

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: - (2013)

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: 15.02.2026

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 2013
Résultats 2013



4

Umwelt Environnement



Inhaltverzeichnis / Sommaire

| | |
|--|-----------|
| 4.1 Radioaktivität in der Luft und im Niederschlag | 53 |
| Zusammenfassung | 53 |
| Luft | 53 |
| Niederschlag | 56 |
| 4.2 RADAIR | 57 |
| Résumé | 57 |
| Introduction | 57 |
| Principe de mesure | 58 |
| Les modifications apportées en 2013 | 58 |
| Les résultats de mesure | 60 |
| 4.3 Überwachung der Radioaktivität der Luft mit Militärflugzeugen | 62 |
| Zusammenfassung | 62 |
| Vorgeschichte | 62 |
| Sammlung der Proben | 63 |
| Messung der Proben | 64 |
| 4.4 Radioaktivität in aquatischen Systemen | 65 |
| Zusammenfassung | 65 |
| Ziele | 65 |
| Methoden | 65 |
| Ergebnisse | 67 |
| Langfristige Entwicklung der Radionuklidabgaben und Frachten in Aare und Rhein | 68 |
| Partikelpollen | 68 |
| Fische | 70 |
| Wasserpflanzen | 70 |
| Grundwasser | 70 |
| Allgemeine Überwachung | 71 |
| 4.5 Radionuklide in Sedimenten des Bielersees | 72 |
| Einleitung | 72 |
| Sedimentkerne als Archive | 72 |
| Probenahme und Aufarbeitung | 73 |
| Messresultate | 73 |
| 4.6 Radioactivité du sol et de l'herbe | 78 |
| Résumé | 78 |
| Introduction | 78 |
| Résultats et discussion | 79 |
| Analyse des sols aux alentours de la centrale nucléaire de Leibstadt | 81 |
| Conclusions | 81 |
| 4.7 Risikoabschätzung zum Eintrag von Uran aus Düngern ins Grundwasser in der Schweiz | 82 |
| Zusammenfassung | 82 |
| Einleitung | 83 |
| Gesetzliche Grundlagen, Trinkwasserhöchstwerte | 83 |
| Urankonzentrationen in Schweizer Grundwässern | 85 |
| Niederschlag in der Schweiz, Oberflächenabfluss, Evapotranspiration, Infiltration | 86 |
| Geogene Uranquellen | 86 |
| Anthropogene Uranquellen | 87 |
| Geochemie des Urans | 88 |
| Abschätzung des Eintrags von Uran über Mineraldünger ins Grundwasser in der Schweiz | 88 |

4.1

Radioaktivität in der Luft und im Niederschlag

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

Sektion Umweltradioaktivität, URA / BAG, 3003 BERN

Zusammenfassung

Die Messungen der Überwachung der Radioaktivität in der Luft und im Niederschlag haben im Jahr 2013 keine erhöhten Werte gezeigt, welche eine Gefährdung der Gesundheit der Bevölkerung dargestellt hätten. In diesen Umweltkompartimenten überwiegt der Anteil an natürlicher Radioaktivität deutlich. Dank der grossen Empfindlichkeit der verwendeten Messmethoden konnten trotzdem kleinste Spuren von künstlichen Radionukliden auf den Aerosol-Partikeln nachgewiesen werden. Im Wesentlichen handelt es sich dabei um ^{137}Cs , welches noch aus den alten Ablagerungen während der Atomwaffenversuche der 50-er und frühen 60-er Jahren und des Reaktorunfalles von Tschernobyl stammt. Alle gemessenen Konzentrationen von künstlichen Gamma- und Alpha-Strahlern liegen um viele Grössenordnungen tiefer als die entsprechenden Immissionsgrenzwerte aus der Strahlenschutzverordnung (StrSV).

Im Niederschlag, d.h. in Regen und Schnee, wurden 2013 mit Ausnahme von Tritium und sporadischen Spuren von ^{137}Cs keine künstlichen Radionuklide nachgewiesen. Die Tritiumkonzentrationen in der unmittelbaren Umgebung von Tritium-verarbeitender Industrie erreichten im Maximum 5% des Immissionsgrenzwertes der StrSV für öffentlich zugängliche Gewässer. Beim ^{137}Cs lagen auch die höchsten Konzentrationen um mindestens einen Faktor 1'000 unterhalb des Immissionsgrenzwertes.

Luft

Probenahme und Messung

Das BAG sammelt Aerosolpartikel mit sogenannten High-Volume-Samplern (HVS) an 6 Stationen in der Schweiz (siehe Tabelle 1). Bei den HVS Stationen wird fortlaufend Luft gefiltert (rund 100'000 m³ pro Woche). Einmal in der Woche werden die Filter gewechselt und zur Analyse ans BAG gesandt. Im Labor werden sie zur Messung vorbereitet und während 2 Tagen auf einem HPGe-Gammaspektrometer gemessen. Die lange Messzeit ist nötig, weil die Konzentration der radioaktiven Stoffe sehr tief ist. Anschliessend werden die Messresultate in der Datenbank validiert und gleichzeitig auf www.bag.admin.ch/hvs veröffentlicht.

Ziel der HVS Messungen ist nicht die schnelle Alarmierung (dafür gibt es Radair, MADUK und NADAM) sondern der Nachweis von kleinsten Spuren, die von den anderen Messsystemen nicht detektiert werden. Die Erfahrung, besonders im Jahr 2011 nach dem Reaktorunfall in Fukushima-Daiichi, hat gezeigt, dass für eine glaubwürdige Information der Bevölkerung und von öffentlichen Institutionen eine präzise Messung der tatsächlich vorhandenen Radioaktivität unverzichtbar ist.

Neben den HVS-Filtern betreibt das BAG Mittelvolumen-Filter (MV), welche ein 10 bis 20 Mal geringeres Luftvolumen filtrieren und damit entsprechend höhere Nachweisgrenzen haben. Die MV-Sammler sind zur Überwachung der Kernkraftwerke bei Gösigen, Leibstadt, Mühleberg und PSI/Beznau stationiert, wobei der letztgenannte vom PSI betrieben und gemessen wird. Ein weiterer MV-Sammler steht für die Überwachung der freien Atmosphäre bei der Hochalpinen Forschungsstation Jungfrauoch. Die Filter der MV-Sammler werden wöchentlich gewechselt und als Monatsprobe (4 - 5 Filter) gammaspektrometrisch gemessen.

Tabelle 1:
HVS-Stationen des BAG

| Station | H.ü.M. | Gemeinde | Umgebung | Bemerkung |
|---------|--------|--------------|---------------------------|---|
| CAD | 203 m | Cadenazzo | Landwirtschaft | Referenzstation für die Alpensüdseite |
| CERN | 428 m | Meyrin | Landwirtschaft, Stadtnähe | Nähe CERN, zur Erfassung eventueller Abgaben aus den Beschleunigern |
| GUT | 440 m | Güttingen | Landwirtschaft, Bodensee | Referenzstation für das östliche Mittelland |
| KLI | 315 | Klingnau | ländlich, Stausee | im Einflussbereich der KKW Beznau und Leibstadt |
| LBF | 560 | Köniz | städtisch, Agglomeration | am Standort des BAG |
| POS | 640 | Hauterive FR | Landwirtschaft | Referenzstation für das westliche Mittelland |

Künstliche Radioisotope in der Luft

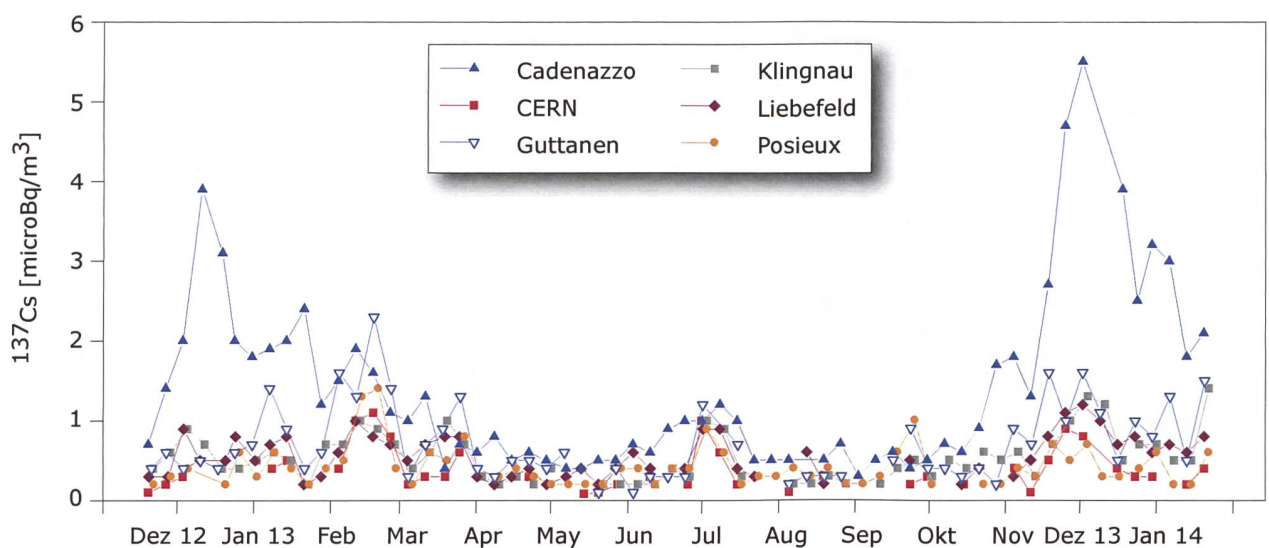
Als einziges künstliches Radioisotop war im Jahr 2013 das ^{137}Cs regelmässig nachweisbar (siehe Fig. 1). Dies allerdings in sehr geringen Konzentrationen von einem bis zwei Millionstel des Grenzwertes oder weniger. Die höchsten Werte von bis zu $5 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ wurden im Dezember für die Station Cadenazzo gemessen (der Grenzwert für ^{137}Cs ist $3'300'000 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$). Etwas höhere ^{137}Cs Konzentrationen in den Wintermonaten sind typisch für alle HVS-Stationen und sind wahrscheinlich durch aufgewirbelte Bodenpartikel in der vegetationsarmen Zeit erklärbar. Weil die Böden im Kanton Tessin nach Tschernobyl stärker kontaminiert wurden als im Mittelland erklärt diese Hypothese auch die etwas höheren Werte der Station Cadenazzo.

Beim HVS CERN konnten im Berichtsjahr keine Spuren von ^{24}Na nachgewiesen werden (typische Nachweisgrenze: $70 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$). Messbare Spuren von diesem Radioisotop (125 und $150 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$) wurden dagegen in 2 Filtern aus Klingnau festgestellt. Auch diese Werte liegen deutlich unterhalb des Immissionsgrenzwertes von $100 \text{ Bq}/\text{m}^3$ (d.h. die Messwer-

te betragen ca. 1 Millionstel des Grenzwertes). Die Halbwertszeit von ^{24}Na ist 15h und die berechneten Aktivitäten beruhen auf der Annahme einer über die gesamte Sammelzeit konstanten Konzentration in der Luft.

Beim ^{131}I lagen 2013 alle gemessenen Werte unterhalb von $1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$.

Plutonium- Isotope wurden 2013 an zwei Sammelproben von HVS-Filtern der Station Liebefeld bestimmt - eine Probe mit Filtern vom Frühling und eine Probe mit Filtern vom Winter. Die Summe der Alphastrahler ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu und ^{241}Am ergab 0.8 nano-Becquerel pro m^3 Luft (nBq/m^3) im Winter und $1 - 5 \text{ nBq}/\text{m}^3$ im Frühling. Diese Konzentrationen der künstlichen Alphastrahler sind sehr tief und liegen wie beim ^{137}Cs Grössenordnung eine Million Mal tiefer als der Immissionsgrenzwert. Erwähnenswert ist auch, dass die Konzentrationen von künstlichen Radionukliden in Stratosphärenluft bis zu tausend Mal höher sein können als in der bodennahen Luft. Die Erklärung dafür ist die lange Aufenthaltsdauer von kleinsten Aerosolpartikel mit



Figur 1:
 ^{137}Cs Konzentrationen bei allen HVS Stationen für das Jahr 2013.

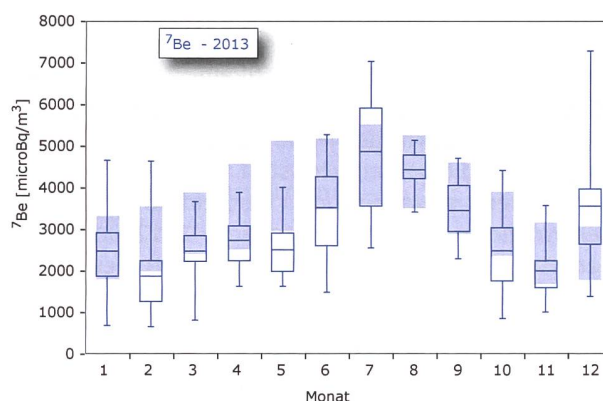
Radionukliden von den oberirdischen Atomwaffentests (Referenz 1).

Die Resultate der MV-Filter in der Umgebung der Kernkraftwerke zeigen keine erhöhten Werte im Vergleich zu den HVS-Filtern und werden im Kapitel 8.5 näher besprochen.

Natürliche Radioisotope in der Luft

Die 2013 auf den HVS Filtern gemessenen Radioisotope sind fast ausschliesslich natürlicher Herkunft. Das langlebige Radonfolgeprodukt ^{210}Pb und das kosmogene, in hohen Schichten der Atmosphäre gebildete ^7Be sind vorherrschend. Die Konzentration von ^{210}Pb lag im üblichen Bereich von 0.1 bis 1.4 mBq/m³ (Mittelwert 0.5 mBq/m³); die Konzentrationen für ^7Be schwankten zwischen 0.7 und 7.3 mBq/m³ (Mittelwert 3.0 mBq/m³).

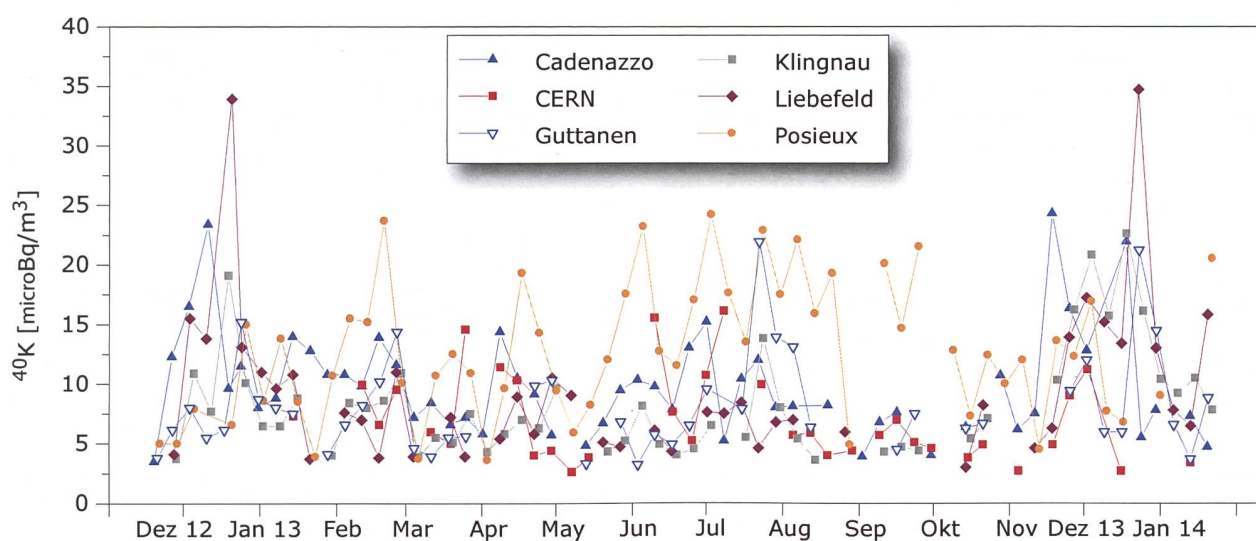
Neben ^7Be ist in kleinsten Spuren von meist weniger als einem µBq/m³ das ebenfalls kosmogene ^{22}Na nachweisbar. Die Figur 2 zeigt für jeden Monat die Verteilung der ^7Be Konzentrationen aller Stationen im Vergleich mit dem langjährigen Jahresverlauf. Dieser Vergleich zeigt, dass im Frühling 2013 (März bis Mai) der erwartete Anstieg der ^7Be Konzentrationen ausblieb. Der Frühling 2013 zeichnete sich meteorologisch durch einen „Sonnenarmuts-Rekord“ aus (siehe MeteoSchweiz-Klimabulletin Jahr 2013). Das fehlende Erwärmen der tiefen Luftschicht hatte offenbar zur Folge, dass in diesem Frühling der Austausch zwischen der oberen Troposphäre und bodennaher Luft relativ schwach war und dass so nur wenig ^7Be reiche Luft an die Erdoberfläche gelangte. Die Sonnenarmut des Frühlings wurde im „extrem sonnigen Hochsommer“ (Meteo-



Figur 2: Boxplot der monatlichen ^7Be Konzentrationen bei allen HVS Stationen. Die Box umfasst 50% aller Messwerte, die horizontale Linie in der Box entspricht dem Mittelwert und die „whiskers“ gehen zu Minimum und Maximum. Die ausgefüllten Boxen gelten für die langjährigen Monatsmittel (1994-2011) [Referenz 2].

Schweiz-Klimabulletin) ausgeglichen. Durch die hohen Sommertemperaturen verstärkte sich die konvektive vertikale Durchmischung der Troposphäre stark, so dass nun ^7Be aus den hohen Schichten bis nach unten gelangte und die ^7Be Messwerte ein übliches Niveau erreichten. Weiter fällt in Figur 2 auf, dass im Dezember deutlich höhere ^7Be Konzentrationen gemessen wurden, als aufgrund des langjährigen Mittels erwartet werden konnte. Dies wiederum passt zu den im Klimabulletin von MeteoSchweiz berichteten „Dezember-Sonnenscheinrekorden“.

