn , ^{137}Cs und Aktivitäten im Rhein bei der internationalen Rheinüberwachungsstation Weil a. R. unterhalb von Basel.



Figur 11:
Tritiummessungen bei der Rheinüberwachungsstation Weil am Rhein.

Allgemeine Überwachung

Von den zwei Probenahmestationen Diepoldsau und Rekingen am Rhein wurden wöchentliche Wasserproben untersucht. Ausser vereinzelten ^{40}K Aktivitäten konnten keine gamma-aktiven Radionuklide nachgewiesen werden. Bei den Proben von Diepoldsau werden die Aktivitäten von Tritium in 4-wöchigen Mischproben gemessen. Die Resultate für das Jahr 2011 ergeben im Mittel $0.7 \pm 0.2 \text{ Bq/L}$. Die Messungen werden durch die Bundesanstalt für Gewässerkunde in Koblenz durchgeführt.

Wasserproben aus dem Ticino (bei Contone) und aus der Rhone (bei Porte-du-Sex/VS sowie bei Chancy/GE) werden monatlich am BAG untersucht. Ausser Spuren von ^{137}Cs , das aus alten Ablagerungen stammt konnten keine künstlichen Gammastrahler nachgewiesen werden, wobei dieses

^{137}Cs . Als höchster Wert wurde $5.4 \pm 1.8 \text{ mBq/l}$ in der Rhone bei Chancy gemessen. Die monatlichen Messungen von Tritium im Ticino und in der Rhone ergaben durchwegs Aktivitäten von weniger als 2 Bq/l .

In den Sedimentproben aus der Aare bei Hagneck und Klingnau, sowie aus dem Rhein bei Pratteln und bei Weil wurden für die Monate März bis Mai ausser den oben diskutierten Isotopen auch ^{134}Cs gemessen mit Aktivitäten zwischen $0.1 - 3 \text{ Bq/kg}$ getrocknetes Sediment. Die Ursache für das Auftreten dieses Isotopes, welches in den letzten Jahren nicht mehr nachgewiesen werden konnte, sind die Kontaminationen nach dem Reaktorunfall in Fukushima.

4.5

Radioactivité du sol et de l'herbe

P. Froidevaux, J.A. Corcho Alvarado, F. Barraud, A. Savary, K. Garcia-Diz et F. Bochud

Institut de Radiophysique, Grand Pré 1, 1007 Lausanne

S. Estier, P. Steinmann, A. Gurtner

Radioactivité de l'environnement, URA / OFSP, 3003 BERN

M. Zehringer

Laboratoire Cantonal de Bâle, Kannenfeldstr. 2 CH-4012 Basel.

M. Burger, S. Röllin, R. Holzer, H. Sahli, M. Astner

Labor Spiez, Bundesamt für Bevölkerungsschutz des VBS, 3700 Spiez

Résumé

Nous avons prélevé des échantillons de sol (0-5 cm) et d'herbe sur différents sites en Suisse, notamment aux abords des centrales nucléaires. Dans certains cas, des mesures de spectrométrie in-situ ont également été réalisées. En raison de l'accident de la centrale nucléaire japonaise de Fukushima, nous avons collecté un certain nombre d'échantillons supplémentaires d'herbe et de légumes cultivés en plein champ pour en déterminer la radioactivité. Les résultats montrent que le niveau d'activité artificiel dans le sol, l'herbe et les légumes est resté faible et au niveau des années précédentes. Des traces de ^{131}I (max. 23 Bq/kg MS) attribuées à Fukushima ont été observées sur des prélèvements d'herbe et de légumes à feuilles cultivés en plein champ. Les activités des radioéléments habituellement observés dans les échantillons de sol, comme conséquence des essais d'armes atomiques réalisés en atmosphère dans les années soixante, sont au maximum de quelques Bq/kg pour le plutonium, l'américium et le ^{90}Sr . Le niveau d'activité en ^{137}Cs est plus variable et dépend de la contribution de l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl et peut atteindre au Tessin, région particulièrement touchée par les retombées de l'accident, jusqu'à 290 Bq/kg (env. 50 Bq/kg au maximum sur le plateau suisse). Quelques traces de ^{134}Cs (< 1.3 Bq/kg MS) ont également été observées, déposées sur l'herbe suite à l'accident de Fukushima. Les activités en ^{90}Sr sont restées très similaires à celles observées les années précédentes.

Introduction

L'année 2011 a été marquée par un accident nucléaire majeur dans la centrale nucléaire de Fukushima, au Japon, suite à un tremblement de terre et un tsunami dévastateurs. Les différentes explosions sur le site ont libéré dans l'atmosphère de la radioactivité (principalement ^{131}I , ^{134}Cs et ^{137}Cs) dont les traces ont pu être observées jusqu'en Suisse. L'OFSP et les laboratoires associés ont donc, en parallèle au plan annuel de surveillance de la radioactivité, collecté des échantillons supplémentaires afin de documenter la sécurité alimentaire de la population. La déposition atmosphérique de radioactivité est initialement visible sur la végétation, c'est pourquoi les échantillons d'herbe et de légumes à feuilles cultivés en plein champ ont été sélectionnés majoritairement comme échantillons témoins. Les autres échantillons discutés dans ce rapport sont les échantillons de sol et d'herbe du plan annuel de surveillance, prélevés notamment aux abords des centrales nucléaires suisses. Les résultats des mesures d'activité de ceux-ci sont mis en perspective par rapport à des sites de référence en dehors de l'influence des centrales nucléaires.

Résultats et discussion

Les résultats des mesures de radioactivité dans les sols sont présentés dans le Tableau 1. Les activités en émetteurs gamma sont dominées par le ^{40}K , avec des activités situées entre 232 et 767 Bq/kg. L'unique émetteur gamma artificiel mis en évidence est le ^{137}Cs dont les valeurs varient entre 3 et 290 Bq/kg. Les sites de prélèvement du Tessin, significativement plus contaminés lors de l'accident de Tchernobyl en 1986, ont les valeurs d'activité les plus élevées (17 - 290 Bq/kg). Les sites d'altitude près de Thoune et dans le Jura ont

des activités intermédiaires (17 - 35 Bq/kg), alors que les sites de plaine, notamment près des centrales nucléaires ont les activités les plus faibles (9 - 35 Bq/kg). Le site d'Arenenberg, en Suisse orientale, est le site de plaine le plus contaminé en ^{137}Cs (50 Bq/kg); en effet cette région a subi de fortes précipitations lors de l'accident de Tchernobyl. Dans le sol, aucun radioélément provenant de l'accident de Fukushima n'a présenté d'activité supérieure à la limite de détection (env. 1 - 5 Bq/kg pour ^{131}I et 0.5 - 1 Bq/kg pour ^{134}Cs).

Tableau 1:

Activité en ^{40}K , ^{137}Cs , ^{90}Sr , Pu et Am dans des sols (0-5 cm) prélevés en Suisse en 2011 (Bq/kg matière sèche, < 2mm).