Als weiteres natürliches Radioisotop findet sich in den HVS Filtern oft auch ^{40}K (Fig. 3). Es fallen die etwas höheren Werte der Station Posieux auf, ver-



Figur 3: ^{40}K Konzentrationen bei allen HVS Stationen im Jahr 2013.

ursacht durch lokale Einflüsse der dortigen landwirtschaftlichen Forschungsstation (z.B. erhöhte Resuspension von Bodenpartikeln; eventuell erhöhter Eintrag von Düngestaub durch entsprechende Arbeiten in der Nähe des Luftfilters). Interessant sind die beiden höchsten ^{40}K Werte in Fig. 3: Sie wurden bei der Station Liebefeld an den Filtern der Woche mit der Neujahrsnacht 2012 und 2013 gemessen. Das Kaliumnitrat aus dem Feuerwerk hinterlässt also seine Spuren in den Filtern dieser stadtnahen Station.

Niederschlag

Messungen von Gammastrahlern

Im Berichtsjahr 2013 wurde an folgenden Sammelstationen kontinuierlich Niederschlag gesammelt und monatlich gammaspektrometrisch gemessen: Umgebung der Kernkraftwerke Mühleberg, Leibstadt, Gösgen und Beznau, Umgebung PSI/ZWILAG sowie Posieux FR, Güttingen TG, Cadenazzo TI, Cernier NE und Davos GR. Mit Ausnahme von sporadischen Spuren von ^{137}Cs (alle Werte kleiner als 1 mBq/l) konnten in Regen und Schnee keine künstlichen Radioisotope nachgewiesen werden. Zur Erinnerung: der Immissionsgrenzwert der StrSV für ^{137}Cs in öffentlich zugänglichen Gewässern liegt bei 16 Bq/l. Für das natürliche ^7Be wurden Werte zwischen 0.1 und 2.2 Bq/l gemessen. Diese Resultate werden auch in Kapitel 8.5 besprochen.

Tritium-Messungen

Für die Niederschlagsproben der Referenzstationen Posieux, Güttingen und Cadenazzo lagen praktisch alle Tritiumkonzentrationen unterhalb der Nachweisgrenze von 2 Bq/l. Zwei Messwerte aus Posieux lagen mit 2 und 2.6 Bq/l knapp darüber. Diese beiden Werte liegen geringfügig oberhalb der natürlichen Tritiumkonzentrationen in Regen von 0.1 - 0.6 Bq/l. Als Ursache kommen immer noch vorhandenes Tritium aus den Atomwaffenversuchen der frühen 60-er Jahre oder Spuren von Tritium aus der Industrie in Frage.

Tritium-Messungen an Regenproben aus der Umgebung der Kernkraftwerke, dem PSI und dem ZWILAG ergaben ebenfalls meist Messwerte unterhalb der Nachweisgrenze von 2 Bq/l, wobei auch höhere Werte auftraten, mit einem Maximum von 23 Bq/l im November beim PSI. Alle gemessenen Konzentrationen liegen sehr deutlich unterhalb der gesetzlichen Grenzwerte (siehe Kapitel 8.5).

Höhere Tritiumwerte - aber immer noch sehr klar unterhalb der Grenzwerte - zeigte die Überwachung

von Tritium-verarbeitender Industrie. Nahe bei den betroffenen Standorten in Teufen AR und Niederwangen BE enthält das Regenwasser zwischen 8 und 680 Bq/l Tritium mit einem Mittelwert von rund 100 Bq/l. Die Höchstkonzentration entspricht rund 5% des Immissionsgrenzwertes der StrSV für öffentlich zugängliche Gewässer und sind damit etwas tiefer als in früheren Jahren. Ausführlicher werden die Tritium-Resultate in Kapitel 9.3 besprochen.

Referenzen

- [1] Corcho Alvarado, J.A., Steinmann, P., Estier S., Bochud F., Haldimann M. & Froidevaux P., 2014. Anthropogenic radionuclides in atmospheric air over Switzerland during the last few decades. *Nature communications*. 10.1038/ncomms4030.
- [2] Steinmann, P., Zeller, M., Beuret, P., Ferreri, G., Estier, S., 2013. Cosmogenic ^7Be and ^{22}Na in ground level air in Switzerland (1994e2011). *Journal of Environmental Radioactivity* 124, 68-73.

4.2 RADAIR

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

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

Résumé

Les résultats des mesures de la radioactivité dans l'air réalisées en continu par le réseau automatique de surveillance RADAIR exploité par l'Office Fédéral de la Santé Publique n'ont mis en évidence aucune valeur susceptible de représenter un danger pour la santé de la population. Dans ce compartiment environnemental, la radioactivité d'origine naturelle domine nettement, et aucune activité β d'origine artificielle supérieure à la limite de détection de 50 à 150 mBq/m³ n'a été enregistrée en 2013 par les collecteurs d'aérosols. Les concentrations d'¹³¹I gazeux sont elles aussi restées inférieures aux limites de détection de 50 - 60 mBq/m³.



Introduction

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 m³/h) et est principalement dédié à la surveillance des centrales nucléaires (Gösgen-Däniken, Leibstadt et Mühleberg), ainsi qu'à la surveillance de sites en altitude (Jungfrauoch). Le deuxième, d'une très grande sensibilité, est constitué de collecteurs d'aérosols à haut débit (env. 500 m³/h) situés à Posieux/FR, Cadenazzo/TI, Güttingen /TG, au CERN/GE et à Klingnau/AG. 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. 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 des résultats est donc de quelques jours. En revanche, 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. Les résultats des mesures des filtres aérosols des collecteurs à haut débit sont détaillés au chapitre 4.1.

Le réseau RADAIR, quant à lui, 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 collectés par la centrale de gestion des données toutes les 30 minutes. Le présent chapitre détaille les résultats des mesures enregistrées par le réseau RADAIR au cours de l'année 2013.

Principe de mesure

Le principe de mesure part de l'hypothèse que les activités α totales mesurées dans l'environnement sont d'origine naturelle, à savoir qu'elles proviennent du gaz radon émanant du sol ainsi que de ses produits de filiation. A cette activité α naturelle ($A_{\text{nat}} = A_{\text{tot}}$) est, en tout temps, associée une activité β naturelle, B_{nat} . Le rapport entre les activités $A_{\text{tot}} = A_{\text{nat}}$ et B_{nat} est supposé constant pour une station donnée et est noté F . Il est appelé facteur de compensation α/β .

En cas d'incident libérant de la radioactivité dans l'atmosphère, l'activité β totale mesurée, comprendra, en plus de la part naturelle, une contribution d'origine artificielle que nous cherchons à déterminer. L'activité β artificielle moyenne normée (B_{art}), qui constitue la véritable grandeur d'intérêt, est ainsi calculée à l'aide d'un algorithme de compensation qui soustrait la part naturelle de l'activité β ($B_{\text{nat}} = A_{\text{tot}}/F$) à l'activité β totale (B_{tot}) mesurée:

$$B_{\text{art}} = B_{\text{tot}} - (A_{\text{tot}} / F)$$

Une alarme est déclenchée si la valeur de l'activité β artificielle calculée dépasse un seuil prédéfini.

Dans la pratique, toutefois, il apparaît que le facteur F n'est pas véritablement constant pour une station donnée mais fluctue (en moyenne entre 0.65 et 0.85) quotidiennement ainsi qu'en fonction de la saison et des conditions météorologiques.

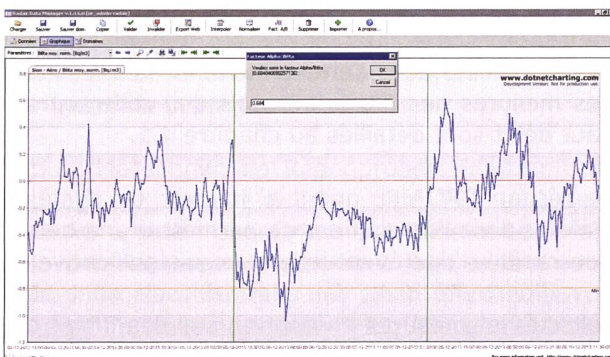
Jusqu'en 2011, une valeur constante du facteur F , dépendante du site et modifiée périodiquement par un administrateur système était utilisée. Dès 2012, les moniteurs ont été progressivement équipés d'un nouveau logiciel permettant d'adapter en permanence ce facteur F pour prédire au mieux

la composante naturelle du rayonnement β (B_{nat}) en tenant compte des fluctuations saisonnières et quotidiennes du site de mesure. Le but étant, d'une part d'automatiser la mesure le mieux possible et d'autre part d'améliorer la sensibilité. Pour cela, le moniteur effectue la moyenne glissante des n ($n > 10$) derniers rapports pour autant que ce dernier soit compris entre des valeurs seuils (0.6 et 0.9). Ce rapport moyen donnera le facteur F_m avec lequel la concentration β artificielle de la mesure en cours sera calculée.

Les moniteurs FHT59S, appelés aussi moniteurs $\alpha\beta$, sont aujourd'hui tous équipés de la nouvelle version du logiciel de mesure avec compensation automatique du facteur α/β (F_m). Ce nouveau principe de calcul offre un abaissement de la limite de détection, jusqu'à un facteur 2 suivants les sites, par rapport à la méthode manuelle. Une autre conséquence de ce nouveau principe est la diminution du nombre des pré-alarmes de niveau 1, c'est-à-dire des dépassements de la concentration β actuelle d'origine naturelle $> 5 \text{ Bq/m}^3$, en particulier lors de brusques variations de la concentration alpha. Si la méthode automatique de compensation ne donnait pas satisfaction sur une certaine période, la méthode manuelle de compensation existe toujours. Les administrateurs peuvent en effet gérer manuellement les données directement depuis la centrale à l'aide d'un logiciel. Celui-ci permet entre autre de recalculer la concentration bêta artificielle moyenne avec un autre facteur de compensation que celui d'origine (voir Figure 1).

Les modifications apportées en 2013

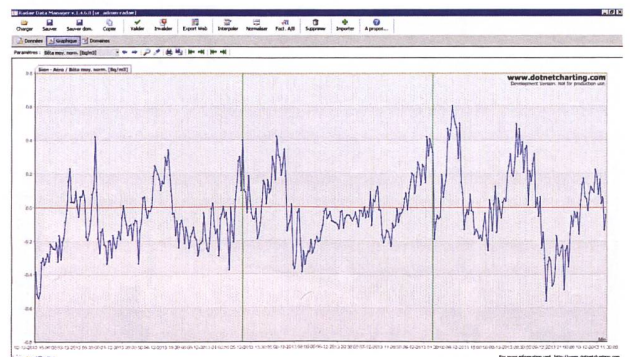
L'ensemble du système RADAIR (moniteurs et serveurs) fonctionne avec satisfaction. Durant deux



La concentration bêta artificielle moyenne manifestement sous-compensée suite à une descente brusque de la concentration alpha.

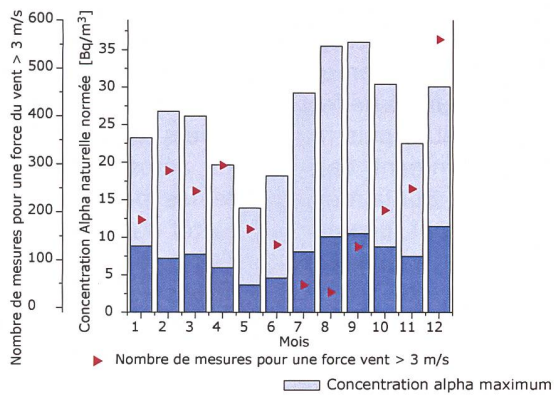
Figure 1:

Exemple de recalcul de la concentration bêta artificielle moyenne avec un nouveau facteur α/β .

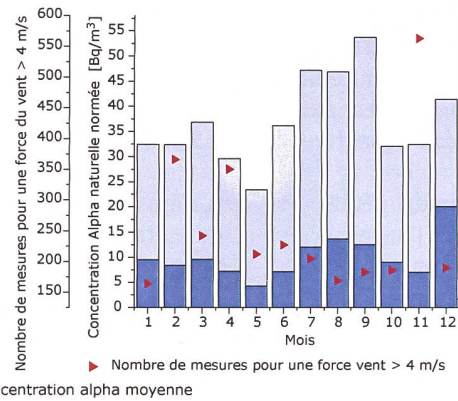


Compensation de la concentration bêta artificielle moyenne dans la période entre les curseurs.

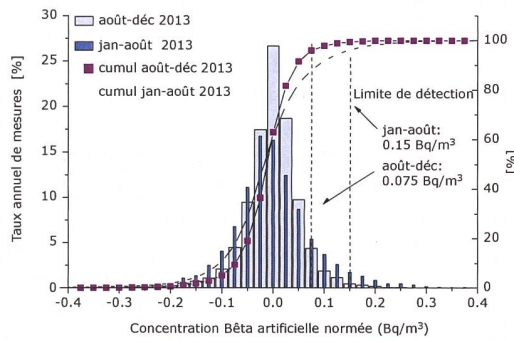
a) Bâle



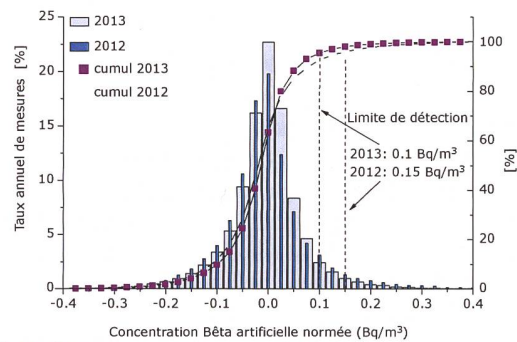
b) Genève-Meyrin



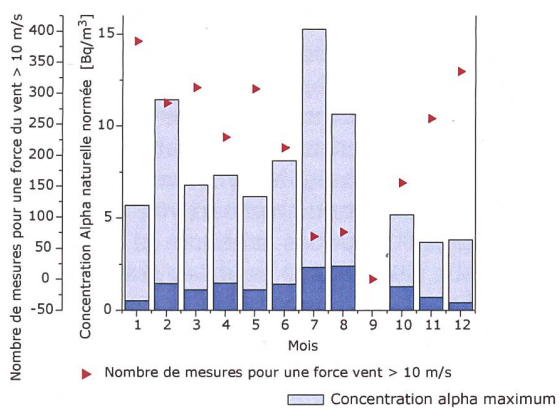
c) Bâle



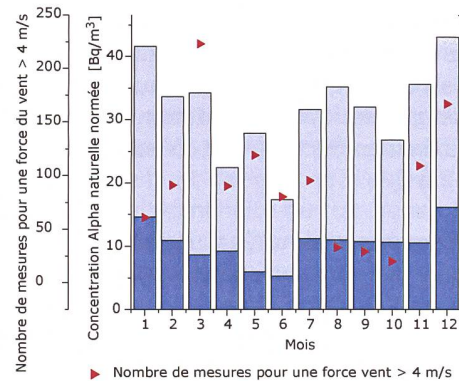
d) Genève - Meyrin



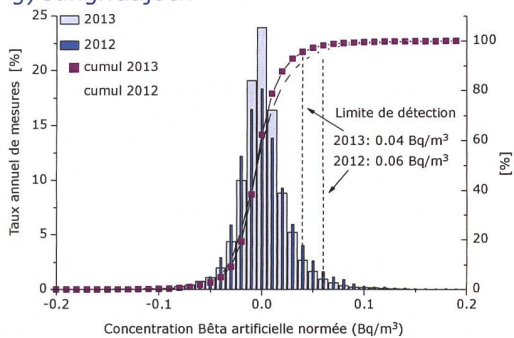
e) Jungfrauoch



f) Vaduz



g) Jungfrauoch



h) Vaduz

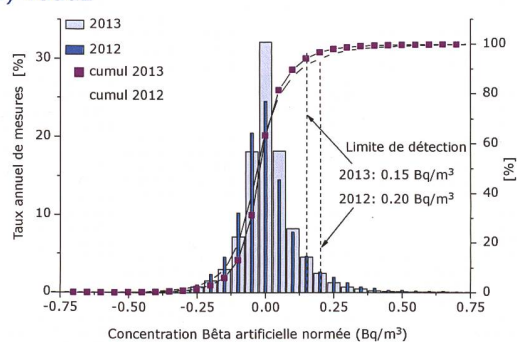


Figure 2:

Les graphiques **a**, **b**, **e** et **f** montrent les concentrations alpha totales (d'origine naturelle) mensuelles moyennes et maximales ainsi que le nombre de mesures selon la force du vent enregistrées en 2013 aux stations de Bâle, Genève-Meyrin, Jungfrauoch et Vaduz. Les graphiques **c**, **d**, **g** et **h** représentent les histogrammes des concentrations bêta artificielles compensées obtenus en 2012 et 2013 à ces mêmes stations.

ans, l'acquisition, la gestion et le stockage des données se sont faites en parallèle avec l'ancienne et la nouvelle centrale sur deux serveurs distincts. Les tests de conformité se sont avérés concluants, c'est pourquoi l'ancien serveur, qui fonctionnait depuis 2003, a été désactivé en juin 2013.

Les données RADAIR sont déjà disponibles sur internet à l'adresse www.radair.ch, mais en 2014 elles seront également été intégrées à la plateforme internet Radenviro (www.radenviro.ch), donnant accès à tous les résultats des mesures de la radioactivité dans l'environnement effectuées dans le cadre de la surveillance coordonnée par l'OFSP.

Les résultats de mesure

Collecteurs d'aérosols α/β :

La figure 2 montre les concentrations α naturelles mensuelles moyennes et maximales relevées en 2013 aux stations de Bâle, de Genève-Meyrin, du Jungfraujoch et de Vaduz ainsi que les histogrammes des concentrations β artificielles obtenues après compensation.

Les concentrations α maximales enregistrées dans les différentes stations (cf graphiques a, b, e, f de la figure 2) dépendent de la nature géologique du sol et de l'environnement ainsi que des conditions météorologiques. Pour une station donnée, ces valeurs maximales fluctuent au cours de l'année, d'un facteur 2 à 3.

Les différences marquées entre concentrations maximales et concentrations moyennes reflètent les importantes fluctuations diurnes-nocturnes de radioactivité naturelle passant de 5 à 50 Bq/m³ (en 24 heures) suivant les sites (graphiques a,b,f de la figure 2). Il faut savoir que le phénomène d'inversion thermique limite la dispersion verticale du radon et de ses produits de filiation qui s'accumulent près du sol durant la nuit. A remarquer que lorsque le rapport entre les concentrations maximales et moyennes est petit, c'est la concentration moyenne qui reste relativement grande car il n'y a pas ou peu de résorption de cette inversion thermique et les émetteurs α et β restent piégés au niveau du sol sans être mélangés à de l'air frais. On observe ce phénomène durant les mois où il fait froid dans les basses couches de l'atmosphère, c'est-à-dire de novembre à février, par conséquent, la concentration α reste relativement élevée durant le jour. À l'inverse, dans les stations de montagne comme au Jungfraujoch, les concentrations en radon sont très faibles, en moyenne de l'ordre de

3 - 4 Bq/m³. La contribution provient essentiellement de la plaine, soit avec les vents thermiques, soit avec les vents dominants. Sur le graphe "e" de la figure 2, on observe un maxima relativement élevé au mois de février qui est dû au passage d'un front chaud, puis froid à travers la Suisse avec un vent dominant balayant les aérosols des basses couches. Sur la même figure, les maxima de juillet et août sont, quant à eux, plutôt dus à des courants thermiques locaux. Notons encore, d'une manière générale, que les concentrations naturelles les plus faibles se rencontrent durant les mois de mai et juin où d'une part, les précipitations sont plus conséquentes (lessivage des aérosols) et d'autre part, le brassage des masses d'air est plus important (phénomène de dilution).

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 β artificielle sera élevée. Suivant les sites, on observe ainsi un rapport d'environ 300 à 500 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 radioactivité β d'origine artificielle. Les histogrammes de la concentration β (graphiques c, d, g, h de la figure 2) montrent ces limites. Malgré l'application d'un facteur de compensation adéquat, encore amélioré grâce à l'algorithme automatique de compensation, des incidents de radioactivité plus petits que 150 mBq/m³ pour les stations de plaine et plus petits que 50 mBq/m³ pour les stations d'altitude ne sont pas décelables. À noter que le nombre de mesures réalisées au cours de l'année n'est pas identique pour chaque moniteur. Afin de faciliter la comparaison des histogrammes entre eux, le pourcentage de mesure (par rapport au nombre annuel total de mesures effectuées par le moniteur) est indiqué en ordonnée, plutôt que le nombre absolu de mesures.

De manière générale, les limites de détection ont diminué avec l'installation du programme de compensation automatique des concentrations β . Les histogrammes des concentrations β artificielles moyennes normées enregistrés en 2012 et en 2013 montrent ces diminutions. En 2012, plusieurs moniteurs n'étaient pas encore équipés et la compensation s'effectuait de manière manuelle: les fortes fluctuations diurne-nocturne de 5 à 50 Bq/m³ contraignaient à avoir un facteur de compensation sensiblement plus bas afin d'éviter

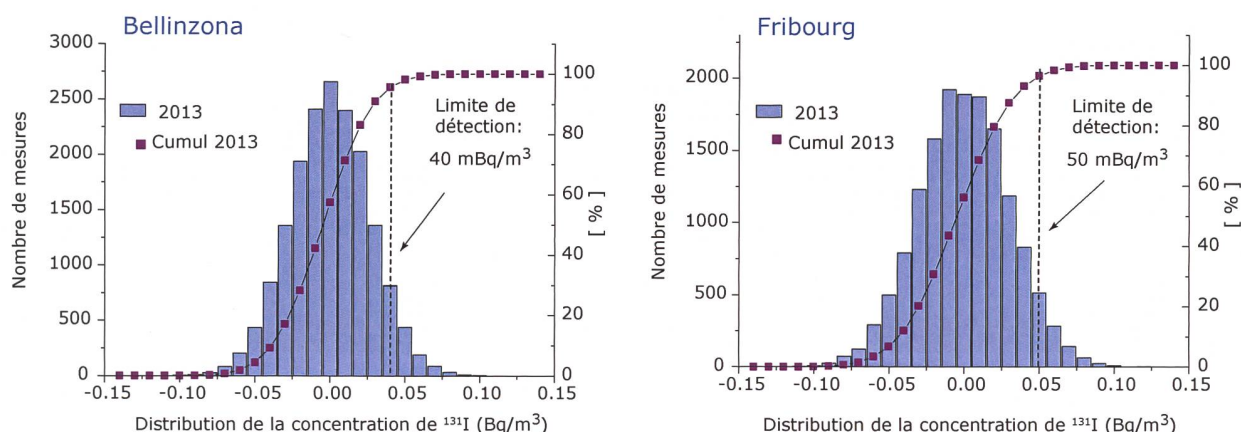


Figure 3: Histogrammes de la concentration moyenne du ^{131}I des stations de Bellinzona et de Fribourg en 2013.

de fausses alarmes dues à une compensation insuffisante ; l'histogramme était 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 2013.

Collecteur de ^{131}I :

Les moniteurs de Bellinzona, de Fribourg, de Genève-Meyrin et du PSI mesurant l'iode gazeux (^{131}I) n'ont pas décelé de valeurs supérieures à leur limite de détection (50 -60 mBq/m³) au cours de l'année 2013. Actuellement, les débits de tous les moniteurs sont identiques, de l'ordre de 10 m³/h. La figure 3 montre l'histogramme de la concentration moyenne du ^{131}I enregistré dans les stations de Bellinzona et de Fribourg. L'histogramme du moniteur de Fribourg contient moins de données que celui de Bellinzona, car le moniteur d'iode a dû être arrêté durant 52 jours (Voir chap. des pannes). Ce même histogramme montre un nombre élevé de valeurs proches de zéro (gaussienne au sommet plat) suite aux seuils de comptage faiblement décentrés par rapport à la ligne gamma de la source d'étalonnage.

Disponibilité du système

Grâce à un entretien suivi, le taux de bon fonctionnement des moniteurs s'est situé en 2013 entre 90 et 98% pour la plupart des stations (collecteurs d'aérosols et d'iode inclus). A noter que les périodes d'arrêt des moniteurs pour entretien sont également compris dans cette statistique.

Les moniteurs situés au Jungfrauoch, à Fribourg et à Weissfluhjoch ont fait exception. Le premier a dû être arrêté durant 43 jours à cause d'un dysfonctionnement de la carte mère du PC de contrôle, le deuxième durant 52 jours à cause de travaux de réfection du toit du bâtiment. Quant au troisième, les mesures du moniteur de Weissfluhjoch ont dû être invalidées du 17 juillet au 10 octobre, à cause de l'endommagement de la ligne d'aspiration suite à la réfection de l'étanchéité du toit. Ainsi, l'air mesuré a été un mélange d'air intérieur et extérieur du bâtiment (voir figure 4).

D'une manière générale, les pannes les plus courantes ont été, dans l'ordre de fréquence : le positionnement incorrect des filtres lors du changement de ces derniers, des pannes de climatisation des locaux, quelques pannes de secteurs et de communication.



Les moniteurs d'aérosols et d'iode de Fribourg ont dû être arrêtés durant 52 jours à cause de travaux de réfection du toit du bâtiment.



Du 17 juillet au 10 octobre (85 jours), les mesures du moniteur de Weissfluhjoch ont dû être invalidées à cause de l'endommagement de la ligne d'aspiration suite à la réfection de l'étanchéité du toit. Ainsi, l'air mesuré a été un mélange d'air intérieur et extérieur du bâtiment.

Figure 4: Pannes

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 Aerosolpartikel gesammelt. Im Falle einer Radioaktivitätsfreisetzung kann somit im Idealfall die 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.

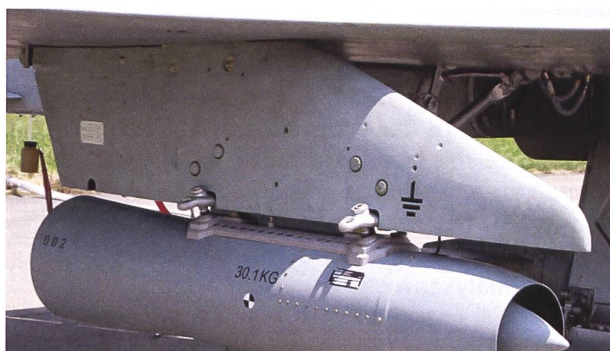
Vorgeschichte

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 bereits 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 zum grössten Teil 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 Aerosolproben aus bis zu 12'000 m Höhe zu sammeln (Fig. 1&2) um hernach deren Radioaktivität im Labor mittels Gamma-Spektrometrie quantitativ zu analysieren. Ebenfalls ab Mitte der 60er-Jahre wurden am Physikinstitut der Universität Freiburg die ersten Ge(Li)-Detektoren in Betrieb genommen, die für solche Messungen 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 Aufhängvorrichtung verfügen; zudem zeigte sich auch, dass die seit rund 30 Jahren eingesetzten Geräte



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

einer Überholung bedurften. Mit dieser Erneuerung und Anpassung sowie der erneuten Flugzulassung wurde RUAG Aerospace (die Nachfolgerin der Flugzeugwerke Emmen, die die Geräte damals gebaut hatte) beauftragt. Seit 2004 sind die Geräte wieder einsatzbereit und flugerprobt.

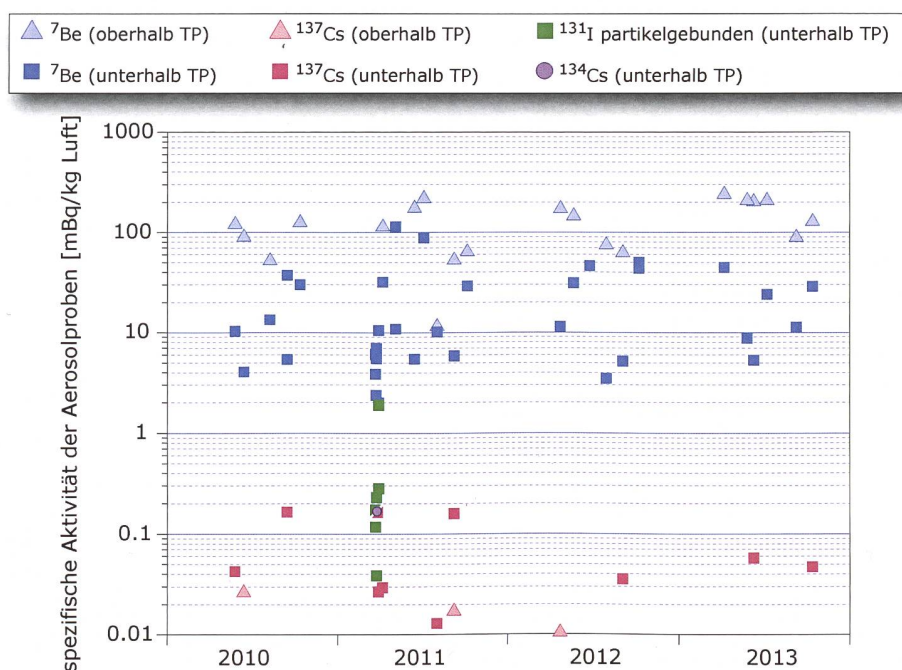
Sammlung der Proben

Die Probenahme der Aerosolpartikel erfolgt mit Hilfe von Luftfiltern, welche in einem Sammelaggregat unter dem Flügel eines Tigers F-5F/E befestigt werden. Die Geräte können vom Piloten ferngesteuert geöffnet und geschlossen werden, was eine Probenahme unter vorgewählten Bedingungen (bzgl. Flughöhe, Flugroute, Dauer, Geschwindigkeit) ermöglicht. Die Geräte wurden im Windkanal kalib-

riert, sodass bei bekannter Flughöhe, Geschwindigkeit und Flugdauer beprobte Luftmenge (kg) 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 Anfang 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 beprobte Luftmenge somit zwischen 2'000 und 4'000 kg.



Figur 3:
 ^7Be -, ^{134}Cs -, ^{137}Cs - und partikelgebundene ^{131}I - Messwerte in mBq/kg Luft in den Jahren 2010-2013.

Als Filtermaterial wird ein Zellulosefilter (Sorte 0048, Art. Nr. 348987) von Whatman mit den Dimensionen 555 x 526 mm verwendet. Nach der Beprobung wird der Filter zur Analyse 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, wobei nach 1-2 Tagen Messzeit für ^{137}Cs eine Nachweisgrenze von 0.01 - 0.05 mBq/kg Luft erreicht wird. Anschließend können an den Filtern weitere Untersuchungen, z.B. radiochemischer oder massenspektrometrischer Art durchgeführt werden.

Über die letzten vier Jahre liegt der Median der Konzentration des kosmogenen Radionuklids ^7Be oberhalb der Tropopause bei 124 mBq/kg. Bei den Messungen 1km unterhalb der Tropopause liegt der Median bei 19 mBq/kg. Als Vergleich seien hier die Werte von P. Winiger [1] bis [4] (Werte von 1960/1970) erwähnt, die für ^7Be im Mittel bei 100 mBq/kg bzw. 20 mBq/kg 1'000m über bzw. unter der Tropopause liegen.

Der grösste Teil der ^{137}Cs -Konzentrationen lag im Jahr 2013 unter der Nachweisgrenze von 0.01 - 0.05 mBq/kg. In Figur 3 deutlich sichtbar sind die nach dem Reaktorunfall Fukushima (März 2011) gemessenen ^{131}I Konzentrationen, welche jedoch infolge der Halbwertszeit von 8 Tagen schon kurze Zeit später nicht mehr messbar waren. Auch das Radionuklid ^{134}Cs konnte 2012 und 2013 nicht mehr nachgewiesen werden.

Quellen:

- [1] P. Winiger, O. Huber und J. Halter: Halbleitermessungen von Fallout. *Helv. Phys. Acta*, Vol. 41/5, pp. 645-649 (1968).
- [2] P. Winiger, O. Huber und J. Halter: Rechenmethoden zur Analyse von Halbleiterspektren. *Helv. Phys. Acta* Vol. 42/7-8, pp. 901-902, (1969).
- [3] P. Winiger, O. Huber und J. Halter: Rechenmethoden zur Analyse hochaufgelöster g-Spektren und ihre Anwendung auf Spaltfragmentgemische. *Helv. Phys. Acta*, Vol. 43/6, pp. 693-712 (1970).
- [4] P. Winiger, O. Huber, J. Halter und B. Michaud: Konzentrationsmessungen von ^7Be , ^{137}Cs und jungen Spaltfragmenten an der Tropopause. *Tellus* Vol. 28/5, 434-441.

4.4

Radioaktivität in aquatischen Systemen

M.S. Brennwald - Eawag, Gruppe Umweltisotope, Abteilung W+T, 8600 Dübendorf

A. Lück, J. Beer - Eawag, Gruppe Radioaktive Tracer, Abteilung SURF, 8600 Dübendorf

M. Zehringer - Kantonales Laboratorium Basel-Stadt, Postfach, 4012 Basel

S. Estier - Bundesamt für Gesundheit, Sektion Umweltradioaktivität, 3003 Bern

A. Schmidt - Bundesanstalt für Gewässerkunde, D-56068 Koblenz

Zusammenfassung

In den Wasser- und Partikelproben von Aare und Rhein wurden hauptsächlich die Radionuklide ^{54}Mn , ^{58}Co und ^{60}Co nachgewiesen, welche vorwiegend aus Abgaben vom Kernkraftwerk Mühleberg stammen. Weiter wurde ^{137}Cs gefunden, welches zum grössten Teil vom Tschernobylunfall stammt. Vereinzelt ergaben die Analysen der Wasserproben höhere Werte als aufgrund der Abgaben der Kernkraftwerke zu erwarten wäre. Dies ist vermutlich auf den Eintrag von Radionukliden durch Erosion des Bodens und Resuspension von Sedimenten zurückzuführen. Als Folge der seit einigen Jahren reduzierten Abgaben von ^{58}Co und ^{60}Co der Kernkraftwerke lagen die Aktivitäten insbesondere bei Klingnau und Pratteln häufig unter der Bestimmungsgrenze. In Stichproben von Schwebstoffen im Rhein bei Weil(D) wurden im Weiteren die kurzlebigen Radionuklide ^{131}I und ^{177}Lu gefunden, welche in der Nuklearmedizin eingesetzt werden. In Fischen waren keine künstlichen Radionuklide nachweisbar. In Wasserpflanzen wurde regelmässig ^{40}K sowie sporadisch ^{54}Mn , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{137}Cs und ^{131}I gefunden. Analysen des Grundwassers bei Aarberg, Döttingen und Pratteln ergaben keine Hinweise auf eine Infiltration künstlicher Radionuklide aus der Aare bzw. dem Rhein.

Ziele

Die meisten künstlichen Radionuklide gelangen direkt über Einleitung von Abwässern oder indirekt über den Niederschlag in den Wasserkreislauf. Das Ziel der kontinuierlichen Überwachung der Radioaktivität in aquatischen Systemen ist, frühzeitig Änderungen in den Abgaben der entsprechenden Betriebe zu erkennen und die Gesamtaktivität, welche die Schweiz verlässt, zu bilanzieren.

Methoden

Die kumulierten Radionuklidabgaben der Kernkraftwerke werden mittels Wasserproben an verschiedenen Standorten entlang von Aare und Rhein erfasst und überwacht (Figur 1). Die Station Hagneck liegt stromabwärts des Kernkraftwerks Mühleberg an der Mündung der Aare in den Bielersee. An der Station Klingnau weiter stromabwärts werden zusätzlich die Abgaben der Kernkraftwerke Gösgen und Beznau überwacht. An der Station Pratteln werden schliesslich auch die Abgaben des Kernkraftwerks Leibstadt berücksichtigt. Komplementär zu den Wasserproben aus Rhein und Aare werden bei Hagneck, Klingnau und Pratteln auch regelmässige Schwebstoffproben gesammelt. Zusätzlich werden sporadisch auch Grundwasser-, Fisch-, und Wasserpflanzenproben untersucht. Die Aktivitäten der Radionuklide in allen Proben werden an der Eawag mittels Gammaskopimetrie bestimmt.