Canton / Lieu	n	^{40}K	^{60}Co	^{134}Cs	^{137}Cs	^{90}Sr	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am
AG (voisinage KKB)	2	425 - 452	<0.9	<0.7	20 - 32	1.0 ± 0.2	0.12 ± 0.01	0.063 ± 0.010
AG (KKB in-situ)	4	310 - 340			9.1 - 14.5			
AG (PSI)	1	454 ± 48	<0.5	<0.4	9.0 ± 1.1	0.49 ± 0.18	0.10 ± 0.01	0.047 ± 0.006
AG (PSI in-situ)	1	330 ± 45			7.3 ± 1.4			
AG (ZWILAG)	1	432 ± 46	<0.5	<0.5	12 ± 1.4	0.92 ± 0.2	0.12 ± 0.01	0.061 ± 0.008
AG (ZWILAG in-situ)	1	340 ± 45			9.1 ± 1.6			
AG (voisinage KKL)	4	407 - 550	<0.8	<0.7	13 - 17	1.3 ± 0.15	0.17 ± 0.01	0.059 ± 0.008
AG (KKL in-situ)	4	200 - 350			6.3 - 12.1			
AG/SO (voisinage KKG)	4	373 - 538	<0.9	<0.7	8 - 25	0.9 ± 0.3	0.19 ± 0.01	0.083 ± 0.010
AG/SO (KKG in-situ)	4	270 - 340			5.1 - 12.6			
BE (voisinage KKM)	4	385 - 778	<1.1	<0.7	9 - 15	0.84 ± 0.18	0.16 ± 0.01	0.059 ± 0.008
BE (KKM in-situ)	7	300 - 540			6.4 - 10.3			
BE (Mürren) ¹⁾	1	501 ± 56		<0.3	35 ± 4.1	5.8 ± 0.8	0.64 - 0.83	0.26 - 0.46
BE (Gimmelwald) ²⁾	1	232 ± 21		<0.7	25 ± 3.1	3.6 ± 0.6	0.70 ± 0.02	0.30 ± 0.02
BE (Fahrni) ³⁾	1	458 ± 51		<0.3	17 ± 2	2.7 ± 0.5	0.37 - 0.51	0.15 - 0.22
BE (Diesse / Jura)	1	443 ± 37		<0.5	19 ± 22	1.5 ± 0.2	0.39 - 0.42	0.16 ± 0.010
BL (Sissach)	1	580 ± 28	<1	<0.2	20 ± 0.6	2.2 ± 0.6		
FR (Posieux)	1	457 ± 50	<0.8	<0.6	6.5 ± 0.9	0.69 ± 0.11	0.17 ± 0.01	0.073 ± 0.006
FR (Grangeneuve in-situ)	1	300 ± 40			4.9 ± 1.1			
GE (voisinage CERN)	4	420 - 496	<1.4		4.4 - 15.5	0.75 ± 0.10	0.09 ± 0.01	0.042 ± 0.014
GE (CERN in-situ)	5	340 - 380			3.3 - 6.7			
TG (Arenenberg)	1	398 ± 11	<0.6	<0.6	49.6 ± 0.8	1.4 ± 0.2	0.19 ± 0.01	0.073 ± 0.008
TI (Rasa-Intragna)	1	630 ± 68		<0.7	75 ± 6	4.0 ± 1.2		
TI (Rodi-Fiesso)	1	390 ± 30		<0.3	59 ± 3.8	2.9 ± 1.4		
TI (Novaggio)	1	660 ± 50		<0.2	17 ± 1.7	3.4 ± 1.2		
TI (Stabio)	1	717 ± 77	<1.0	<0.9	290 ± 30			
TI (Stabio in-situ)	1	540 ± 65			176 ± 19			
TI (Cadenazzo)	1	767 ± 81	<0.6	<0.5	92 ± 9	0.91 ± 0.12	0.10 ± 0.01	0.066 ± 0.006
TI (Cadenazzo in-situ)	1	560 ± 70			67.3 ± 8.2			
TI (Caslano in situ)	1	500 ± 60			71.2 ± 8.6			

n = nombre d'échantillons; ¹⁾ Alpage (Alp Allmendhubel); ²⁾ Vallée; ³⁾ en plaine.

Les résultats des mesures de radioactivité dans l'herbe sont présentés dans le Tableau 2. Comme pour le sol, les prélèvements sont réalisés pour comparer les mesures aux abords des centrales nucléaires à celles de sites de référence. Nous pouvons faire les mêmes constatations que les années précédentes, soit que l'activité en ^{137}Cs et ^{90}Sr dans l'herbe, les deux seuls radioéléments anthropogéniques dont l'activité est supérieure à la limite de détection, est très basse en plaine et près des centrales nucléaires ($< 2.5 \text{ Bq/kg MS}$) et qu'elle augmente avec l'altitude des sites de prélèvements, avec des activités jusqu'à 20 Bq/kg de ^{90}Sr

dans l'herbe de l'alpage de Mürren. Les herbes du Tessin, dont certains sites sont également situés en altitude, présentent les activités les plus élevées en ^{137}Cs (jusqu'à 16 Bq/kg) et parfois aussi en ^{90}Sr (3.6-9.2 Bq/kg). Cette année, certains prélèvements d'herbe effectués juste après l'accident de Fukushima présentaient des traces de ^{131}I , avec des activités s'échelonnant de 1 à 23 Bq/kg MS selon les lieux et les dates de prélèvement. Quelques traces de ^{134}Cs ($< 1 \text{ Bq/kg}$) ont également été observées par certains laboratoires, suite à des mesures de longue durée. Quatre prélèvements d'herbe entre Lausanne et le col du Mollendruz ont montré que

Tableau 2:

^7Be , ^{40}K , ^{137}Cs et ^{90}Sr dans des échantillons d'herbe prélevés en Suisse en 2011 (Bq/kg de matière sèche). Pour les échantillons uniques la valeur et l'incertitude sont indiquées ($a \pm b$). Si plusieurs échantillons ont été mesuré la gamme des valeurs est donnée ($a - b$).

Canton/Lieu	n	^7Be	^{40}K	^{60}Co	^{134}Cs	^{137}Cs	^{90}Sr
AG (voisinage KKB)	4	45 - 173	716 - 1000	<1.6	<1.5	1.2 - 1.9	0.77 - 1.87
AG (ZWILAG)	2	98 - 355	834 - 934	<1.2	<1	<1.1	0.95 - 2.29
AG (PSI OASE)	2	67 - 346	544 - 940	<1.4	<1	<1.2	2.27 ± 0.16
AG (voisinage KKL)	8	43 - 250	476 - 1069	<1.7	<1.3	1.3 - 1.6	0.5 - 1.4
AG/SO (voisinage KKG)	8	118 - 245	541 - 1226	<1.9	<1.4	1.4 - 1.5	1.6 - 2.0
BE (voisinage KKM)	8	149 - 423	668 - 1416	<1.8	<1.2	0.7 - 1.5	2.0 - 3.8
BE (Mürren) ¹⁾	1	288 ± 18	548 ± 61		<0.3	1.0 ± 0.2	20.5 ± 3.7
BE (Gimmelwald) ²⁾	1	122 ± 10	996 ± 88		0.4 ± 0.1	1 ± 0.2	2.5 ± 0.4
BE (Fahrni) ³⁾	2	100 - 290	852 - 1060		0.3 - 0.4	0.5 - 0.9	3.2 - 4
BE (Diesses/Jura)	2	64 - 227	1290 - 1370		<0.3	<0.2	0.7 - 1.1
BL (Sissach)	2	11 - 54	555 - 1090	<1	<1	<1 - 0.55	
BL (Muttenz)	2	202 - 300	278 - 923	<1	<2	<0.4 - 1.8	
FR (Posieux)	1	89 ± 14	1191 ± 133	<1.7	<1.4	<1.5	1.21 ± 0.14
FR (Galmiz)	1	107 ± 16	1192 ± 133		<1.6	<2.1	
JU (Delémont)	2	15 - 119	288 - 1078	<1	<0.7	0.5 - 1.8	
JU (Saignelégier)	1	106 ± 16	633 ± 62	<1	<0.6	2.6 ± 1.4	
JU (Boncourt)	2	83 - 146	690 - 851	<1	<0.65 - 1.2	1.7 - 1.8	
TG (Arenenberg)	1	61 ± 8	623 ± 24	<0.7	<0.8	<0.9	
TI (Rasa-Intragna)	1	256 ± 40	1038 ± 66	<1	<0.2	2.0 ± 0.5	9.2 ± 0.2
TI (Rodì-Fiesso)	1	240 ± 16	640 ± 40	<1	<0.2	4.8 ± 0.6	3.7 ± 0.3
TI (Novaggio)	1	260 ± 17	840 ± 46	<1	<0.2	0.7 ± 0.4	7.3 ± 0.2
TI (Cadenazzo)	1	< 15	1180 ± 130	<2.8	<1.6	<1.8	3.6 ± 0.2
TI (Stabio)	1	40 ± 10	930 ± 108	<1.7	<1.5	16 ± 2.3	
VD (Daillens)	1	29 ± 8	1152 ± 38	<1	<1	<1	0.62 ± 0.19
VD (Cuarnens)	1	50 ± 13	1030 ± 43	<2.4	<2.1	<2.1	3.9 ± 0.3
VD (Mont-la-Ville)	1	42 ± 8	1223 ± 48	<1.7	<1.4	<1.7	1.1 ± 0.11
VD (col du Mollendruz)	1	72 ± 17	1029 ± 59	<5	<3.8	<4.2	1.67 ± 0.17

n = nombre d'échantillons; ¹⁾ Alpage (Alp Allmendhubel); ²⁾ Vallée; ³⁾ en plaine.

Tableau 3:

Activité des échantillons de denrées alimentaires prélevés sur le marché de Lausanne, aux environs de Bâle et dans le canton du Jura, ainsi que près de Fribourg en 2011, suite à l'accident de Fukushima (Bq/kg de matière sèche).

Date	Canton/Lieu	Type	^{7}Be	^{40}K	^{131}I	^{134}Cs	^{137}Cs	^{90}Sr
17.-24.4.11	BL (Muttenz)	Ail des ours	124 - 132	1160 - 1315	1.9 - 4.1	<1 - 0.6	1.0 ± 0.8	
6.4.11	VD (Bremblens)	Dents de lion	78 ± 26	2183 ± 92	7.5 ± 2.0	<4.5	<5	1.2 ± 0.4
6.4.11	VD (Bremblens)	Salade «feuille de chêne»	<40	2228 ± 131	<6	<4.5	<5	0.94 ± 0.30
6.4.11	VD (Bremblens)	Salade «Batavia»	<35	2399 ± 122	<4	<4	<5	1.3 ± 0.5
6.4.11	VD (Bremblens)	Salade «laitue romaine»	<29	2114 ± 87	<3.5	<4	<4	0.66 ± 0.20
6.4.11	VD (Bremblens)	Epinards	55 ± 8	2819 ± 80	12 ± 3	<1.3	<1.4	0.88 ± 0.30
11.4.11	VD (Venoge, l'Isle)	Mousses aquatiques	<65	400 ± 81	<25	<8	9.6 ± 3.5	0.7 ± 0.5
6.4.11	VD (Mont s/Lausanne)	Pommes (Pilote)	<29	2010 ± 45	<7	<4	<4	0.17 ± 0.05
6.4.11	VD (Mont s/Lausanne)	Pommes-de-terre, pelées	<9	906 ± 10	<2	<1.2	<1.3	0.18 ± 0.05
16.4.11	VD (Denges)	Dents de lion	16 ± 10	1208 ± 50	<3	<2	1.9 ± 1.0	1.0 ± 0.10
16.4.11	VD (Denges)	Salade doucette	34 ± 9	1258 ± 49	1.7 ± 2.0	<1.8	<2	2.9 ± 0.2
16.4.11	VD (Denges)	Côtes de bettes	<125	1697 ± 51	<1.8	<1.5	<1.7	1.1 ± 0.2
6.4.11	FR (Kerzers) ¹	Poireaux	<3.7	78 ± 12	<0.5	<0.4	<0.5	
6.4.11	FR (Galmiz) ¹	Salade doucette	7.2 ± 1.7	165 ± 18	0.4 ± 0.2	<0.3	0.3 ± 0.2	
6.4.11	FR (Kerzers) ¹	Epinards	7.3 ± 2.2	177 ± 21	0.6 ± 0.2	<0.4	<0.5	
6.4.11	FR (Nant) ¹	Rhubarbe	<2.7	56 ± 9	<0.3	<0.3	<0.4	
2.5.11	VS (Sion)	Salade	<28	1831 ± 202	<7.4	<2.7	<3	

¹⁾ activité reportée en Bq/kg de masse fraîche

Conclusions

la déposition de ^{131}I était une fonction de l'altitude, avec des activités passant de 10 à 23 Bq/kg MS entre 600 m et 1'200 m d'altitude.

Suite à l'accident de Fukushima, les différents laboratoires ont également procédés à des prélèvements et mesures supplémentaires de légumes. Les résultats sont présentés dans le Tableau 3. De la même manière que pour les herbes, nous avons observés des traces de ^{131}I (1 - 7.5 Bq/kg MS) dans certains légumes à feuilles cultivés en plein champ. Il est à noter que lors de l'accident de Fukushima (11 mars 2011), une large partie des légumes vendus sur les marchés en Suisse provenait de culture sous serre, donc à l'abri de la déposition atmosphérique. Un bon moyen de distinguer les légumes cultivés sous serre de ceux cultivés plein champ consiste à mesurer le ^{7}Be . Ce radioélément est produit dans l'atmosphère par spallation des rayonnements cosmiques (^{12}C ; $^{3}\text{He} \rightarrow ^{7}\text{Be}$) et se dépose sur le sol. Sa période de 53 jours permet sa mesure dans l'herbe et est un bon indicateur de l'exposition à une déposition atmosphérique de radioactivité. Dans le Tableau 3, on constate que tous les échantillons dans lesquels nous avons pu mesurer du ^{131}I au-dessus de la limite de détection ont une activité en ^{7}Be également mesurable au-dessus de la limite de détection.

L'année 2011 a été marquée par l'accident nucléaire du 11 mars à Fukushima au Japon. Des traces de ^{131}I ont été mesurées jusqu'en Suisse dans l'herbe et certains légumes à feuilles cultivés en plein champ. La mesure de ^{7}Be est une bonne méthode pour distinguer les légumes cultivés sous serre de ceux cultivés en plein champ.

Les échantillons du plan annuel de surveillance de la radioactivité n'ont pas présenté d'activités différentes de celles observées les années précédentes. En particulier, on observe que les sols et herbes du Tessin contiennent plus de ^{137}Cs que les autres sites de Suisse ; le Tessin a en effet subi une déposition de radioactivité lors de l'accident de Tchernobyl supérieure aux autres parties du pays. L'autre observation habituelle est la prédominance des sites d'altitude dans les échantillons les plus actifs ; en effet, les dépositions de radioactivité des essais d'armes atomiques ont été plus importantes en altitude à cause de précipitations plus abondantes et du phénomène d'interceptions des masses atmosphériques par les reliefs. Les sites de plaine, notamment aux abords des centrales nucléaires, sont les moins actifs. Ceci démontre que les radioéléments anthropogéniques (^{137}Cs et ^{90}Sr) mesurés dans tous les échantillons prélevés proviennent des essais d'armes atomiques atmosphériques des années soixante et de l'accident de Tchernobyl, en 1986.

4.6

Natürliche und künstliche Radionuklide in Sedimenten von drei Schweizer Seen

S.Röllin, R. Holzer, H. Sahli, M. Astner, F. Byrde, M. Burger

LABOR SPIEZ, Bundesamt für Bevölkerungsschutz, 3700 Spiez

E. Klemt, V. Putyrskaya

Hochschule Ravensburg-Weingarten, D-88250 Weingarten

Zusammenfassung

Es wurden Sedimentkerne vom Brienzer-, Thuner- und Vierwaldstättersee entnommen. Die Sedimentkerne wurden der Länge nach aufgeschnitten und in 1 cm dicke Schichten aufgeteilt. Die Aktivitätskonzentrationen der getrockneten Proben wurden gammaspektrometrisch und nach entsprechender Probenvorbereitung massenspektrometrisch bestimmt. Bei allen Tiefenprofilen sind die Einträge aufgrund des Global Fallouts der Atomwaffentests und des Tschernobylunfalles deutlich zu erkennen. Im Gegensatz zu ^{137}Cs gelangte Plutonium nur durch die Atomwaffentests in die Sedimente. Dies wurde anhand der ^{240}Pu / ^{239}Pu Isotopenverhältnisse bestätigt. Teilweise reichte die Pu Konzentration um auch ^{241}Pu zu bestimmen. Anhand des ^{241}Pu Zerfalles wurde die Sedimentationsgeschwindigkeit bestimmt und mit den aus den ^{137}Cs -Einträgen berechneten durchschnittlichen Sedimentationsgeschwindigkeiten verglichen. Für das Brienzerseesediment wurden zudem Tiefen-Alters-Relationen anhand der ^{210}Pb Messungen gemacht. Sowohl für die Tiefen-Alters-Relationen als auch für die Sedimentationsraten ergaben sich relativ gute Übereinstimmungen, was auf relativ konstante Sedimentationsprozesse schließen lässt. Die Gesamtaktivitätsverhältnisse von ^{137}Cs zu ^{239}Pu wurden mit aus Bodenprofilen bestimmten Verhältnissen verglichen und unterschiedliches Migrationsverhalten von Cäsium und Plutonium festgestellt.