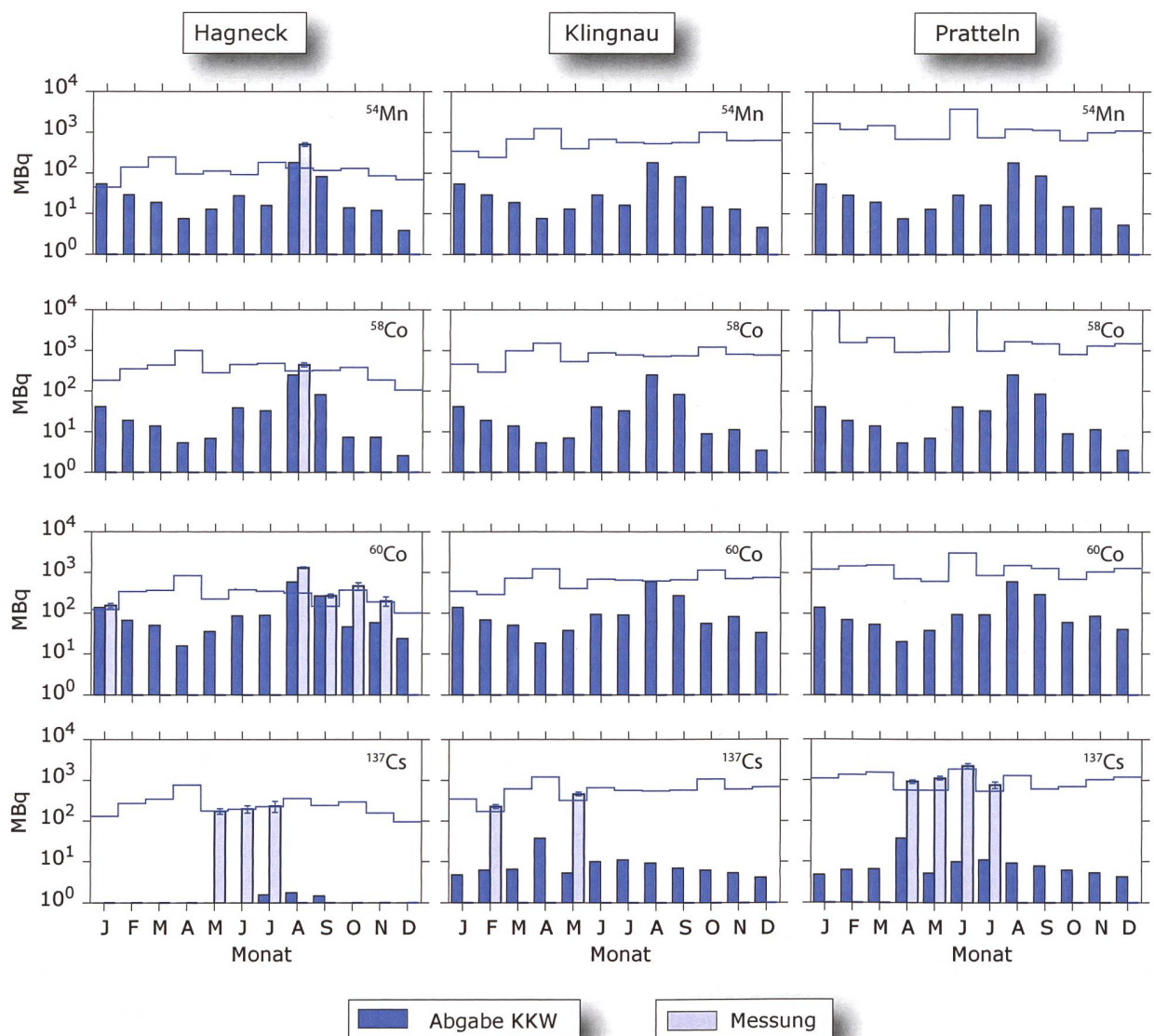
Figur 1: Standorte der Stationen zur Überwachung der Radionuklidabgaben aus den Kernkraftwerken Mühleberg (KKM), Gösgen (KKG), Beznau (KKB) und Leibstadt (KKL) und sonstigen industriellen oder medizinischen Betrieben.

Die Wasserproben aus Aare und Rhein bei Hagneck, Klingnau und Pratteln werden als grossvolumige, monatliche Sammelproben entnommen. Entsprechend dem jeweiligen Abfluss werden pro Tag automatisch zwischen 20 und 40 Proben genommen, was monatliche Sammelproben zwischen 50L und 200L ergibt. Die mittleren Abflussmengen der drei Stationen waren 2013 bei Hagneck ca. 190 m³/s, bei Klingnau ca. 620 m³/s und bei Pratteln ca. 1'190 m³/s. Zur Bestimmung der monatlichen Fracht der Radionuklide in Aare und Rhein werden die Radionuklide in den Sammelproben durch eine Eisenhydroxidfällung aufkonzentriert. Danach wird das Fällungsprodukt getrocknet, und darin die Aktivitäten der betreffenden Radionuklide bestimmt. Die Radionuklid-Fracht ergibt sich dann

aus dem Produkt der gemessenen Aktivität und der während der Sammelperiode abgeflossenen Wassermenge.

Bei den Stationen Diepoldsau und Rekingen am Rhein werden die Radionuklide bei der Aufbereitung der Wasserproben nicht angereichert. Dasselbe gilt für die Wasserproben aus Rhone und Ticino, die von der Sektion Umweltradioaktivität (URA) des Bundesamtes für Gesundheit betreffend Gammaaktivität überwacht werden.

Die Schwebestoffproben werden mit Hilfe von Sedimentfallen als monatliche Sammelproben gesammelt. Die Fisch- und Wasserpflanzenproben (ohne Wurzeln) werden unmittelbar stromabwärts



Figur 2: Monatliche Frachten der im Wasser gelösten Radionuklide ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co, ⁶⁰Co und ¹³⁷Cs an den drei Stationen bei Hagneck, Klingnau und Pratteln im Vergleich mit den kumulierten Abgaben der flussaufwärts gelegenen Kernkraftwerke. Die Messwerte wurden nur dann eingezeichnet, wenn die Bestimmungsgrenze der jeweiligen Messung (blaue Stufenlinie) erreicht wurde. Die Fehlerbalken zeigen den Standardmessfehler der Fracht.

der Kernkraftwerke entnommen, wobei die Fische filetiert und die Wasserpflanzenproben gereinigt werden, um eine Partikelkontamination mit Radionukliden zu vermeiden. Die Sediment-, Fisch- und Wasserpflanzenproben werden vor der Analyse gefriergetrocknet. Die spezifische Aktivität dieser Proben wird in Bezug auf das Trockengewicht angegeben.

Die ^3H -Aktivität in der Aare und im Rhein wird an den Stationen "oberhalb Mühleberg", Brugg und Weil am Rhein durch die Sektion URA/BAG (Bestimmungsgrenze 2 Bq/L), an der Station Diepoldsau durch die Bundesanstalt für Gewässerkunde in Koblenz (D) mittels elektrolytischer Anreicherung (Bestimmungsgrenze 0.17 Bq/L), und an der Rheinüberwachungsstation Weil (D) durch das Kantonale Labor Basel Stadt (Bestimmungsgrenze 1 Bq/L) bestimmt.

Das Amt für Umweltschutz Basel-Stadt entnimmt bei der internationalen Rheinüberwachungsstation Weil (D) zudem monatlich Schwebstoff-Stichproben. Dabei wird über Zeiträume von 0.3 bis 4 Tagen Rheinwasser aus der Querprofilmischung entnommen, wovon die Schwebstoffe abzentrifugiert werden. Die Schwebstoffe werden gefriergetrocknet, gemahlen und danach gammaspektrometrisch analysiert. Aus den so bestimmten spezifischen Aktivitäten und dem monatlichen Abfluss bei Basel werden die monatlichen Radionuklidfrachten auf suspendierten Partikeln abgeschätzt. Dabei ist zu beachten, dass diese Hochrechnung mit einer grossen Unsicherheit behaftet ist, da sie auf der Annahme beruht, dass die über 0.3 – 4 Tage gesammelten Stichproben repräsentativ für den ganzen Monat sind und die Abgaben der Kernkraftwerke kontinuierlich erfolgen, was beides nicht der Fall ist.

Die Eawag beprobt sporadisch die Grundwasserströme bei Aarberg (Pumpwerk Römerstrasse II, in der Nähe der Überwachungsstation Hagneck), bei Döttingen (Pumpwerk Unterwald, in der Nähe der Überwachungsstation Klingnau) und bei der Überwachungsstation Pratteln (Pumpwerk BW16 der Hardwasser AG). Dabei werden die Radionuklide aus 100 L Grundwasser analog zu den Flusswasserproben vor der Analyse angereichert und analysiert.

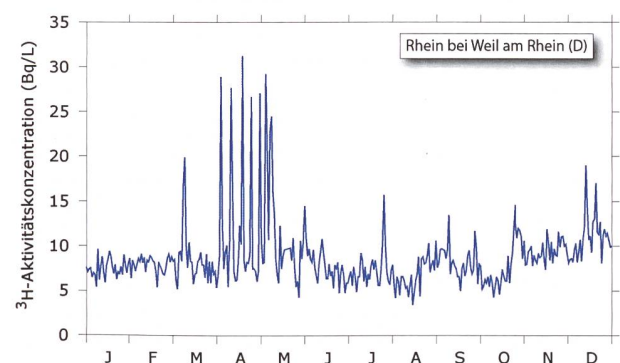
Ergebnisse

Figur 2 zeigt die monatlichen Frachten der im Wasser gelösten Radionuklide ^{54}Mn , ^{58}Co , ^{60}Co und ^{137}Cs bei den Stationen Hagneck, Klingnau, und Pratteln.

Die aus den Abgaben von ^{54}Mn , ^{58}Co und ^{60}Co der flussaufwärts gelegenen Kernkraftwerke berechneten Frachten sind bei allen drei Stationen nahezu identisch, weil diese Nuklide überwiegend aus dem Kernkraftwerk Mühleberg stammen. Aufgrund einer Abgabe von 38 MBq ^{137}Cs des Kernkraftwerks Bznau im April ist die berechnete ^{137}Cs -Fracht bei der Station Klingnau in diesem Monat nahezu 10 mal höher als der über die restlichen Monate berechnete Mittelwert.

^{54}Mn , ^{58}Co und ^{60}Co wurden nur in den Proben der Station bei Hagneck gefunden, wo die Verdünnung der Abgaben aus dem Kernkraftwerk Mühleberg am geringsten ist. Die Messwerte bei Hagneck stimmen generell ungefähr mit den Abgaben des Kernkraftwerks Mühleberg überein, die im August und September aufgrund der Revision am grössten waren. Im Oktober und November übersteigen die gemessenen ^{60}Co -Frachten die Abgaben jedoch. Dies dürfte mit einer verstärkten Resuspension von Sedimentmaterial z.B. bei Bauarbeiten im Hagneckkanal zusammenhängen. Bei den weiter stromabwärts gelegenen Probenahmestellen liegen alle Messwerte aufgrund der zunehmenden Verdünnung und der Sedimentation von suspendierten Partikeln im Bielersee und dem Klingnauer Staubecken unter der Bestimmungsgrenze.

Wie bereits in früheren Jahren sind die beobachteten ^{137}Cs -Frachten auch dieses Jahr grösser als die Abgaben der Kernkraftwerke. Dies ist auf die Remobilisierung von ^{137}Cs vom Tschernobylunfall zurückzuführen. Insbesondere in den Monaten mit hohem Abfluss und entsprechend hoher Erosion des Bodens und Resuspension aus dem Sediment wurden systematisch erhöhte ^{137}Cs -Aktivitäten gefunden.



Figur 3:
 ^3H -Aktivitätskonzentration im Rhein bei Weil am Rhein (D).

Beim Tritium zeigten die Wasserproben aus der Aare oberhalb des Kernkraftwerkes Mühleberg tiefe ^3H -Aktivitätskonzentrationen unterhalb der Bestimmungsgrenze (2 Bq/L). Die ^3H -Aktivitätskonzentrationen in den monatlichen Sammelproben von der Aare bei Brugg Weil lagen ebenfalls unterhalb der Bestimmungsgrenze, ausser in den Monaten April (8.0 Bq/L) und Mai (7.1 Bq/L). In dieser Zeit gab das Kernkraftwerk Gösgen, wie jedes Jahr, Tritiumhaltiges Wasser ab, was zu erhöhten Tritiumkonzentrationen im Flusswasser führte (siehe Kapitel 8.5). Die ^3H -Aktivitätskonzentrationen der täglichen Rheinwasserproben von Weil (D) ist in Figur 3 dargestellt. Die ^3H -Konzentration schwankt generell im Bereich von 5 – 10 Bq/L. In den Monaten März und April wurden jedoch als Folge der ^3H -Abgaben des Kernkraftwerkes Gösgen deutlich höhere Werte (bis 32 Bq/L) beobachtet.

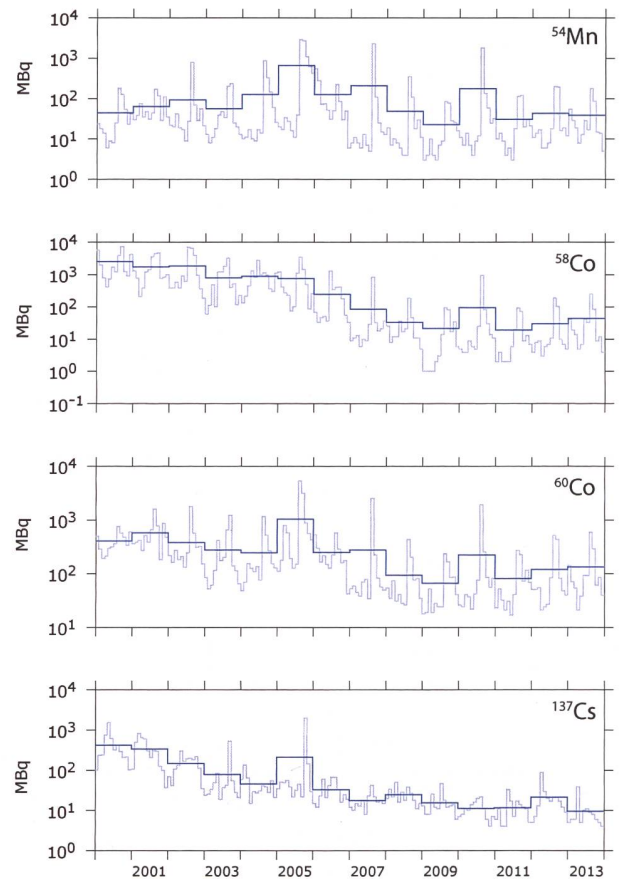
Ausser den oben diskutierten Radionukliden wurden keine weiteren künstliche Radionuklide nachgewiesen, wohl aber natürliche wie ^7Be , ^{40}K und ^{210}Pb .

Langfristige Entwicklung der Radionuklid-abgaben und Frachten in Aare und Rhein

Figur 4 zeigt die den zeitlichen Verlauf der Abgaben von ^{54}Mn , ^{58}Co , ^{60}Co und ^{137}Cs aller Kernkraftwerke während den Jahren 2000 – 2013. Als Folge der Revisionen der Kernkraftwerke sind die Abgaben jeweils im Sommer/Herbst am grössten. Über die Jahre betrachtet haben die Abgaben von ^{58}Co , ^{60}Co und ^{137}Cs bis ca. 2008 tendenziell abgenommen. Danach ist jedoch keine systematische Veränderung mehr erkennbar.

In früheren Jahren konnte anhand der gemessenen Frachten der im Wasser gelösten Radionuklide eine Bilanzierung der monatlichen und jährlichen Aktivitäten erstellt werden. In den letzten Jahren lagen die Messwerte aufgrund der geringeren Abgaben jedoch vermehrt unterhalb der spezifischen Bestimmungsgrenzen. Deshalb ist auch für das Jahr 2013 eine Quantifizierung der Jahresgesamtfracht anhand der monatlich überwachten Radionuklidfrachten nicht sinnvoll.

Um die Bestimmungsgrenze für die künftige Überwachung zu verringern, hat die Eawag gemeinsam mit der Rheinüberwachungsstation Weil (D) ein neues Probenahmesystem erarbeitet. Die Bestimmungsgrenze ist wesentlich durch das Volumen der monatlichen Sammelproben bestimmt, welches mit dem aktuell eingesetzten Beprobungssystem auf 200 L begrenzt ist. Das neue System soll es ermöglichen, Partikel, Schwebstoffe und gelöste Radionuklide aus Sammelproben mit einem Wasservolumen



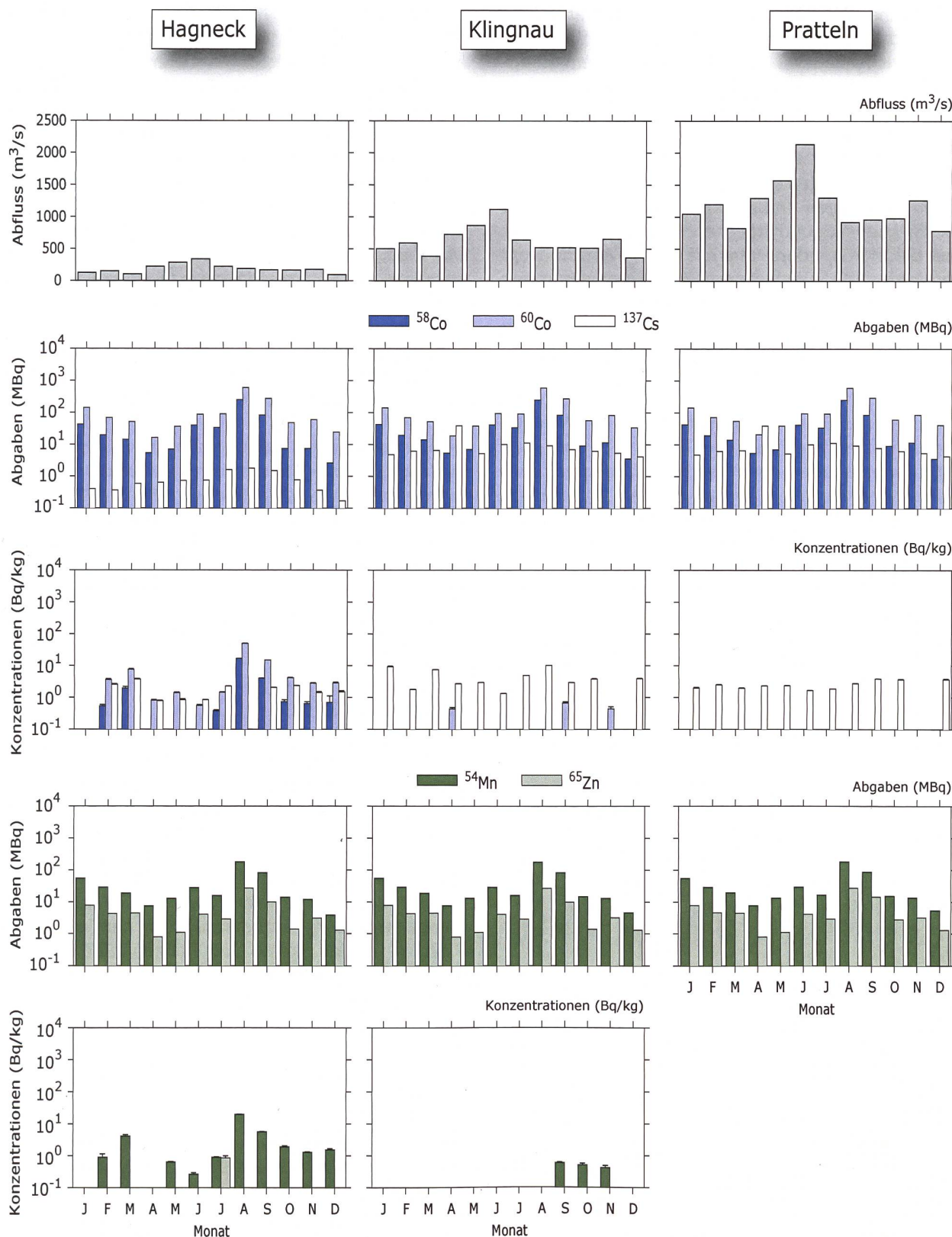
Figur 4: Jahres- und Monatsmittel der Abgaben von ^{54}Mn , ^{58}Co , ^{60}Co und ^{137}Cs aus den Kernkraftwerken während 2000–2013 (Summe der Abgaben aller Kernkraftwerke).

von 1'000 – 2'000 L abzutrennen. Das neue System befindet sich seit Anfang 2014 an der Rheinüberwachungsstation Weil im Testbetrieb.