Einleitung

Anhand von Sedimentkernen lässt sich die Geschichte eines Sees rekonstruieren: Jedes Jahr wird eine neue Schicht auf dem Seegrund abgelagert. Diese Sedimentschichten lassen sich in einem Tiefenprofil sehr gut erkennen. Der Eintrag von Radiocäsium in Sedimente des Ligersee und in den Lago Maggiore wurde bereits ausführlich beschrieben (BAG Jahresbericht 2000, 2003, 2008). Die in diesem Bericht beschriebenen Sedimentkerne stammen aus dem Brienzer-, Thuner- und Vierwaldstättersee. Eine Alters-Tiefen-Beziehung wurde anhand des kontinuierlichen Eintrages von ^{210}Pb aus der Atmosphäre, der Pu-Isotopeneinträge aus dem Fallout der Kernwaffentests und des ^{137}Cs Eintrages aufgrund des Kernwaffenfallouts sowie des Tschernobylfallouts erstellt.

Tabelle 1:
Probennahmeparameter

See	Kern	Koordinaten CH1903	Probennahme Datum	Kernlänge [cm]	Seetiefe [m]
Brienzersee	BS09-LS1	E 640990 N 174098	25.05.2009	66	50
Thunersee	TS09-03-2	E 623123 N 169499	02.06.2009	94	215
Vierwaldstättersee	VS09-012-2	E 681698 N 203693	25.06.2009	133	214

Probennahme und Aufarbeitung

Im Zusammenhang mit der Untersuchung der Schadstoffbelastung aufgrund der Munitionsversenkungen in den 40er und 50er Jahren wurden 2009 ca. 50 Sedimentkerne im Brienzer-, Thuner- und Vierwaldstättersee entnommen. Die Probennahme erfolgte zusammen mit dem Team von Flavio Anselmetti von der EAWAG. Der Sedimentstecker hatte ein auswechselbares PVC Rohr mit einem Innendurchmesser von 6 cm und wurde durch sein eigenes Gewicht in das Sediment getrieben. Es konnten so Sedimentkerne bis 130 cm erhoben werden. In Tab. 1 sind die Probennahmeparameter zusammengefasst.

Die Sedimentkerne wurden bei 4°C gelagert bevor sie der Länge nach aufgetrennt wurden. Die Sedimente wurden fotografiert und anschliessend in 1 cm dicke Schichten aufgetrennt. Die Proben wurden in Polystyrolrunddosen eingewogen und gefriergetrocknet.

Analysenverfahren

Gammaspektrometrie:

Die Proben wurden mit einem Mörser zerkleinert und gammaspektrometrisch mit Germaniumdetektoren (Canberra, Broad Energy Detectors) gemessen. Die Messzeit pro Probe betrug 1- 4 Tage. Die Auswertung erfolgte mit der Canberra Spektroskopiesoftware Genie 2000, V3.2 und die Kalibration mit der Canberra Software LabSOCS.

Massenspektrometrie:

Die Proben wurden bei 520°C verascht. Zu Aliquoten von 5 g Sedimenttasche wurde ein ²⁴²Pu Ausbeutetracer und ein natürlicher In-Elementstandard zugegeben. Die Proben wurden mit einem Lithiumborat Schmelzaufschluss in Gold-/Platintiegel aufgeschmolzen und anschliessend in Salpetersäure gelöst. Silizium wurde gefällt und abfiltriert. Für Uran- und Thoriummessungen wurde ein Aliquot weiter verdünnt. Aus der restlichen Lösung wurde Plutonium mittels Extraktionschromatographie

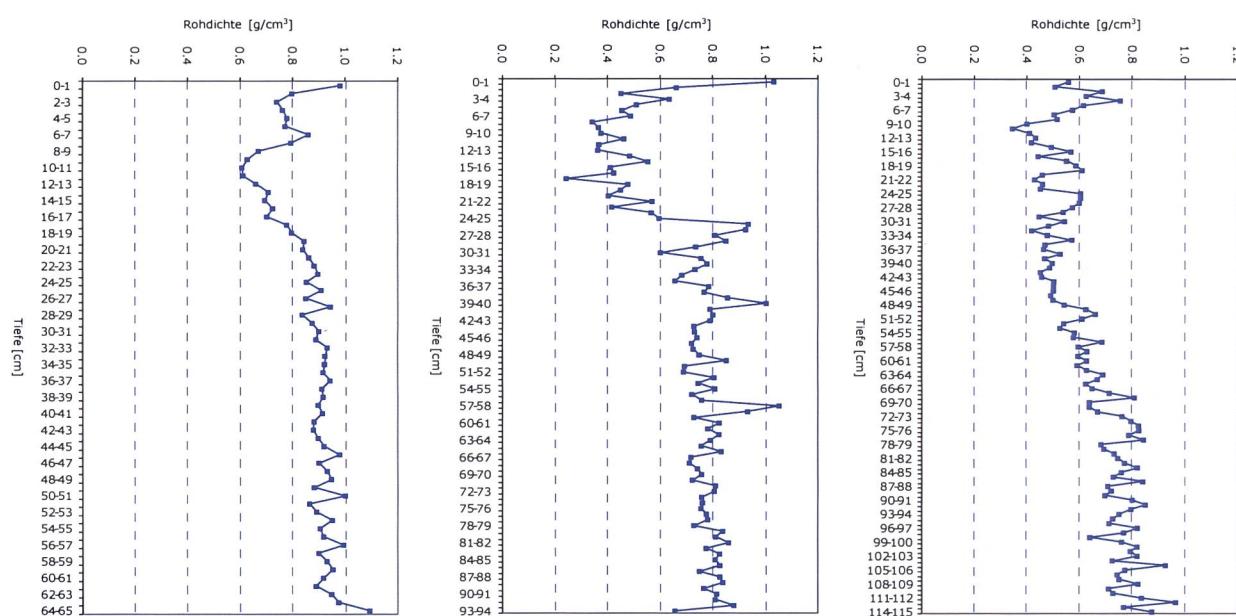
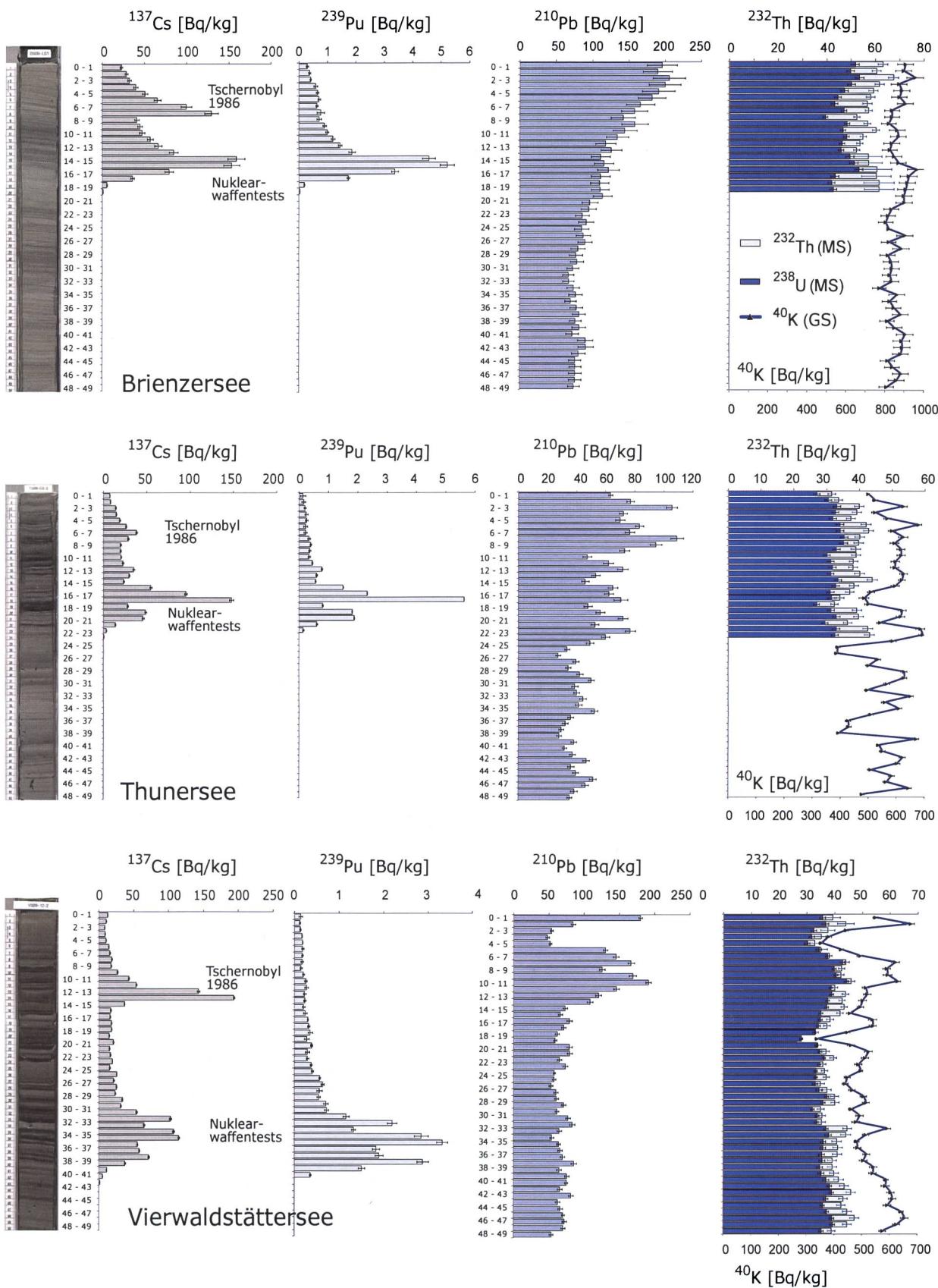


Abbildung 1:

Tiefenverteilung der Rohdichte von Sedimenten aus dem Brienzer-, Thuner- und Vierwaldstättersee.

**Abbildung 2:**

Fotos der Sedimentkerne aus dem Brienzer-, Thuner- und Vierwaldstättersee und Tiefenverteilung der Aktivitätskonzentrationen in den entsprechenden Sedimentschichten. Die Aktivitätskonzentrationen von ^{239}Pu , ^{238}U , ^{232}Th wurden massenspektrometrisch (MS) und diejenigen von ^{137}Cs , ^{210}Pb , ^{40}K gammaspektrometrisch (GS) bestimmt. Die Aktivitäten sind auf das Probenahmedatum zerfallskorrigiert. (Tabelle 1).

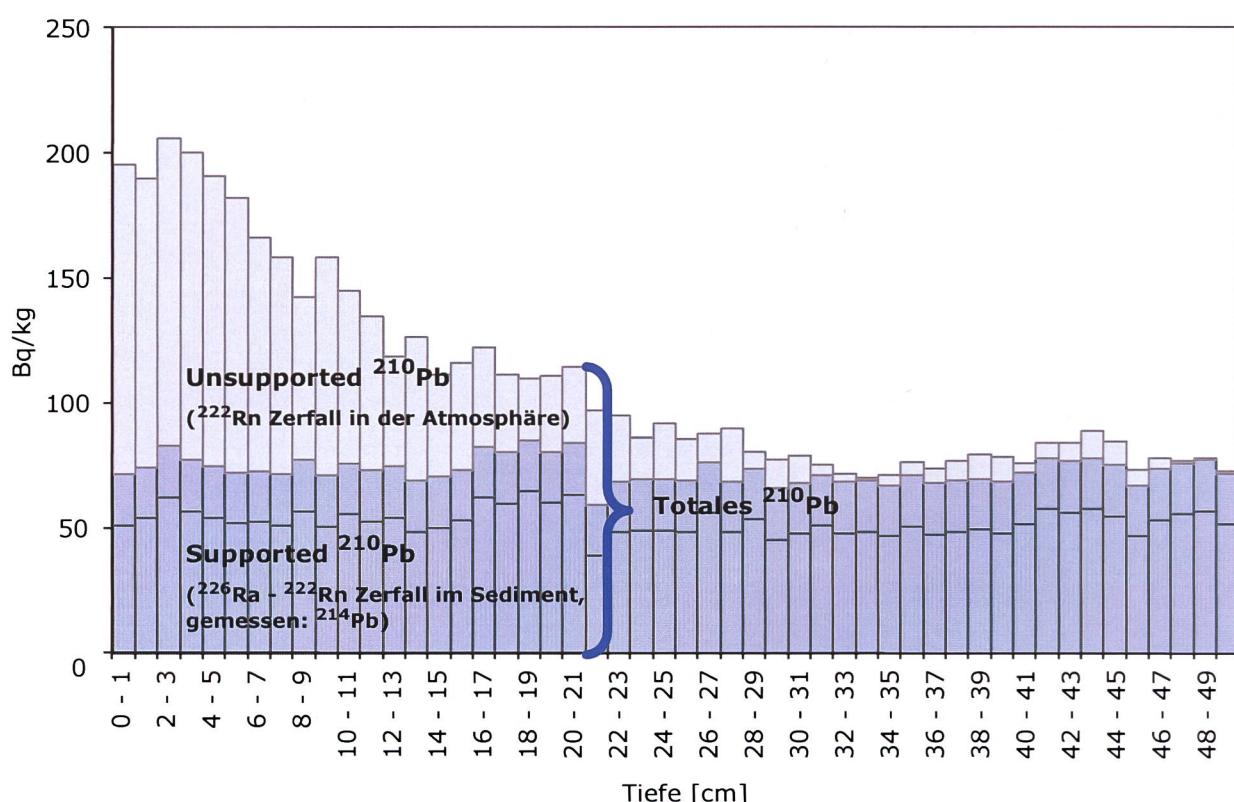
(Eichrom, TEVA) abgetrennt. Die Lösungen wurden mit einem Finnigan Element2 ICP-MS (induktiv gekoppeltes Plasmamassenspektrometer) gemessen. Durch die sehr hohe Empfindlichkeit im hohen Massenbereich können für die schweren Aktinidenisotope sehr tiefe Nachweissgrenzen im 10^{-15} g/g-Bereich erreicht werden. Für ^{239}Pu entspricht dies einer Nachweissgrenze von weniger als 0.01 Bq/kg. Zudem ist es möglich Isotopenverhältnisse zu messen und so Aussagen über die Herkunft der Aktiniden zu machen (Röllin et al, 2010).

Resultate

Abbildung 1 zeigt die Tiefenverteilung der Rohdichten der drei Sedimentkerne. Die Rohdichte (bulk density) ist das Gewicht der Trockensubstanz pro ursprünglich im Sediment eingenommenem Volumen. Der Wassergehalt der Sedimente nimmt mit der Tiefe ab und die Rohdichte dementsprechend zu. Die Lamellierung im Brienzerseesediment ist besonders gleichmässig. Dies äussert sich auch in einer gleichmässigen Tiefenverteilung der Rohdichten und der ^{40}K Aktivitätskonzentrationen (Abbildung 2).