Partikelproben

Die meisten der von den Kernkraftwerken abgegebenen Radionuklidspezies lagern sich an suspendierte Partikel im Wasser an. Der Partikeltransport trägt somit wesentlich zur Verfrachtung der Radionuklide bei. Insbesondere werden Radionuklide durch sedimentierende Partikel aus dem offenen Wasser entfernt. Umgekehrt können Radionuklide durch Resuspension des Sediments auch wieder zurück ins offene Wasser gelangen.

Die spezifischen Aktivitäten von ^{54}Mn , ^{58}Co und ^{60}Co in den Partikelproben der Stationen bei Hagneck widerspiegeln die saisonale Variation der Abgaben aus dem Kernkraftwerk Mühleberg (Figur 5). ^{65}Zn war aufgrund der geringen Abgaben nur in einer einzigen Partikelprobe nachweisbar. Bei der Station Klingnau wurden nur noch sporadisch geringe

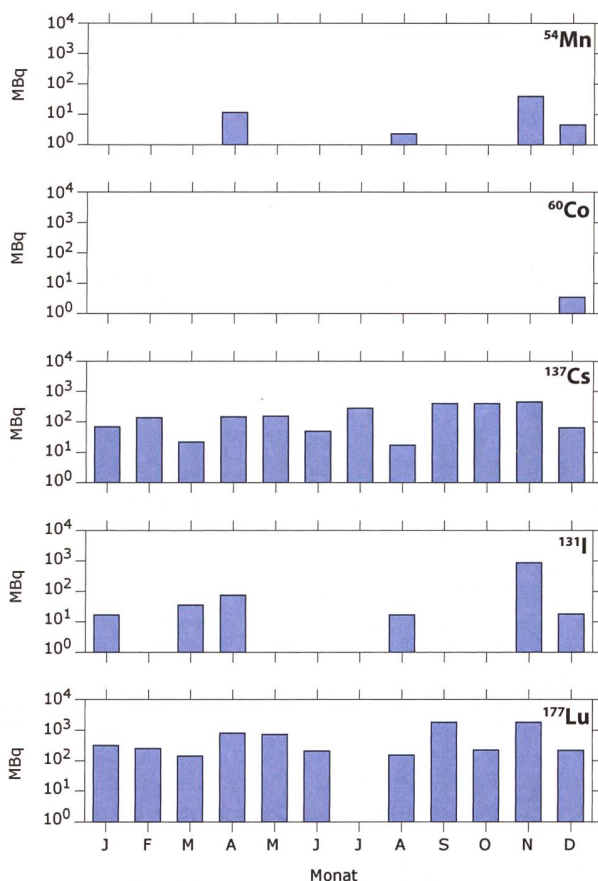

Figur 5:

Spezifische Aktivitäten von ^{54}Mn , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{137}Cs und ^{65}Zn in den monatlichen Partikelproben aus den Sedimentfallen bei Hagneck, Klingnau und Pratteln im Vergleich mit den kumulierten Abgaben der stromaufwärts gelegenen Kernkraftwerke und dem Abfluss. Die Messwerte wurden nur dann eingezeichnet, wenn die Bestimmungsgrenze der jeweiligen Messung erreicht wurde (typische Bestimmungsgrenzen für alle Nuklide in der Figur: 0.5 – 0.9 Bq/kg). Die Fehlerbalken zeigen den Standardmessfehler der spezifischen Aktivitäten. Bei Pratteln wurde in keiner Probe ^{54}Mn oder ^{65}Zn nachgewiesen.

spezifische Aktivitäten von ^{54}Mn und ^{60}Co , aber kein ^{58}Co und ^{65}Zn beobachtet. Dies ist auf die Sedimentation insbesondere im Bielersee und dem Klingnauer Staubecken zurückzuführen. Bei Pratteln wurde in keiner Partikelprobe ^{58}Co , ^{60}Co , ^{137}Cs oder ^{54}Mn nachgewiesen.

Bei ^{137}Cs findet man keine Übereinstimmung zwischen Messungen und Abgaben. Zudem nimmt die spezifische ^{137}Cs -Aktivität der Partikelproben nicht wie bei $^{58,60}\text{Co}$ oder ^{54}Mn mit dem Abstand vom Kernkraftwerk Mühleberg ab. In Übereinstimmung mit den oben diskutierten Frachten des im Wasser gelösten ^{137}Cs ist dies durch die Mobilisierung von ^{137}Cs vom Tschernobylunfall durch Bodenerosion und Sedimentresuspension erklärbar.

Figur 6 zeigt die aus den Stichproben bei Weil (D) abgeschätzten Frachten von ^{54}Mn , ^{60}Co und ^{137}Cs auf Schwebestoffen. ^{54}Mn und ^{60}Co wurden nur sporadisch und vor allem in der zweiten Jahreshälfte nachgewiesen, was durch die erhöhten Abgaben der Kernkraftwerke in diesem Zeitraum (Figur 5)



Figur 6: Monatliche Frachten von ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{131}I und ^{177}Lu auf Schwebestoffen bei Weil am Rhein. Die Frachten wurden aus den Messergebnissen der Stichproben abgeschätzt, welche über kurze Zeiträume (ca. 1 Tag pro Monat) gesammelt wurden.

bedingt sein könnte. In allen Stichproben wurde ^{137}Cs gefunden. Der Vergleich der ^{137}Cs -Messwerte mit den Abgaben der Kernkraftwerke zeigt wiederum, dass ^{137}Cs primär dem Tschernobylunfall zugeordnet werden kann. Zusätzlich zu den relativ langlebigen Radionukliden konnten in den Stichproben von Weil (D) auch die kurzlebigen Radionuklide ^{131}I (Halbwertszeit: 8 Tage) und ^{177}Lu (Halbwertszeit: 6.7 Tage) nachgewiesen werden (ebenfalls Figur 6), welche in der Nuklearmedizin eingesetzt werden.

Fische

Im Jahr 2013 wurden Fische jeweils unmittelbar stromabwärts der vier Kernkraftwerke untersucht:

- Mühleberg: Alet, gefangen am 22.8.2013
- Gösgen: Alet, gefangen am 11.10.2013
- Beznau: Barbe, gefangen am 13.10.2013
- Leibstadt: Alet, gefangen am 26.8.2013

Bei allen Fischproben wurde natürliches ^{40}K gefunden (400 – 700 Bq/kg). Künstliche Radionuklide wurden keine nachgewiesen.

Wasserpflanzen

Über das Jahr 2013 wurden in der Aare bei Hagneck sieben Wasserpflanzenproben entnommen und analysiert. In drei dieser Proben wurde ^{131}I nachgewiesen (5 – 37 Bq/kg). In einer Probe wurde ^{54}Mn (149 ± 4 Bq/kg), ^{58}Co (168 ± 5 Bq/kg) und ^{60}Co (501 ± 12 Bq/kg) gefunden. Diese Probe wurde im September nach der Revision des Kernkraftwerks Mühleberg entnommen. In den restlichen Proben wurden keine künstlichen Radionuklide gefunden. In allen Proben wurde ^{40}K gemessen (330 – 630 Bq/kg).

Grundwasser

Die Grundwasserproben von Aarberg, Döttingen und Pratteln wurden alle am 30.10.2013 entnommen. Es wurden keine künstlichen Radionuklide nachgewiesen (Bestimmungsgrenze ca. 0.4 mBq/L).

Allgemeine Überwachung

Neben den Überwachungsstationen stromabwärts von Kernkraftwerken wurden auch Wasserproben aus dem Rhein bei Diepoldsau und bei Rekingen untersucht. Aus wöchentlichen (Diepoldsau) und zweiwöchentlichen (Rekingen) Sammelproben wurden vierwöchentliche Mischproben hergestellt. In diesen Mischproben wurden keine Radionuklide nachgewiesen. Dies ist u.a. auf die hohen Bestimmungsgrenzen zurückzuführen, die sich durch die fehlende Radionuklidanreicherung bei der Aufbereitung dieser Proben ergeben.

Bei Diepoldsau schwankten die ^3H -Konzentrationen in den 12 über das Jahr verteilten Sammelproben im Bereich von 0.7 – 1.0 Bq/L.

Wasserproben aus dem Ticino (bei Contone) und aus der Rhone (bei Porte-du-Scex/VS sowie bei Chancy/GE) werden monatlich am BAG untersucht. Ausser Spuren von ^{137}Cs , das aus alten Ablagerungen stammt konnten keine künstlichen Radionuklide nachgewiesen werden. Als ^{137}Cs -Konzentration wurde 1.8 ± 0.7 mBq/L in der Rhone bei Porte-du-Scex gemessen. Die monatlichen Messungen von Tritium im Ticino und in der Rhone ergaben durchwegs Aktivitäten unterhalb der Bestimmungsgrenze (2 Bq/L).

4.5

Radionuklide in Sedimenten des Bielersees

**S. Rölli¹, J. Beer², B. Balsiger¹, M. Brennwald³, S. Estier⁴, E. Klemt⁵,
A. Lück², V. Putyrskaya⁵, H. Sahli¹, P. Steinmann⁴**

¹ Labor Spiez, Bundesamt für Bevölkerungsschutz des VBS, 3700 Spiez

² Eawag, Abteilung Surf/RT, 8600 Dübendorf

³ Eawag, Abteilung W+T, 8600 Dübendorf

⁴ Sektion Umweltradioaktivität URA, BAG, 3003 Bern

⁵ Hochschule Ravensburg-Weingarten, D-88250 Weingarten

Einleitung

Im Januar 2013 veröffentlichten Forscher der Universität Genf eine Untersuchung zu Sedimentkernen aus dem Bielersee und berichteten über leicht erhöhte Cäsium-137-Gehalte (¹³⁷Cs) in Sedimentschichten, die sich um das Jahr 2000 abgelagert hatten (Referenz 1). Die Autoren mutmassten, dass dieses ¹³⁷Cs aus einer nicht deklarierten Abgabe aus dem Kernkraftwerk Mühleberg stamme und betonten im gleichen Zuge die Wichtigkeit des Seewassers für die Trinkwasserversorgung der Stadt Biel. Im Juli nahm die Sonntagspresse diese Aussagen auf und sorgte damit für Verunsicherung bei Anwohnerinnen und Anwohnern und in politischen Kreisen. Von Behördenseite wurde darauf hingewiesen, dass das KKW Mühleberg um den besagten Zeitpunkt tatsächlich eine leicht erhöhte ¹³⁷Cs-Abgabe hatte, welche im vom BAG veröffentlichten Jahresbericht „Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz 1999“ dokumentiert ist und innerhalb der bewilligten Abgabelimiten lag.

Im Sommer 2013 entnahmen die Eawag (ein Forschungsinstitut im ETH-Bereich) und das Schweizerische Institut für ABC-Schutz (LABOR SPIEZ) weitere Sedimentkerne aus dem Bielersee und untersuchten die einzelnen Sedimentschichten auf Radioaktivität. Diese Studie ist inzwischen abgeschlossen und bestätigt die Existenz einer ¹³⁷Cs-Spitze (Peak), der den veröffentlichten Abgaben von 1999 aus dem KKW Mühleberg zugeordnet werden kann. Neben ¹³⁷Cs und Cobalt-60 (⁶⁰Co) wurde an einigen der Sedimentkerne auch Plutonium gemessen. Die Verteilung des Plutoniums zeigt, dass dieses Ra-

dionuklid ausschliesslich durch die oberirdischen Atomwaffenversuche in den frühen 60-er Jahren freigesetzt wurde.

Auf Grund der gemessenen Aktivitäten kann eine gesundheitliche Gefährdung durch künstliche Radioisotope im Sediment und auch im Trinkwasser aus dem Bielersee ausgeschlossen werden.

Sedimentkerne als Archive

Anhand von Sedimentkernen lässt sich die Geschichte eines Sees rekonstruieren: Jedes Jahr lagert sich eine neue Sedimentschicht auf dem Seegrund ab. Die einzelnen Schichten sind in einem Tiefenprofil sehr gut erkennbar. Eine Alters-Tiefenbeziehung ergibt sich durch zwei in allen Kernen deutlich erkennbare ¹³⁷Cs Einträge:

- ein jüngerer Eintrag als Folge des Reaktorunfalles von Tschernobyl im Jahr 1986 sowie
- ein älterer Eintrag aufgrund der oberirdischen Kernwaffentests in den frühen 60er Jahren, mit einem Maximum im Jahre 1963.

Bereits 1998 konnte die Eawag aufzeigen, dass es im Bielersee zwischen den in praktisch allen Seen vorhandenen ¹³⁷Cs Einträgen von 1986 und 1963 zusätzliche, lokale ¹³⁷Cs Einträge aufgrund von Abgaben des Kernkraftwerkes Mühleberg gab. Zudem konnte auch vom Kernkraftwerk Mühleberg abgegebenes ⁶⁰Co nachgewiesen werden (Referenzen 2 und 3).

Probenahme und Aufarbeitung

Der Bielersee besteht aus zwei von Südwesten nach Nordosten ausgerichteten Becken, die durch eine schmale Halbinsel, die St. Petersinsel, getrennt sind und sich später zu einem weiteren, gemeinsamen Becken vereinen. Das Becken südlich der St. Petersinsel wird von der Aare bzw. dem Aare-Hagneck-Kanal gespeist. Am Ufer der Aare, flussaufwärts befindet sich das seit 1972 betriebene Kernkraftwerk Mühleberg, welches Wasser der Aare zur Kühlung verwendet.

Am 17. und 18. Juli 2013 wurden an den tiefsten Stellen der drei Becken des Bielersees Sedimentkerne entnommen (Abbildung 1). Drei der Kerne (je einer pro Standort) wurden von der Eawag untersucht, drei weitere Kerne vom LABOR SPIEZ, in Zusammenarbeit mit der Hochschule Ravensburg-Weingarten und dem geographischen Institut der Universität Bern.

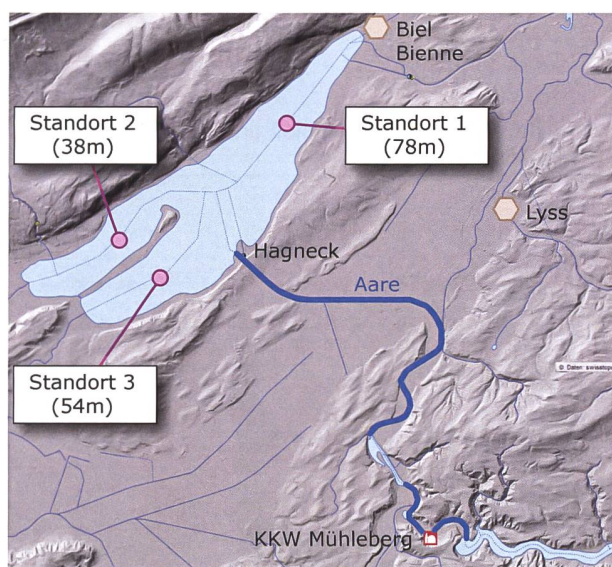


Abbildung 1:
Karte des Bielersees mit den Beprobungsstandorten des Jahres 2013. Karte: Swisstopo.

Für die gammaspektrometrische Messung von ^{137}Cs und ^{60}Co wurden die Proben gefriergetrocknet, homogenisiert und anschliessend in Polystyrol Dosen eingewogen. Zusätzlich wurden die Proben massenspektrometrisch auf Plutonium (^{239}Pu und ^{240}Pu) untersucht. Dazu wurden sie verascht und mit einem Schmelzaufschluss aufgelöst.

Messresultate

In den Abbildungen 2 - 4 sind Fotos der längs aufgeschnittenen Sedimentkerne zu sehen. Gut erkennbar ist eine hell-dunkel Laminierung. Die Abbildungen 2 - 4 zeigen die Messresultate der am LABOR SPIEZ untersuchten Sedimentkerne; die Abbildung 5 zeigt die Ergebnisse der an der Eawag analysierten Kerne. In den Diagrammen sind die entsprechenden Aktivitätskonzentrationen bezüglich des Trockengewichtes dargestellt. Die ^{137}Cs Tiefenprofile aller Kerne zeigen deutlich die Einträge aufgrund des Reaktorunfalles von Tschernobyl im Jahr 1986 und der Atomwaffentests der 60-er Jahre (Maximum 1963) sowie den jeweils exponentiell abnehmenden Eintrag aus dem Einzugsgebiet des Sees.