In der Abbildung 2 ist auf der linken Seite das Foto des längs aufgeschnittenen Sediments zu sehen. Bei allen Sedimenten ist deutlich eine jahreszeitlich bedingte hell-dunkel Lamellierung zu erkennen. Teilweise sind die Lamellierungen auch auf einzelne Ereignisse wie Stürme zurückzuführen. Die Lamellierungen sind nicht genau rechtwinklig, was auf eine nicht perfekt ebene Sedimentoberfläche zurückzuführen ist. Die Probenaufteilung in 1 cm Schichten erfolgte jedoch immer rechtwinklig zum Rohr. In den Diagrammen rechts von den Fotos sind die entsprechenden Aktivitätskonzentrationen bezüglich des Trockengewichtes dargestellt. Die Aktivitätskonzentrationen von ^{239}Pu , ^{238}U , ^{232}Th wurden massenspektrometrisch (MS) und diejenigen von ^{137}Cs , ^{210}Pb , ^{40}K gammaspektrometrisch (γ) bestimmt. Massenspektrometrisch wurden nur die Sedimentschichten ab dem Beginn der Atomwaffentests analysiert.

Bei allen drei Sedimenten sind die zwei Maxima der ^{137}Cs Aktivitätskonzentrationen zu erkennen die den Einträgen aufgrund des Reaktorunglücks in Tschernobyl von 1986 und der überirdischen Atomwaffentests der 50iger und 60iger Jahre entsprechen. Die ^{239}Pu Aktivitätskonzentrationen zeigen bei allen drei Sedimenten nur den Eintrag aus den

**Abbildung 3:**

Tiefenverteilung von "unsupported" und "supported" ^{210}Pb im Sediment des Brienzersees (BS09-LS1).

Atomwaffentests. Im Jahr 1951 wurden erstmals zahlreiche Atomwaffentests durchgeführt. Unter der Annahme dass die tiefsten Schichten wo noch ^{137}Cs und ^{239}Pu nachgewiesen werden können dem Jahr 1951 entsprechen wurden durchschnittliche Sedimentationsgeschwindigkeiten berechnet (Tab. 3).

Nach dem Fallout nahm der Zufluss von künstlichen Radionukliden aus dem Einzugsgebiet in den See hinein kontinuierlich ab, was sich auch im Sediment widerspiegelt: Bei allen drei Sedimenten nimmt die Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs und ^{239}Pu nach den Einträgen mit der Zeit deutlich ab. Die Aktivitätskonzentrationen der aktuellen Einträge entsprechen ungefähr der Konzentrationen von Bodenproben in den obersten 5 cm.

Natürliche Radionuklide wie ^{238}U , ^{232}Th und ^{40}K können zusammen mit der Rohdichte wichtige Indikatoren für die Beurteilung des Sedimentierungsprozesses sein. So können z.B. Bereiche mit konstanter und häufig abrupt erhöhter Rohdichten Turbiditen zugeordnet werden. Dabei handelt es sich um lawinenartige Abgänge von Sediment an den steilen Unterwasserabhängen des Sees. Grössere Turbidite, wie sie im Lago Maggiore (Putyrskaya und Klemt, 2007) festgestellt wurden, konnten hier keine identifiziert werden.

Gammaspektrometrisch lassen sich die ^{232}Th und ^{238}U Aktivitäten nur über ihre Tochterprodukte unter der Annahme von radioaktivem Gleichgewicht innerhalb der Zerfallsstrecke messen. Durch die Möglichkeit massenspektrometrisch direkt ^{232}Th und ^{238}U zu messen, können die Annahmen von radioaktivem Gleichgewicht überprüft werden. Neben natürlichen radioaktiven Ungleichgewichten hat man bei der Uranstrecke noch messtechnisch das Problem von Radonverlusten. Durch „Einschweissen“ der Proben in Aluminiumverbundfolie (Vacumetic, Branopac) konnten Radonverluste verhindert werden. Dadurch sind die gemessenen Aktivitäten der ^{226}Ra Töchter nach Erreichung vom radioaktiven Gleichgewicht um ca. 7% höher als bei Messungen ohne Alu-Folie und stimmen sehr gut mit den massenspektrometrischen Messungen überein.

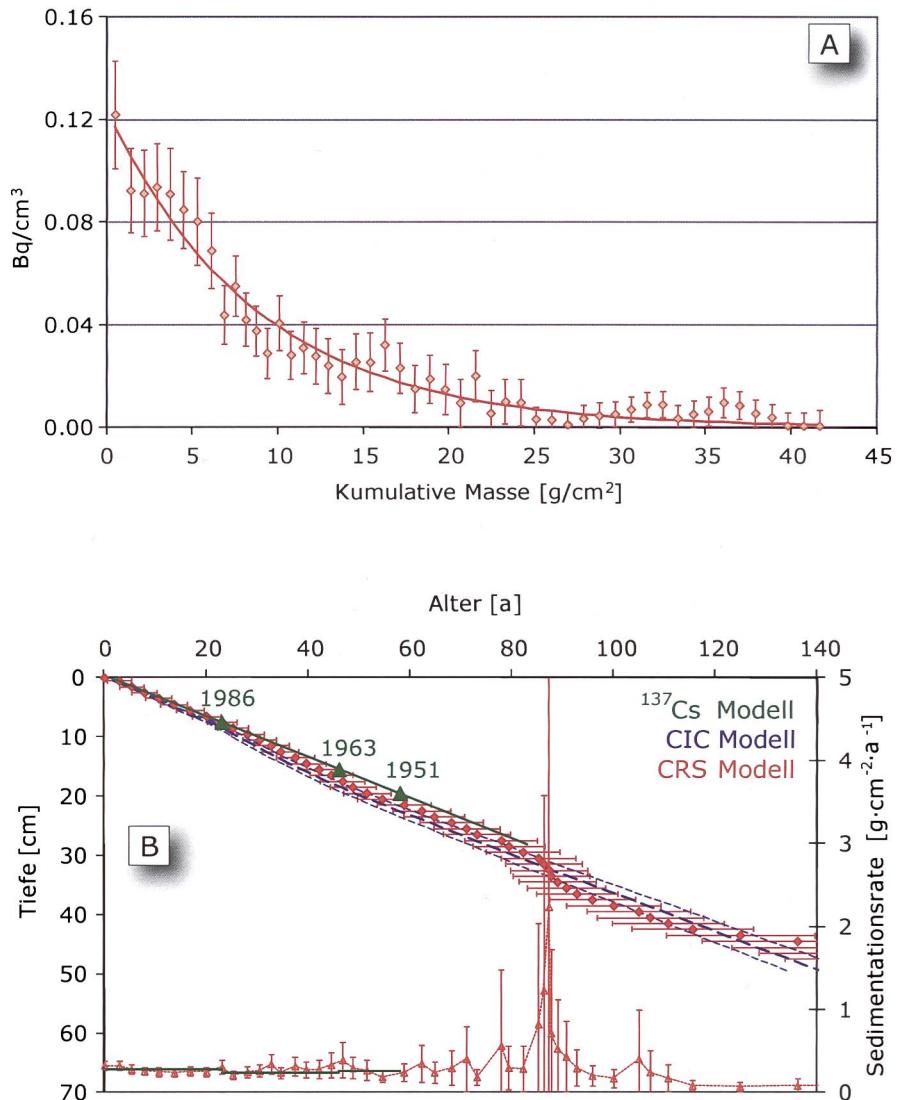
Abbildung 3 zeigt die Tiefenverteilung von ^{210}Pb im Sediment des Brienzersees. ^{210}Pb kann auf zwei verschiedenen Wegen in die Sedimente gelangen. Einerseits wird es in der Atmosphäre aus ^{222}Rn ($T_{1/2} = 3.8$ Tage) gebildet und durch Niederschläge mit einer ungefähr konstanten Rate als sogenanntes „unsupported“ ^{210}Pb in die Sedimente eingetragen. Andererseits wird es kontinuierlich aus ^{226}Ra als sogenanntes „supported“ ^{210}Pb in den Sedimenten produziert. Die Aktivität des „supported“ ^{210}Pb