Ebenfalls gut zu erkennen sind die erhöhten ^{137}Cs Einträge durch die bewilligten Abgaben des KKW Mühleberg. In Übereinstimmung mit den Angaben der Kraftwerksbetreiber (Referenz 4) zeigen die Sedimentkerne erhöhte ^{137}Cs Konzentrationen für die Jahre 1976, 1979, 1982 und 1999. Die grösste Abgabe durch das KKW Mühleberg fand im Jahre 1976 statt und ein entsprechender Peak ist in allen Sedimentkernen zu finden. Die Abgaben von 1979 und 1982 sind deutlich in den Sedimentkernen des Standortes 1 (tiefstes Becken) und Standortes 3 (Becken auf der Seite der Aaremündung) zu erkennen. Beim Standort 2 (hinter der St. Petersinsel) sind diese Einträge weniger gut ersichtlich. Der von den Genfer Forschern gefundene ^{137}Cs -Peak um das Jahr 2000 konnte in fünf der sechs neuen Sedimentkerne nachgewiesen werden. Unter Berücksichtigung der Unsicherheit der Datierung (2000 ± 2 Jahre) kann diese Erhöhung mit den vom KKW Mühleberg deklarierten erhöhten Abgaben für das Jahr 1999 erklärt werden.

Die Tiefenverteilungen der Plutoniumisotope zeigen nur den direkten Eintrag aufgrund der oberirdischen Kernwaffentests in den späten 50-er und den frühen 60-er Jahren sowie einen verschleppten Eintrag von Bomben-Plutonium welches damals in den Böden abgelagert wurde und später durch Erosion in den See gelangte (Abbildungen 2 - 4). Ein zusätzlicher Eintrag durch das KKW Mühleberg ist nicht zu erkennen. Dass alles Plutonium von den Kernwaffenversuchen stammen muss, wird auch durch das Isotopenverhältnis von $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ bestätigt (rechte Spalte in den Figuren 2 - 4). Ein Wert von 0.18 für das $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ Verhältnis ist typisch für den globalen Ausfall nach den Kernwaffentests. Für Plutonium aus dem Reaktor des KKW Mühleberg würde man ein höheres Isotopenverhältnis erwarten.

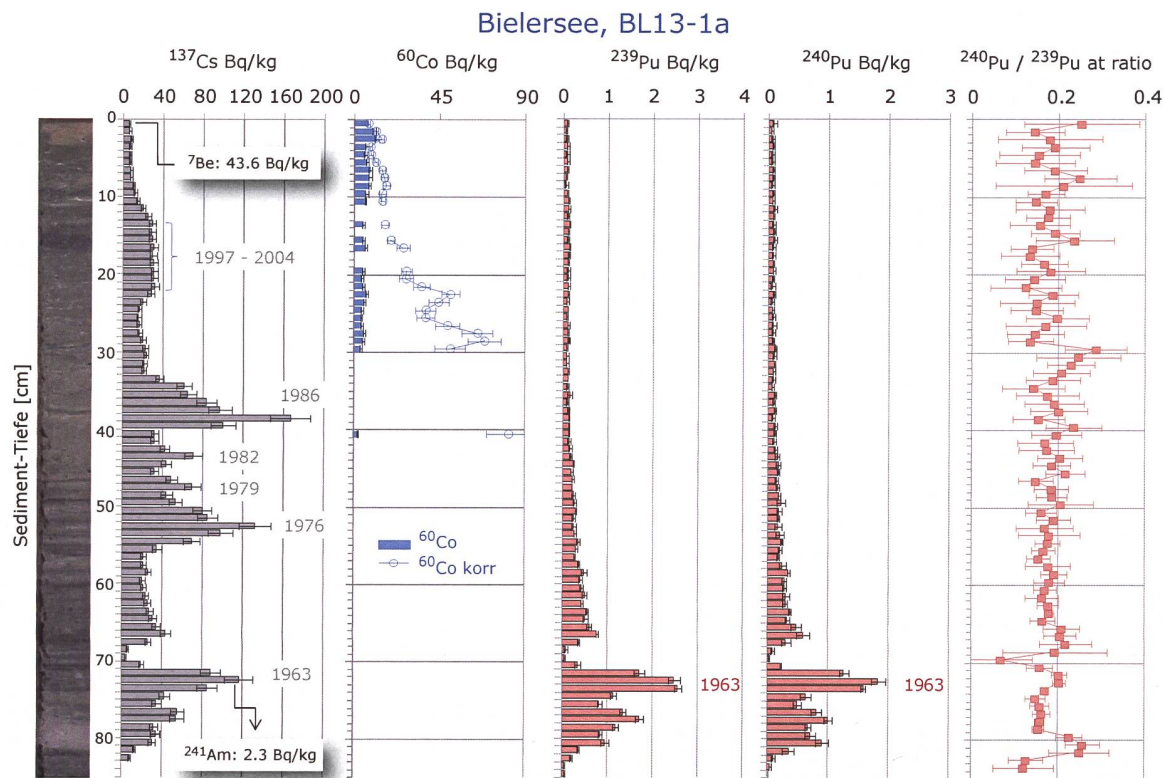


Abbildung 2:
Tiefenverteilung künstlicher Radionuklide am Standort 1 (BL13-1a)

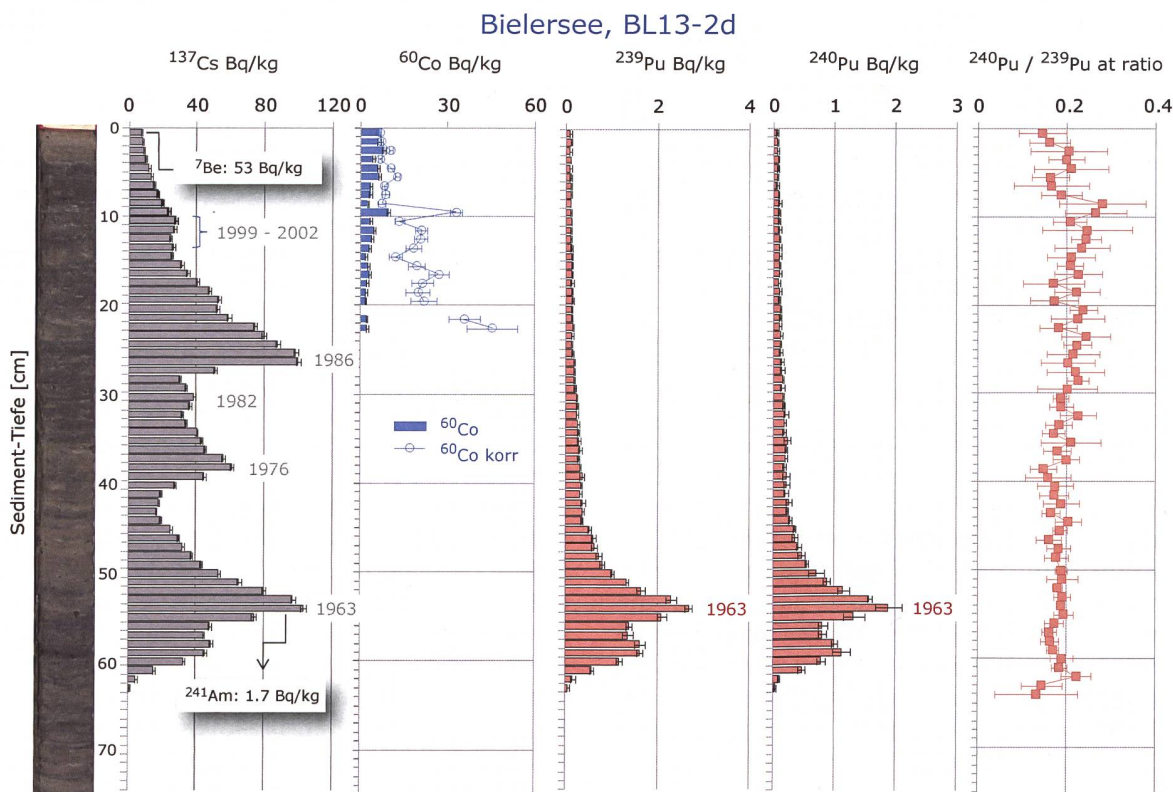


Abbildung 3:
Tiefenverteilung künstlicher Radionuklide am Standort 2 (BL13-2d)

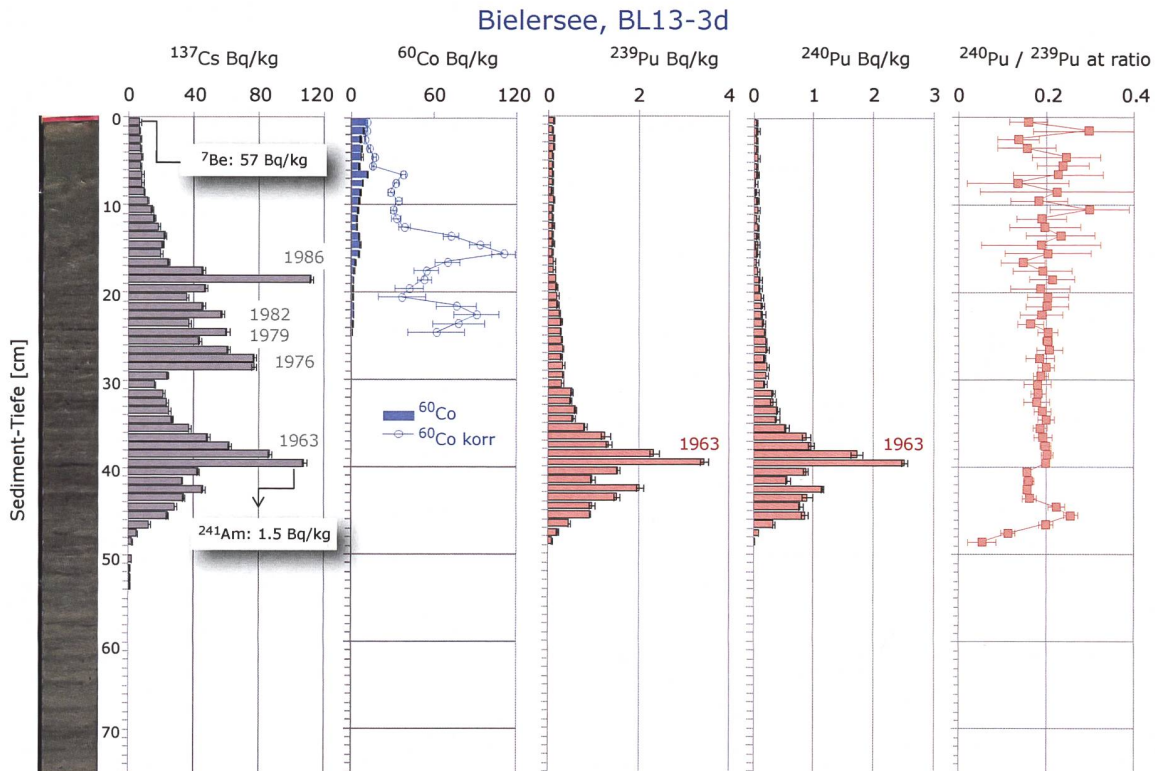


Abbildung 4:
Tiefenverteilung künstlicher Radionuklide am Standort 3 (Kern BL13-3d)

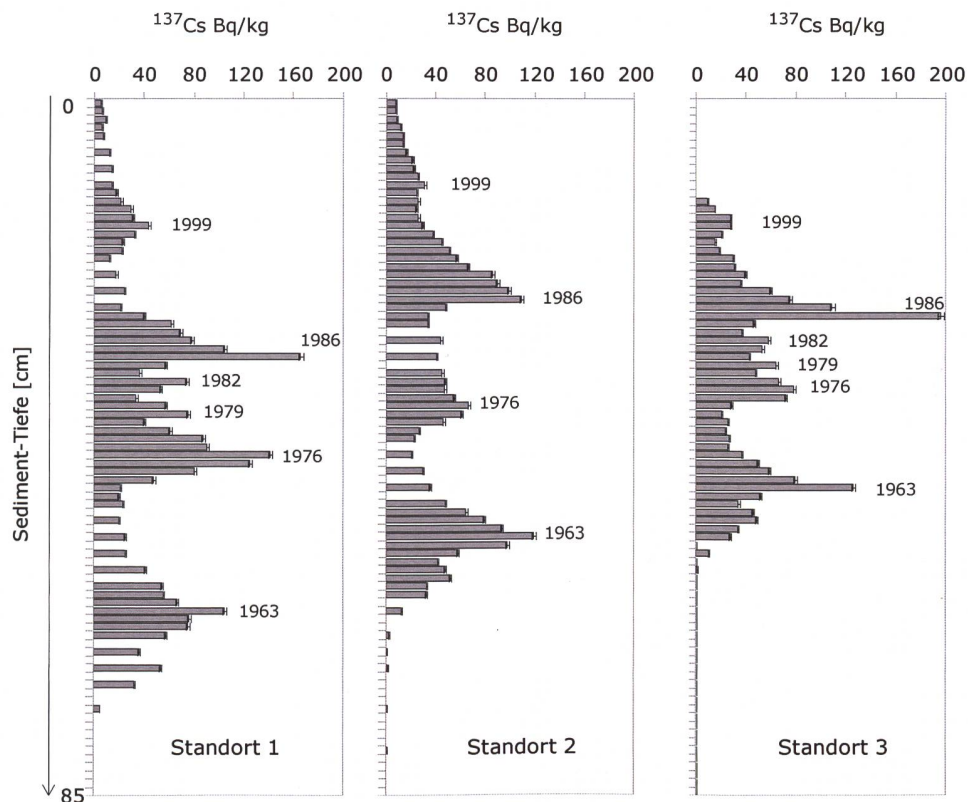


Abbildung 5:
Tiefenverteilungen von ^{137}Cs in den zweiten an jedem der Standorte 1-3 entnommenen Kerne (Kerne BL13-1C, BL13-2E und BL13-3E). Beim Kern von Standort 3 fehlen die obersten Zentimeter.

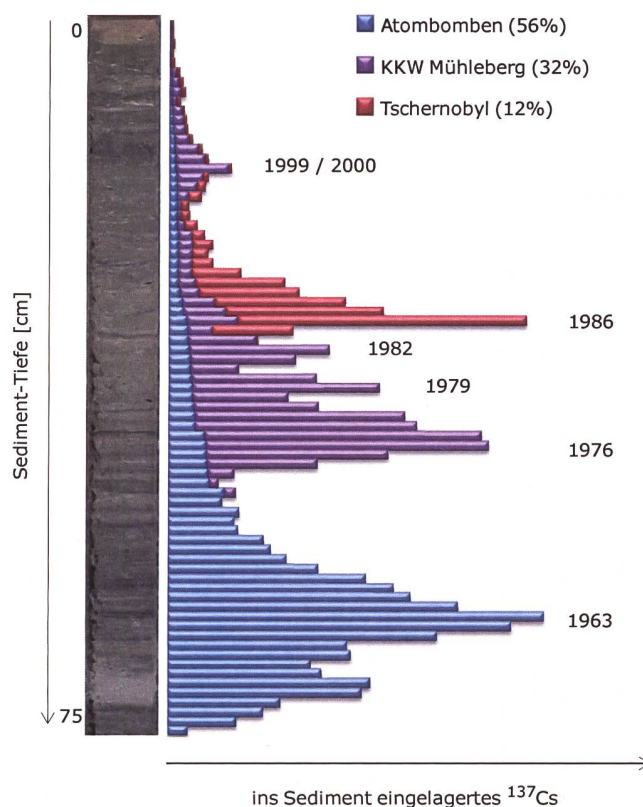


Abbildung 6:

Sedimentkern aus dem Bielersee (Standort 1) mit Zuordnung der Herkunft des künstlichen Radioisotops ^{137}Cs . Dargestellt ist die ursprünglich im Sediment eingelagerte Menge an ^{137}Cs . Aufgrund der Halbwertszeit von 30 Jahren ist inzwischen ein Teil des ^{137}Cs in den unteren Schichten bereits zerfallen. Die Spitzen sind aber immer noch erkennbar (siehe Abbildungen 2 - 5).

Im Unterschied zu den Sedimenten von Seen ohne Kernkraftwerke an den Zuflüssen (etwa Thuner- und Brienersee; Referenz 5) kann in den Sedimenten des Bielersees ^{60}Co nachgewiesen werden. Aufgrund der relativ kurzen Halbwertszeit von ^{60}Co (5.3 Jahre) nehmen die Aktivitätskonzentrationen mit der Tiefe schnell ab. Die zerfallskorrigierten ^{60}Co Aktivitätskonzentrationen (^{60}Co korr in den Abbildungen 2 - 4) zeigen jedoch, dass der Eintrag von ^{60}Co aus dem Kernkraftwerk Mühleberg in jüngerer Zeit deutlich zurückgegangen ist.

Die Abbildung 6 versucht die Einträge von ^{137}Cs in den Bielersee den verschiedenen Quellen zuzuordnen. Dargestellt ist das zerfallskorrigierte ^{137}Cs Tiefenprofil von Standort 1 (Kern 1C), wobei der radioaktive Zerfall von ^{137}Cs rechnerisch zurückkorrigiert wurde. Ebenfalls korrigiert ist der Einfluss der teilweise etwas unterschiedlichen Dichte des Sediments. Es ist also die ursprüngliche Aktivität pro Sedimentvolumen angegeben. Anders ausgedrückt: die Abbildung 6 zeigt für jede Sedimentschicht, wie gross der zur Zeit der Sedimentbildung ursprüngliche Totaleintrag von ^{137}Cs war und wie dieser sich auf die verschiedenen Beiträge verteilt hat.

Vor der Inbetriebnahme des KKW Mühleberg 1972 ist alles ^{137}Cs den oberirdischen Atomwaffentests zuzuordnen. Auch nach dem Ende der Atomwaffentests ist durch die Erosion von Bodenmaterial im Einzugsgebiet weiterhin etwas Atomwaffen- ^{137}Cs in die Seesedimente gelangt. Dieser „verschleppte“ Anteil lässt sich anhand der Plutoniummessungen gut abschätzen: Für Plutonium betrug der „verschleppte“ Eintrag in den Bielersee im Jahr 1972 15% vom Maximalwert des Jahres 1963 und im Jahr 1986 noch 5% vom Maximum. Ein analoger Verlauf wurde folglich für das ^{137}Cs aus Atomwaffen angewendet. In den 70-er Jahren stammte im Bielersee der Grossteil des ^{137}Cs aus den bewilligten Abgaben des KKW Mühleberg. Diese Einträge errechnen sich für die Sedimentschichten vor dem Reaktorunfall in Tschernobyl (1986) aus der Differenz zwischen Gesamt-Cs-137 und Atomwaffen- ^{137}Cs . Im Jahr 1986 stellte der schon wiederholt erwähnte Reaktorunfall in Tschernobyl die wichtigste ^{137}Cs Quelle dar. Auch für dieses Ereignis muss ein verschleppter Eintrag durch Bodenerosion berücksichtigt werden. Für 1986 und die Jahre danach wurden dem KKW Mühleberg ^{137}Cs -Einträge proportional zu seinen Abgaben zugeordnet, unter Verwendung des Verhältnisses von „Eintrag ins Sediment / Abgabe KKW“ aus den 70er-Jahren.

Das Ergebnis dieser Abschätzung (Abbildung 6) zeigt, dass über den gesamten Zeitraum betrachtet etwas mehr als die Hälfte des ^{137}Cs im Bielersee-Sediment seinen Ursprung in den Atomwaffentests hatte. Das KKW Mühleberg ist für knapp einen Drittel des insgesamt im See abgelagerten ^{137}Cs verantwortlich. Der Rest (rund ein Achtel) ist dem Reaktorunfall in Tschernobyl zuzuordnen. Die Abschätzung zeigt auch, die Einträge von 1999 nur wenige Prozente des Gesamteintrages von ^{137}Cs ausmachten.

Keine gesundheitliche Folgen durch ^{137}Cs im Bielersee

Trotz der zusätzlichen Quelle durch das KKW Mühleberg sind die ^{137}Cs Konzentrationen im Bielersee-Sediment nicht höher als in anderen Seen vergleichbarer Grösse (Brienzersee, Thunersee, Vierwaldstättersee; Referenz 5). Die Seen im Tessin, welche stärker vom Fallout aus Tschernobyl betroffen waren, weisen sogar erheblich grössere ^{137}Cs Konzentrationen auf (Referenz 6). Die höchste im Bielersee-Sediment gemessene ^{137}Cs Konzentration beträgt 200 Bq/kg. Rechnet man die durchschnittliche Konzentration bis zu einer Sedimenttiefe von 70 cm ergeben sich knapp 50 Bq/kg. Betrachtet man nur die obersten 20 cm des Sediments, so ist der Durchschnitt unter 20 Bq/kg ^{137}Cs . Diese Werte liegen deutlich unterhalb des Grenzwertes für ^{137}Cs in Lebensmitteln von 1'000 Bq/kg. Für die menschliche Gesundheit stellt ^{137}Cs in den Bielersee-Sedimenten deshalb keine Gefährdung dar.

Bleibt noch die Frage nach einer möglichen Kontamination von Trinkwasser. Die Abgabelimiten von Radioaktivität an die Flüsse durch die Kernkraftwerke sind so gewählt, dass aufgrund der Verdünnung durch das Flusswasser die Grenzwerte für Trinkwasser eingehalten werden. Eine über mehrere Monate verteilte Abgabe von 10 GBq ^{137}Cs , wie sie im KKW Mühleberg während des Jahres 1999 stattgefunden hat, führt in der Aare zu Konzentrationen, die ein Vielfaches unterhalb des Toleranzwertes für Trinkwasser von 10 Bq/L ^{137}Cs liegen und natürlich noch klarer unterhalb des Grenzwertes von 1'000 Bq/L Trinkwasser. Diese gerechneten Verdünnungen wurden in einer Studie der Eawag durch Messungen bestätigt (Referenz 2). Zusätzlich bestimmt die Eawag die Radioaktivität in der Aare bei Hagneck seit 1998 an kontinuierlich gesammelten Monatsproben. Für das Jahr 1999 zeigen diese Messungen Höchstwerte von 2 mBq/L ^{137}Cs - ein Faktor 5'000 unterhalb des Toleranzwertes. Bedenkt man weiter, dass ein grosser Teil des ^{137}Cs in der Aare an Partikel gebunden ist und somit entweder im See sedimentiert oder bei der Trinkwasseraufbereitung zurückgehalten wird, ist klar, dass nie eine Gefährdung der Gesundheit durch ^{137}Cs in Trinkwasser aus

dem Bielersee bestand. Diese Aussage gilt auch für frühere Jahre, wie die 1970-er Jahre, wo die jährlichen Abgaben durch das KKW Mühleberg bis zu sechs Mal höher waren als 1999, oder die 1960-er Jahre mit den noch höheren Einträgen aufgrund der oberirdischen Atomwaffenversuche.

Referenzen

- 1] Thevenon, F., Wirth, S., Fujak, M., Poté, J., Girardclos, S., 2013, Human impact on the transport of terrigenous and anthropogenic elements to peri-alpine lakes (Switzerland) over the last decades, *Aquatic Sciences*, vol. 75, no. 3, p. 413-424. Download unter: [www.ensi.ch, http://static.ensi.ch/1373883748/101007_s00027-013-0287-6.pdf](http://static.ensi.ch/1373883748/101007_s00027-013-0287-6.pdf).
- 2] Albrecht, A. und Beer, J., 1995: „Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein“ EAWAG-HSK Studie, 95 Seiten (pdf 11.3 MB, http://static.ensi.ch/1373885099/eawag_report_1995_001.pdf)
- 3] Albrecht, A., Goudsmit, G., Zeh, M., 1999: Importance of lacustrine physical factors for the distribution of anthropogenic ^{60}Co in lake Biel.
- 4] ENSI, 2013: Die Fakten zur „Radioaktivität im Bielersee“. [www.ensi.ch](http://www.ensi.ch/de/2013/07/15/die-fakten-zur-radioaktivitaet-im-bielersee/), (pdf: <http://www.ensi.ch/de/2013/07/15/die-fakten-zur-radioaktivitaet-im-bielersee/>).
- 5] Rölli, S., Holzer, R., Sahli, H., Astner, M., Byrde, F., Burger, M., Klemm, E., Putyrskaya, V., 2012: „Natürliche und künstliche Radionuklide in Sedimenten von drei Schweizer Seen“. Kapitel 4.6 im Jahresbericht „Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz, 2011“, BAG, Bern. (pdf: <http://www.bag.admin.ch/themen/strahlung/12128/12242/index.html?lang=de>)
- 6] Putyrskaya, V., Klemm, E., Rölli, S., 2009. Migration of ^{137}Cs in tributaries, lake water and sediment of Lago Maggiore (Italy, Switzerland) – analysis and comparison with Lago di Lugano and other lakes. *Journal of Environmental Radioactivity*, 100, 35-48.

4.6

Radioactivité du sol et de l'herbe

P. Froidevaux, M. Straub, F. Barraud, M. Pedro 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.

R. Holzer, J.A. Corcho Alvarado, M. Astner, B. Balsiger

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. Les résultats montrent que le niveau d'activité artificielle dans le sol et l'herbe est resté faible et au niveau des années précédentes. Les activités des radioéléments habituellement observés dans les échantillons de sol comme conséquence des essais d'armes atomiques réalisées en atmosphère dans les années soixante sont inférieures à 1 Bq/kg pour le plutonium, l'américium et au maximum de quelques Bq/kg pour 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 273 Bq/kg (env. 48 Bq/kg au maximum sur le plateau suisse). Les activités en ^{90}Sr sont restées très similaires à celles observées les années précédentes et sont plus élevées en altitude et au Tessin que sur le reste de la Suisse. Ces variations dans les sols se reflètent au niveau des herbes, avec des activités en ^{90}Sr supérieures dans les herbes de montagne (jusqu'à 10 Bq/kg MS) et du Tessin (^{137}Cs jusqu'à 15 Bq/kg MS).

Introduction

Le plan de prélèvement d'échantillons de sol et d'herbe de l'OFSP pour la mesure de la radioactivité a pour but la surveillance des centrales nucléaires suisses ainsi que l'analyse de sites de référence, hors influence des rejets potentiels des centrales. L'étude de l'impact de l'accident de Tchernobyl, notamment au Tessin, constitue également un but de ces mesures. La couche de sol analysée est celle de 0 - 5 cm de profondeur, car elle contient l'essentiel de la zone racinaire, appelée la rhizosphère, pour la plupart des espèces de plantes constituant l'herbe à brouter. L'herbe analysée est prélevée en général directement sur la surface de sol prélevé, ce qui permet l'établissement de facteurs de transfert sol-herbe. Actuellement en Suisse, la radioactivité artificielle des sols et de l'herbe a pour origine les retombées radioactives globales des essais atmosphériques d'armes atomiques (e.g. ^{90}Sr , ^{137}Cs , Pu, Am) ainsi que du dépôt provenant de l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl (surtout ^{137}Cs).

Dans ce travail, nous avons déterminé l'activité des émetteurs gamma (e.g. ^{137}Cs) et du ^{90}Sr dans des échantillons de sol et d'herbe prélevés aux abords des centrales nucléaires suisses et sur certains sites de référence. Le but est de comparer les valeurs obtenues sur les sites des centrales avec celles obtenues sur les sites de référence ainsi que de comparer les valeurs obtenues avec celles des années précédentes. De plus, nous avons procédé à une étude détaillée des sols sur lesquels sont cultivés des salades, aux alentours de la centrale nucléaire de Leibstadt.

Résultats et discussion

Les résultats des mesures de la radioactivité dans le sol sont présentés dans le Tableau 1. Avec des activités situées entre 220 et 685 Bq/kg, le ^{40}K est l'émetteur gamma dominant. Le ^{137}Cs est l'unique émetteur gamma artificiel mesuré, avec des activités variant entre 4 et 275 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 (jusqu'à 275 Bq/kg). Les sites d'altitude près de Thoune ont des activités intermédiaires (15 - 35 Bq/kg) alors que les sites de plaine, notamment près des centrales nucléaires ont les activités les plus faibles (2 - 16

Bq/kg). Le site d'Arenenberg, en Suisse orientale, est le site de plaine le plus contaminé en ^{137}Cs (48 Bq/kg); en effet cette région a subi de fortes précipitations juste après l'accident de Tchernobyl. Les sites aux abords des centrales nucléaires sont bien représentés dans les prélèvements et ne montrent pas de marquage supplémentaire en ^{137}Cs dû aux rejets. La mesure de ^{90}Sr dans les sédiments prélevés en aval des centrales confirme l'absence de marquage (< 0.5 Bq/kg, $n=3$). Les activités en ^{90}Sr de ces sédiments sont comparables à celles des sédiments prélevés en 2012 dans la Broye, hors impact des centrales nucléaires suisses (< 0.7 Bq/kg, $n=3$).

Tableau 1:

Activité du ^{40}K , ^{137}Cs , ^{90}Sr , Pu et Am dans des sols (0-5 cm) prélevés en Suisse en 2013 (Bq/kg matière sèche, $< 2\text{mm}$).

| Canton / Lieu | n | ^{40}K | ^{60}Co | ^{134}Cs | ^{137}Cs | ^{90}Sr | $^{239+240}\text{Pu}$ | ^{241}Am |
|-------------------------------|---|-----------------|------------------|-------------------|-------------------|------------------|-----------------------|-------------------|
| AG (voisinage KKB) | 2 | 387 - 462 | < 0.6 | < 0.6 | 14.7 - 18.5 | 0.97 ± 0.22 | 0.13 ± 0.01 | 0.05 ± 0.01 |
| AG (KKB in-situ) | 2 | 320 - 350 | | | 10.8 - 12.0 | | | |
| AG (PSI) | 1 | 407 ± 45 | < 0.8 | < 0.8 | 13.6 ± 1.6 | 0.52 ± 0.15 | 0.09 ± 0.01 | 0.04 ± 0.01 |
| AG (PSI in-situ) | 1 | 310 ± 32 | | | 7.8 ± 1.0 | | | |
| AG (ZWILAG) | 1 | 390 ± 43 | < 0.7 | < 0.6 | 11.9 ± 1.4 | 0.57 ± 0.13 | 0.11 ± 0.01 | 0.04 ± 0.01 |
| AG (ZWILAG in-situ) | 1 | 320 ± 34 | | | 8.2 ± 1.0 | | | |
| AG (vois. KKL) | 4 | 387 - 458 | < 0.7 | < 0.7 | 10.5 - 12.9 | 0.70 ± 0.15 | 0.17 ± 0.01 | 0.06 ± 0.01 |
| AG (KKL in-situ) | 4 | 330 - 360 | | | 7.0 - 12.1 | | | |
| AG/SO (vois. KKG) | 4 | 392 - 446 | < 0.8 | < 0.8 | 10.3 - 17.7 | 0.65 ± 0.15 | 0.17 ± 0.02 | 0.09 ± 0.01 |
| AG/SO (KKG in-situ) | 4 | 290 - 320 | | | 6.7 - 10.7 | | | |
| BE (voisinage KKM) | 4 | 333 - 716 | < 0.9 | < 0.8 | 4.8 - 14.7 | 1.13 ± 0.14 | 0.08 ± 0.01 | 0.03 ± 0.01 |
| BE (KKM in-situ) | 4 | 220 - 560 | | | 5.5 - 11.1 | | | |
| BE (Mürren) ¹⁾ | 1 | 507 ± 42 | < 0.5 | < 0.6 | 34.1 ± 4.1 | 5.05 ± 1.82 | 0.40 ± 0.02 | 0.14 ± 0.01 |
| BE (Gimmelwald) ²⁾ | 1 | 240 ± 21 | < 0.8 | < 1.0 | 24.8 ± 3.1 | 2.30 ± 0.32 | 0.35 ± 0.02 | 0.15 ± 0.01 |
| BE (Fahrni) ³⁾ | 1 | 392 ± 33 | < 0.5 | < 0.5 | 16.3 ± 2.0 | 2.51 ± 0.75 | 0.28 ± 0.02 | 0.12 ± 0.01 |
| BE (Diesse/Jura) | 1 | 419 ± 36 | < 0.5 | < 0.5 | 13.0 ± 1.6 | 1.01 ± 0.22 | 0.39 ± 0.02 | 0.17 ± 0.01 |
| BL (Sissach) | 1 | 640 ± 18 | | < 0.1 | 26.0 ± 1.0 | 3.40 ± 0.69 | | |
| FR (Posieux) | 1 | 392 ± 45 | < 1.0 | < 0.9 | 5.7 ± 1.0 | 0.78 ± 0.19 | 0.08 ± 0.01 | 0.03 ± 0.01 |
| FR (Posieux in-situ) | 1 | 330 ± 47 | | | 4.2 ± 0.8 | | | |
| GE (Vois. CERN) | 5 | 414 - 488 | < 0.9 | < 0.8 | 4.1 - 15.2 | 0.55 - 0.98 | 0.04 - 0.08 | 0.02 - 0.04 |
| GE (CERN in-situ) | 5 | 310 - 340 | | | 2.1 - 5.2 | | | |
| TG (Güttingen) | 1 | 435 ± 48 | < 0.9 | < 0.9 | 16.3 ± 1.9 | 0.43 ± 0.18 | 0.10 ± 0.010 | 0.05 ± 0.01 |
| TG (Güttingen in-situ) | 1 | 260 ± 28 | | | 9.3 ± 1.2 | | | |
| TG (Arenenberg) | 1 | 389 ± 12 | < 0.4 | < 0.5 | 48.0 ± 1.0 | 0.52 ± 0.13 | 0.10 ± 0.01 | 0.05 ± 0.01 |
| TI (Centovalli) | 1 | 634 ± 69 | | < 0.8 | 172.0 ± 28.0 | 28.0 ± 5.50 | | |
| TI (Leventina) | 1 | 478 ± 68 | | < 0.6 | 9.5 ± 2.0 | 9.0 ± 1.8 | | |
| TI (Malcantone) | 1 | 644 ± 73 | | < 1.0 | 103.0 ± 10.0 | 18.0 ± 3.6 | | |
| TI (Stabio) | 1 | 630 ± 69 | < 1.0 | < 1.0 | 273.0 ± 28.0 | | | |
| TI (Stabio in-situ) | 1 | 550 ± 57 | | | 152.0 ± 15.0 | | | |
| TI (Cadenazzo) | 1 | 683 ± 74 | < 0.9 | < 0.9 | 72.2 ± 7.6 | 0.88 ± 0.19 | 0.06 ± 0.01 | 0.01 ± 0.05 |
| TI (Cadenazzo in-situ) | 1 | 580 ± 60 | | | 59.6 ± 6.1 | | | |
| Ti (Caslano) | 1 | 584 ± 63 | < 0.8 | < 0.8 | 90.6 ± 9.4 | | | |
| Ti (Caslano in-situ) | 1 | 500 ± 52 | | | 54.7 ± 5.6 | | | |

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

Tableau 2:

Activité du ^{90}Sr dans les sédiments prélevés en aval des centrales nucléaires suisses Suisse en 2013 (Bq/kg matière sèche, < 2mm) et les sédiments prélevés au point de rejet du système de drainage de l'ancienne centrale nucléaire de Lucens en 2012.

| Lieu | ^{90}Sr (Bq/kg MS) |
|------------------------|-----------------------------|
| Lucens 80m rejet | 0.25 ± 0.15 |
| Lucens 10m rejet | 0.67 ± 0.13 |
| Lucens 30m rejet amont | 0.30 ± 0.08 |
| Pratteln | < 0.5 |
| Klingnau | < 0.5 |
| Hagneck | 0.36 ± 0.12 |

L'analyse des activités du ^{90}Sr mesurées dans les sols du plateau suisse durant ces 40 dernières années montre que l'activité en ^{90}Sr dans les sols n'a cessé de décroître depuis l'adoption du traité d'interdiction des essais nucléaires en atmosphère en 1963. Le temps de résidence du ^{90}Sr dans la couche 0 - 5 cm du sol, estimé à partir de ces données, est de 14 ans. Il est de 13.5 ans dans l'herbe. Le temps de résidence représente le temps nécessaire pour que la moitié de l'activité en ^{90}Sr disparaisse du compartiment environnemental considéré, à savoir le sol ou l'herbe. Il est très similaire dans le lait et les vertèbres humaines (Froidevaux et al. 2010), ce qui montre bien le lien existant entre le com-

partiment «sol» qui est le réservoir de ^{90}Sr déposé lors des retombées globales des essais nucléaires, et les autres compartiments mesurés également annuellement que sont l'herbe, le lait et les vertèbres humaines.