kann unter Voraussetzung von radioaktivem Gleichgewicht anhand einer ^{226}Ra Tochter (^{214}Pb oder ^{214}Bi) gemessen werden und muss für die Bestimmung des „unsupported“ ^{210}Pb von der totalen ^{210}Pb Aktivität subtrahiert werden. Im Idealfall würde die «unsupported» ^{210}Pb Aktivitätskonzentration aufgrund der relativ kurzen Halbwertszeit von ^{210}Pb ($T_{1/2} = 22.3$ Jahre) exponentiell mit der Tiefe abnehmen (Um negative Aktivitätskonzentrationen zu vermeiden, wurde in den Abbildungen 3 und 4 unterhalb einer Tiefe von 31 cm der gleitende arithmetische Mittelwert von jeweils drei Schichten gebildet). Je nach Sediment können unterschiedliche Faktoren die ideale Sedimentation stören (z.B. unterschiedliche Sedimentationsgeschwindigkeiten, Turbidite, ^{210}Pb Verluste in den obersten Sedimentschichten). Auswertungen unter Berücksichtigung dieser Faktoren sind im Gang.

In Abbildung 3 musste noch eine deutliche Korrektur angebracht werden, um das „supported“ ^{210}Pb zu bestimmen: Es handelt sich um den oberen Teil des Balkens des „supported“ ^{210}Pb . Um diese Korrektur zu berechnen, wurde in einem „Least Squares Fit“ eine Exponentialfunktion plus einer Konstanten an die totalen ^{210}Pb -Werte angepasst. Die Differenz dieser Konstanten zum Mittelwert der „supported“ ^{210}Pb -Werte ergab diese Korrektur. Notwendig wurde sie, da die Selbstabsorption der 46.5 keV-Linie des ^{210}Pb unter Annahme eines Standard-Sedimentes berechnet wurde und da es zu ^{222}Rn -Verlusten kam, da die Proben noch nicht in Alu-Folie versiegelt waren. Mittlerweile wird der Massenschwächungskoeffizient jedes Sedimentes mit Hilfe einer ^{241}Am -Punktquelle (59.5 keV) und einem Bleikollimator direkt bestimmt. Die Zusammensetzung des Standard-Sedimentes wird dann leicht variiert, bis der gemessene Massenschwächungskoeffizient reproduziert wird. Weiterhin werden mittlerweile alle Sedimentproben in Alu-Folie versiegelt. Dies führt dazu, dass in Sedimenttiefen von 50 bis 100 cm die Differenz aus totalem und „supported“ ^{210}Pb tatsächlich praktisch bis auf Null abfällt und somit keine Korrekturen mehr notwendig sind.

In Abbildung 4A ist die Tiefenverteilung des „unsupported“ ^{210}Pb im Sediment des Brienzersees (BS09-LS1) über der kumulierten Masse dargestellt. Auf diese Weise ist die Verteilung unabhängig von einer zunehmenden Kompaktierung (Verdichtung) des Sedimentes. Die exponentielle Abnahme der Aktivitätskonzentration wird durch einen Fit einer Exponentialfunktion an die Messdaten verdeutlicht.

Abbildung 4B zeigt die Tiefen-Alters-Relationen, die anhand von verschiedenen Modellen bestimmt wurden. Das ^{137}Cs -Modell besteht aus den Messpunkten

**Abbildung 4A:**

Tiefenverteilung des korrigierten unsupported ^{210}Pb im Sediment des Brienzersees (BS09-LS1) über der kumulierten Masse und Fit einer Exponentialfunktion an die Daten.

Abbildung 4B:

Vergleich der Tiefen-Alters-Relationen nach den ^{137}Cs -, CIC-, und CRS-Modellen (obere Kurven) und Sedimentationsraten nach dem ^{137}Cs - und CRS-Modell (untere Kurve).

1951 (Beginn eines signifikanten atmosphärischen Fallouts), 1963 (Maximum des Fallouts) und 1986 (Tschernobylfallout).

Das CIC-Modell nach Appleby (Constant Input Concentration) geht davon aus, dass ^{210}Pb zeitlich mit einer konstanten Rate in das Sediment eingetragen wird und dass die Sedimentationsrate ebenfalls zeitlich konstant ist. Damit folgt aus der Exponentialfunktion in Abbildung 4A die Gerade der Tiefen-Alters-Relation in Abbildung 4B.

Das CRS-Modell nach Appleby (Constant Rate Supply) geht auch davon aus, dass ^{210}Pb zeitlich mit

einer konstanten Rate in das Sediment eingetragen wird, lässt aber eine zeitliche Variation der Sedimentationsrate zu. Die Berechnung der Tiefen-Altersbeziehung nach dem CRS-Modell wird in Appleby, P. G. und Oldfield, F., 1978, dargestellt. Mit Hilfe des CRS-Modells lässt sich auch die Sedimentationsrate bestimmen. Sie ist ebenfalls in Abbildung 4B sowohl für das ^{137}Cs -Modell in grün, als auch für das CRS-Modell in Orange dargestellt.

Sowohl für die Tiefen-Alters-Relationen als auch für die Sedimentationsraten ergeben sich ziemlich gute Übereinstimmungen, was auf relativ konstante Sedimentationsprozesse schließen lässt.

Nach Versiegelung aller Proben in Alufolie und experimenteller Bestimmung des Massenschwächungskoeffizienten des Sedimentes lassen sich die Tiefen-Alters-Relationen und die Sedimentationsraten sicherlich noch weiter präzisieren.

Abbildung 5 zeigt die Isotopenverhältnisse von ^{240}Pu , ^{241}Pu und ^{241}Am zu ^{239}Pu als Funktion der Tiefe im Sediment des Brienzersees. Die Konzentrationen von Plutoniumisotopen sind sehr klein. So liegen die ^{240}Pu Konzentrationen in den obersten Schichten im Bereich von 10^{-14} g/g. Durch die sehr spezifische Abtrennung der Plutoniumfraktionen in den Proben und die extreme Empfindlichkeit ist es möglich, solch kleine Konzentrationen massenspektrometrisch zu messen. Das Isotopenverhältnis von $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ zeigt für jede Sedimentschicht einen Wert um 0.18, welcher typisch ist für Global Fall-out Plutonium aufgrund der Kernwaffentests. Für Plutonium aus dem Tschernobylreaktor würde man ein Verhältnis von 0.4 erwarten. Obwohl die Unsicherheit aufgrund der kleinen Plutoniumkonzentrationen in den oberen Sedimentschichten zunimmt, reicht die Genauigkeit aus um Aussagen über die Herkunft des Plutoniums zu machen.

Die ^{241}Pu Konzentrationen sind noch kleiner und liegen im Bereich von 10^{-15} g/g. Da man sich im Bereich der Nachweissgrenzen bewegt, sind die relativen Standardabweichungen entsprechend gross. In den vier Sedimentschichten der 60iger Jahre sinkt das Isotopenverhältnis von $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ mit zunehmender Tiefe. Nimmt man an, dass bei den

Atomwaffentests Plutonium mit konstantem Isotopenverhältnis in die Umwelt eingetragen wurde, so erwartet man aufgrund der Halbwertszeit von ^{241}Pu ($T_{1/2} = 14.35$ Jahre) tatsächlich eine Abnahme des Isotopenverhältnisses mit der Zeit. Unter der weiteren Annahme einer konstanten Sedimentationsgeschwindigkeit wurde mit einem exponentiellen Fit die Sedimentationsgeschwindigkeit für diese Schichten zu 0.24 cm/a berechnet. Die Sedimentationsgeschwindigkeit ist damit ca. 30% kleiner als die durchschnittliche Sedimentationsgeschwindigkeit der ersten 20 Schichten (Tabelle 3), ist aber aufgrund der grossen Unsicherheiten doch erstaunlich nah am Durchschnittswert, zumal man aufgrund der grösseren Rohdichten in den tieferen Sedimentschichten kleinere Sedimentationsgeschwindigkeiten erwarten würde.

Da mittlerweile bereits über 90% des ursprünglich eingetragenen ^{241}Pu in ^{241}Am zerfallen ist, erwartet man für das Aktivitätsverhältnis von $^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu}$ nur eine geringe Zunahme in diesen Sedimentschichten. Aufgrund der grossen Unsicherheiten kann diese Zunahme nicht nachgewiesen werden.

Die Plutonium Isotopenzusammensetzung wird von den beiden Isotopen ^{239}Pu ($T_{1/2} = 2.411 \cdot 10^4$ Jahre) und ^{240}Pu ($T_{1/2} = 6'563$ Jahre) dominiert und ändert sich nur leicht aufgrund des Zerfalls von ^{241}Pu ($T_{1/2} = 14.35$ Jahre). Tabelle 2 zeigt die Isotopenverhältnisse der 4 Sedimentschichten des Brienzersee. Aufgrund der unterschiedlichen Halbwertszeiten der Pu Isotope unterscheiden sich jedoch die Aktivi-

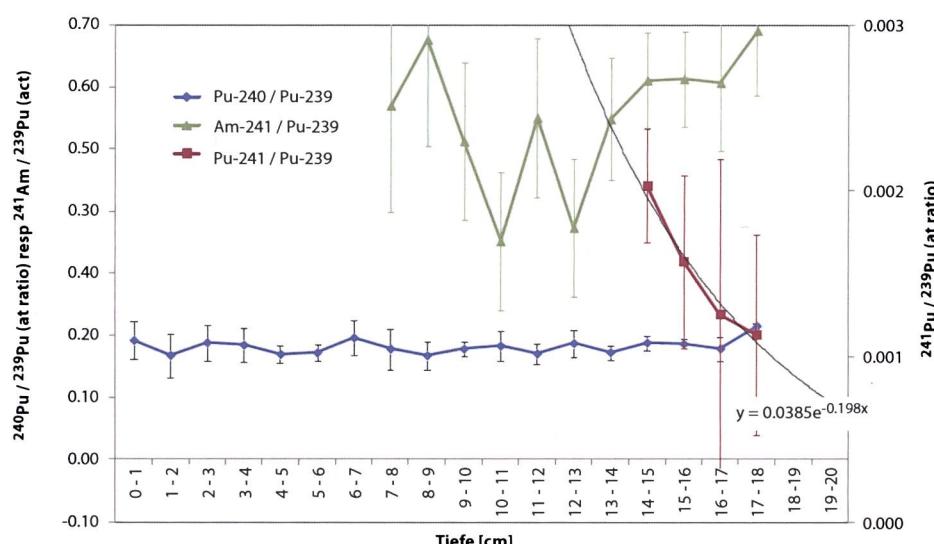


Abbildung 5:

Tiefenverteilung von Isotopenverhältnissen im Sediment des Brienzersees (BS09-LS1). Die Isotopenverhältnisse beziehen sich auf das Probenahmedatum (für ^{241}Pu genaugenommen auf das Datum der Trennung (8.6.2010).

tätsverhältnisse deutlich. So wurden in der Schicht 16 - 17 cm für die Plutonium Isotope ^{239}Pu , ^{240}Pu und ^{241}Pu Aktivitätskonzentrationen von 4.6, 3.1 und 15 Bq/kg bestimmt. Zurückgerechnet auf die 60iger Jahre ergibt das eine ca. 10-mal höhere ^{241}Pu Konzentration. Gemäss der Strahlenschutzverordnung liegen die Freigrenzen der Alpha Strahler ^{239}Pu und ^{240}Pu bei 40 Bq/kg und für den Betastrahler ^{241}Pu bei 2'000 Bq/kg. Die Freigrenzen wurden bezüglich Pu also auch während den 60iger Jahren nicht überschritten. Für ^{137}Cs ($T_{1/2} = 30.17$ Jahre) lagen die auf die 60iger Jahre zerfallskorrigierten Aktivitäten auch alle unter der Freigrenze von 800 Bq/kg.

Tabelle 2:
Isotopenzusammensetzung in 4 Sedimentschichten des Brienzensee. Die Zusammensetzung bezieht sich auf das Datum der Plutonium Abtrennung (8.6.2010).

Sedimentschicht [cm]	^{239}Pu [%]	^{240}Pu [%]	^{241}Pu [%]
14 - 15	84.0 ± 0.8	15.8 ± 0.8	0.17 ± 0.03
15 - 16	84.2 ± 0.6	15.7 ± 0.6	0.13 ± 0.04
16 - 17	84.7 ± 1.4	15.2 ± 1.4	0.11 ± 0.07
17 - 18	82.2 ± 0.4	17.7 ± 0.4	0.09 ± 0.04

Tabelle 3 zeigt die berechneten Sedimentationsraten und die pro Flächeneinheit eingetragenen Aktivitäten. Der Tschernobyl Anteil an der Gesamtaktivität wurde aufgrund der Abbildung 2 berechnet. Alle ^{137}Cs Einträge unterhalb des Tschernobylpeaks wurden dem Global Fallout der Kernwaffentests zugeordnet. Der so bestimmte Tschernobylanteil stimmt ziemlich gut überein mit den Anteilen die anhand von Bodenprofilen von La-Chaux-de-Fonds und La-Fouly im Jahresbericht 2008 analysiert wurden. Bei den Bodenprofilen wurde der Anteil anhand des Aktivitätsverhältnisses von $^{137}\text{Cs}/^{239}\text{Pu}$ bestimmt. Erstaunlicherweise lässt sich diese Methode nicht auf den Gesamteintrag in die Seen anwenden: Für Global Fallout aufgrund der Kernwaffentests erwartet man ein Aktivitätsverhältnis für $^{137}\text{Cs}/^{239}\text{Pu}$ von 47.2 für das Jahr 2009. Dieses Verhältnis wird durch die ^{137}Cs -Einträge aufgrund des Reaktorunglücks in Tschernobyl erhöht. Das $^{137}\text{Cs}/^{239}\text{Pu}$ Verhältnis des Brienzensees lag mit 47.8 nur unwe-

sentlich höher. Für den Vierwaldstättersee lag das Verhältnis bei 53.7, was einem Tschernobyleintrag von nur ca. 14% entsprechen würde. Für den Thunersee lag das Verhältnis mit 40.9 sogar unter dem Wert von 47.2. Es wird also in einem Seesediment im Vergleich zu einem Bodenprofil mehr ^{137}Cs , oder weniger ^{239}Pu eingetragen. Ein unterschiedliches Migrationsverhalten aufgrund der chemischen Eigenschaften könnte dafür verantwortlich sein.

Danksagung

Wir danken Flavio Anselmetti und Alois Zywyssig von der Gruppe Sedimentologie der EAWAG für das Stechen und die Beprobung der Sedimentkerne.

Referenzen

- Appleby, P. G. und Oldfield, F., 1978. The Calculation of Lead-210 Dates Assuming a constant Rate of Supply of Unsupported Pb-210 to the Sediment. CATENA, Vol. 5, pp. 1 – 8.
- Putyrskaya, V. und Klemt, E., 2007. Modeling ^{137}Cs migration processes in lake sediments. J. Environ. Radioact. 96, 54–62.
- Röllin, S., Sahli, H., Holzer, R., Astner, M., Burger, M., 2009. Pu and Np analysis of soil and sediment samples with ICP-MS. Applied Radiation and Isotopes 67, 821-827.

	Durchschnittliche Sedimentationsgeschwindigkeit [cm/a]	^{239}Pu [Bq/m ²]	^{137}Cs [Bq/m ²]	Anteil der ^{137}Cs Aktivität aus Tschernobyl [%]
BS09-LS1	0.34	191 ± 3	$9'134 \pm 158$	44
TS-09-03-2	0.41	77.2 ± 1.2	$3'161 \pm 18$	30
VS-09-012-2	0.74	147 ± 2	$7'901 \pm 27$	36