Les résultats des mesures de radioactivité dans l'herbe sont présentés dans le Tableau 3. Comme pour le sol, les prélèvements sont réalisés pour comparer les mesures aux abords des centrales à celles de sites de référence. Nous pouvons faire les mêmes constatations que les années précédentes, soit que les activités du ^{137}Cs et du ^{90}Sr de l'herbe sont très basses en plaine et près des centrales nucléaires pour ces deux radioéléments anthropogénique, qui sont les seuls mesurables au-dessus de la limite de détection. Dans les sites de plaine, les activités de ^{90}Sr ne dépassent pas 1 Bq/kg; elles augmentent avec l'altitude des sites de prélèvements, avec des activités jusqu'à 10 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 15 Bq/kg) et parfois aussi du ^{90}Sr (jusqu'à 8 Bq/kg). Comme dans le sol, l'activité en ^{90}Sr dans l'herbe a constamment diminuée depuis l'adoption du traité d'interdiction des essais nucléaires atmosphériques.

Tableau 3:

^7Be , ^{40}K , ^{137}Cs et ^{90}Sr dans des échantillons d'herbe prélevés en Suisse en 2013 (Bq/kg de matière sèche). Pour les échantillons uniques, la valeur et l'incertitude sont indiquées ($a \pm b$). Si plusieurs échantillons ont été mesurés 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 | 161 - 303 | 708 - 1'414 | < 2.0 | < 1.8 | < 1.3 - 0.5 ± 0.4 | 0.88 - 1.58 |
| AG (PSI-ZWILAG) | 2 | 125 - 460 | 645 - 1'450 | < 1.4 | < 1.2 | < 1.3 - 1.2 ± 0.5 | 1.53 ± 0.13 |
| AG (PSI-OASE) | 2 | 186 - 251 | 926 - 1'177 | < 1.8 | < 1.5 | < 1.2 - 0.8 ± 0.7 | 1.45 ± 0.12 |
| AG (Voisinage KKL) | 8 | 75 - 331 | 510 - 1'520 | < 1.7 | < 1.5 | < 1.1 - 2.0 ± 0.6 | 1.32 - 1.82 |
| AG/SO (Voisinage KKG) | 8 | 107 - 326 | 873 - 1'585 | < 2.0 | < 1.5 | < 1.3 - 1.1 ± 0.6 | 0.99 - 1.42 |
| BE (Voisinage KKM) | 8 | 97 - 438 | 461 - 1'372 | < 3.0 | < 3.0 | < 3.0 | 0.51 - 1.24 |
| BE (Mürren) ¹⁾ | 1 | 166 ± 26 | 428 ± 37 | < 0.7 | < 0.5 | 0.91 ± 0.16 | 9.30 ± 1.30 |
| BE (Gimmelwald) ²⁾ | 1 | 204 ± 32 | $1'100 \pm 95$ | < 1.0 | < 0.7 | 0.57 ± 0.14 | 1.59 ± 0.29 |
| BE (Fahrni) ³⁾ | 2 | 171 - 260 | 1'010 - 1'180 | < 1.0 | < 0.7 | < $0.28 \pm 0.29 \pm 0.1$ | 3.67 - 5.27 |
| BE (Diesse/Jura) | 2 | 121 - 260 | 1'120 - 1'290 | < 1.0 | < 0.7 | < 0.70 | 0.31 - 0.85 |
| BL (Sissach) | 1 | | $1'100 \pm 34.0$ | | < 0.1 | 1.6 ± 0.51 | 1.60 ± 0.30 |
| GE (Voisinage CERN) | 5 | 170 - 272 | 790 - 1'224 | < 3.0 | < 2.5 | < 2.60 | 0.73 - 1.06 |
| FR (Posieux) | 2 | 176 - 287 | 991 - 1'140 | < 1.9 | < 1.5 | < 1.90 | 1.23 ± 0.08 |
| TG (Güttingen) | 2 | 178 - 184 | 1'157 - 1'282 | < 2.0 | < 1.5 | < $1.70 - 0.7 \pm 0.4$ | 1.18 ± 0.10 |
| TG (Arenenberg) | 1 | 265 ± 12 | $1'069 \pm 27$ | < 0.5 | < 0.5 | 2.1 ± 0.6 | 0.41 ± 0.07 |
| TI (Centovalli) | 1 | 184 ± 36 | 674 ± 79 | | < 2.8 | 14.5 ± 3.1 | 14.0 ± 1.70 |
| TI (Leventina) | 1 | 169 ± 21 | 792 ± 61 | | < 1.3 | 1.4 ± 0.7 | 3.80 ± 0.50 |
| TI (Malcantone) | 1 | 278 ± 36 | $1'400 \pm 110$ | | < 1.4 | 1.1 ± 0.7 | 8.10 ± 1.00 |
| TI (Cadenazzo) | 2 | 97 - 302 | 1'110 - 1485 | < 2.0 | < 2.0 | < $2.0 - 3.3 \pm 0.8$ | 1.39 - 5.61 |
| TI (Stabio) | 1 | 143 ± 22 | 516 ± 68 | < 2.1 | < 1.9 | 1.6 ± 1.1 | |
| TI (Caslano) | 1 | 184 ± 24 | 659 ± 78 | < 2.0 | < 2.0 | < 2.0 | |

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

Analyse des sols aux alentours de la centrale nucléaire de Leibstadt

Depuis plus de 15 ans, nous analysons le ^{90}Sr dans des salades cultivées aux alentours de la centrale nucléaire de Leibstadt. Les activités sont situées entre 6 et 10 Bq/kg de masse sèche. Depuis 2009, nous analysons également le ^{90}Sr dans des produits frais du marché de Lausanne, dont des salades. L'activité du ^{90}Sr dans celles-ci ne dépasse pas 1 à 2 Bq/kg de masse sèche. Nous avons donc voulu comprendre pourquoi les salades de Leibstadt contenaient 5 à 10 fois plus de ^{90}Sr alors que les sols du voisinage de Leibstadt examinés dans le cadre du plan de prélèvement ne montrent pas d'activité de ^{90}Sr supérieure à 2 Bq/kg, soit une activité tout-à-fait normale pour le plateau suisse. Nous avons donc collecté les sols directement associés aux cultures de salades et de pommes-de-terre et mesuré l'activité en ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu et ^{241}Am . Les résultats sont présentés dans le tableau 4.

Tableau 4 :

Activité en Bq/kg de ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am dans les sols (< 1mm) prélevés aux environs de Leibstadt en 2013.

| Lieu | ^{90}Sr (Bq/kg) | $^{239+240}\text{Pu}$ (Bq/kg) | ^{241}Am (Bq/kg) |
|----------------------------|-----------------------------|----------------------------------|------------------------------|
| Sol salade Leibstadt | 3.80 ± 0.40 | 0.260 ± 0.020 | 0.107 ± 0.010 |
| Sol salade Dogern | 1.10 ± 0.13 | 0.180 ± 0.026 | 0.077 ± 0.008 |
| Sol pommes-de-terre Dogern | 4.30 ± 0.30 | 0.188 ± 0.024 | 0.077 ± 0.008 |
| Sol pommes-de-terre Dogern | 1.03 ± 0.15 | 0.200 ± 0.015 | 0.075 ± 0.008 |

On constate que les sols sur lesquels poussent les salades et les pommes-de-terre prélevées à Leibstadt et Dogern contiennent des activités supérieures en ^{90}Sr , plutonium et américium par rapport aux sites de plaine. Toutefois, ces activités présentent très exactement les mêmes rapports isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}=0.033 \pm 0.007$ et $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}=0.41 \pm 0.03$ que les retombées des essais nucléaires des années soixante. On peut donc conclure de ces mesures que l'activité supérieure des salades de Leibstadt est due à un sol plus actif par rapport aux sites de plaine, mais sans apport de la centrale de Leibstadt. Il est possible que l'adjonction de sol organique (tourbe) dans les sols de culture soit la cause de l'augmentation de l'activité en radioéléments artificiels de ce sol. En effet, l'exploitation de tourbières étant interdite en Suisse, la tourbe provient d'exploitations étrangères, notamment de l'est de l'Europe, dont les sols sont notoirement plus contaminés en radioéléments

artificiels. Cette petite étude démontre également qu'il est très important de maîtriser toutes les étapes du prélèvement et de la mesure lorsque l'on veut tirer des conclusions de résultats de mesures. Notamment, lors de l'interprétation de résultats de mesures de végétaux, il n'est pas seulement indispensable d'en connaître la classification phylogénétique mais également d'avoir une connaissance des propriétés physico-chimiques principales du sol, comme le pH, la CEC et la minéralogie (Guillaume et al. 2012).

Conclusions

Les activités de ^{90}Sr et de ^{137}Cs dans les sols et les herbes en Suisse en 2013 sont similaires à celles mesurées les années précédentes. Aucune augmentation d'activité n'a été constatée, ni aux abords des centrales nucléaires, ni dans les sites de référence. Les sites de montagne et certains sites du Tessin présentent des activités de ^{90}Sr et de ^{137}Cs supérieures à celles mesurées sur les sites de plaine, centrales nucléaires comprises. L'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl est par contre encore responsable d'un marquage assez important en ^{137}Cs dans des échantillons de sol et d'herbe de certains sites de prélèvement du Tessin.

Les activités de ^{90}Sr relativement plus élevées des salades prélevées à Leibstadt par rapport aux salades prélevées au marché de Lausanne (et cultivées alentours) sont bien dues à un sol plus contaminé par le ^{90}Sr , le plutonium et l'américium. Toutefois, les rapports isotopiques de ces radioéléments montrent que l'augmentation de ces activités n'est pas due à un apport supplémentaire par la centrale nucléaire de Leibstadt.

Références

- Froidevaux, P., Haldimann, M., Bochud, F. Chemosphere 80, 519-524, 2010.
- Guillaume, T., Chawla, F., Steinmann, P., Gobat, JM., Froidevaux, P. Plant Soil, 355, 29-39, 2012.

4.7

Risikoabschätzung zum Eintrag von Uran aus Düngern ins Grundwasser in der Schweiz

H. Surbeck

Nucfilm GmbH, CH-1792 Cordast

Zusammenfassung

Eine Abschätzung des möglichen Uraneintrags durch Dünger ins Grundwasser in der Schweiz ist mit grossen Unsicherheiten behaftet. Für Niederschlagsmengen, Evapotranspiration und Oberflächenabfluss gibt es zwar zuverlässige Daten, die Variationsbreite ist aber recht gross. Für die Infiltration wurde der Wert von $600 \pm 200 \text{ l/m}^2$ und Jahr verwendet.

Der Urangehalt der Phosphatdünger ($\text{mg U/kg P}_2\text{O}_5$) erstreckt sich nach neueren Messungen über 2 Grössenordnungen. Die Häufigkeitsverteilung zeigt 3 deutlich unterschiedliche Populationen. Etwa 30% der Proben enthalten kaum Uran, etwa 20% sehr viel. Für die Abschätzung des Eintrags wurde die mittlere Population benützt. Sie weist eine lognormale Verteilung auf. Verwendeter Wert: $250 \pm 100 \text{ mg U/kg P}_2\text{O}_5$.

Grosse Unsicherheit besteht auch beim tatsächlichen aktuellen Einsatz von Mineraldüngern. Der gewählte Wert von $35 \pm 12 \text{ kg P}_2\text{O}_5/\text{ha}$ und Jahr ist sehr wahrscheinlich höher als der aktuelle Eintrag, berücksichtigt aber, dass frühere Einträge möglicherweise durch die Bodenbearbeitung remobilisiert werden können. Er berücksichtigt indirekt zusätzlich, dass Uran auch aus organischen Düngern stammen kann.

Mit den obigen Schätzwerten ergibt sich, dass im Mittel $1.5 \text{ } \mu\text{g U/l}$ im Grundwasser aus dem Eintrag von uranhaltigem Mineraldünger stammen könnten.

Die Summe der relativen Unsicherheiten beträgt ca. 100%. Damit ergibt sich ein geschätzter Beitrag der Mineraldüngung in der Schweiz zum Urangehalt des Grundwassers von < 0.1 bis $3 \text{ } \mu\text{g U/l}$.

In diesem Bereich liegen, je nach Region, 50% bis über 90% der Messwerte in Schweizer Grundwässern. Das heisst aber nicht, dass diese Urankonzentrationen anthropogenen Ursprungs sind. Das heisst nur, dass geogener und anthropogener Beitrag in der gleichen Grössenordnung liegen könnten.

Man sollte auch nicht vergessen, dass Uran natürlicherweise im Boden vorhanden ist. Auch dieses Uran kann mobilisiert werden und ins Grundwasser gelangen - besonders in landwirtschaftlich genutzten Böden. Gleichzeitig ist klar, dass die vorliegende generelle Abschätzung eine genaue Untersuchung im Einzelfall nicht ersetzt, wenn ein Verdacht auf erhöhten Eintrag von Uran aus Düngern besteht. Übermässiger Einsatz von stark uranhaltigen Düngern, ungünstige Bodenverhältnisse oder plötzliches Auswaschen von über lange Zeit akkumuliertem Uran sind Faktoren, die lokal durchaus zu einer stärkeren Belastung von Trinkwasser führen könnten.

Einleitung

Um das Jahr 1990 gab es in der Schweiz Überlegungen dazu, ob Uran in Phosphatdüngern zu einer nicht tolerierbaren Strahlungsbelastung beim Umgang mit diesen Düngern führen könnte (BUWAL 1991). Im Fokus stand dabei weniger die mögliche Belastung des Grundwassers als vielmehr die Arbeitssicherheit.

Das Thema Uran im Grundwasser wurde in der Schweiz 2005 wieder aktuell, nach Artikeln im Gesundheitstipp, zuerst über Uran in Mineralwässern und dann über Uran in Trinkwässern (Gesundheitstipp 2006). Vorerst wurden erhöhte Werte allerdings nur der Natur angelastet.

Ab etwa 2011 erreichte dann die „Uran im Trinkwasser aus Dünger“-Diskussion aus Deutschland auch die Schweiz. Auslöser dieser Diskussion in Deutschland waren vor allem Publikationen mit nicht immer nachvollziehbaren Annahmen über den Einsatz von uranhaltigen Phosphatdüngern (Kratz & Schnug 2006, Knolle 2009). Eine Anfrage im Deutschen Bundestag (Deutscher Bundestag 2009) führte dann zum generellen Angriff auf uranhaltige Dünger (Schnug 2012). Daraufhin gab die Kommission Bodenschutz beim Umweltbundesamt eine Empfehlung ab für eine Kennzeichnungspflicht ab 20 mg U /kg P_2O_5 und für ein Verbot von Düngern mit mehr als 50 mg U /kg P_2O_5 (Umweltbundesamt 2012).

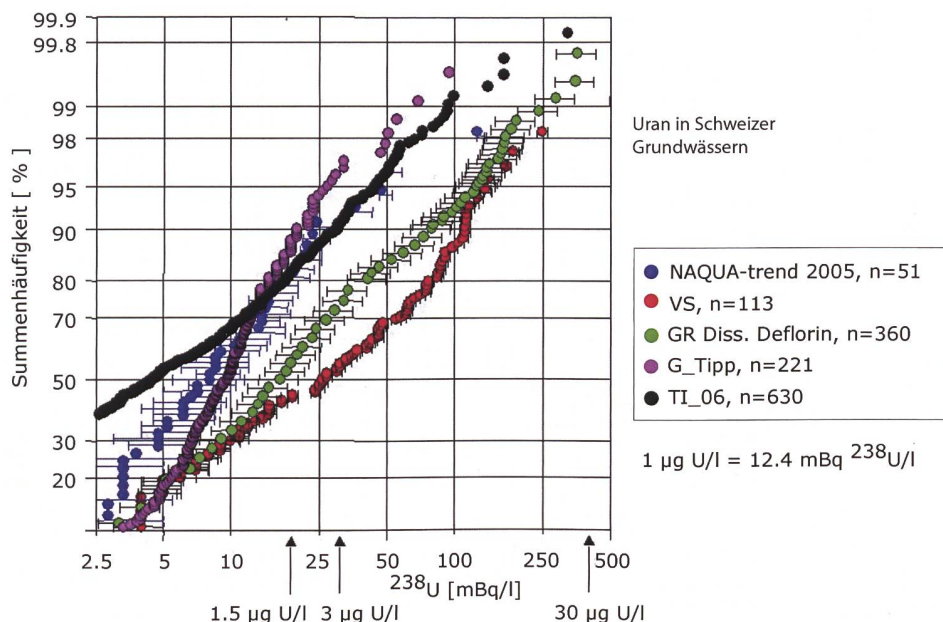
Eine Marktkontrolle an 2011/2012 in der Schweiz erhobenen Düngerproben bestätigten im wesentlichen die in Deutschland gefundenen Werte. Der Bericht erwähnt explizit die von obiger Kommission empfohlene Limite von 50 mg U /kg P_2O_5 . Sie wird bei 17 der 24 Proben überschritten (siehe unten).

Es gibt in Deutschland inzwischen aber auch einige Publikationen zu diesem Thema, die den geogenen Eintrag von Uran ins Grundwasser wieder stärker berücksichtigen und darauf hinweisen, dass allein schon die Tatsache, dass Landwirtschaft betrieben wird und Phosphor in den Boden eingebracht wird die Mobilität von Uran erhöhen kann (Dienemann & Utermann 2012, Kiefer & Fischer, Hinrichsen 2013).

Der vorliegende Bericht präsentiert die Fakten für die Schweiz.

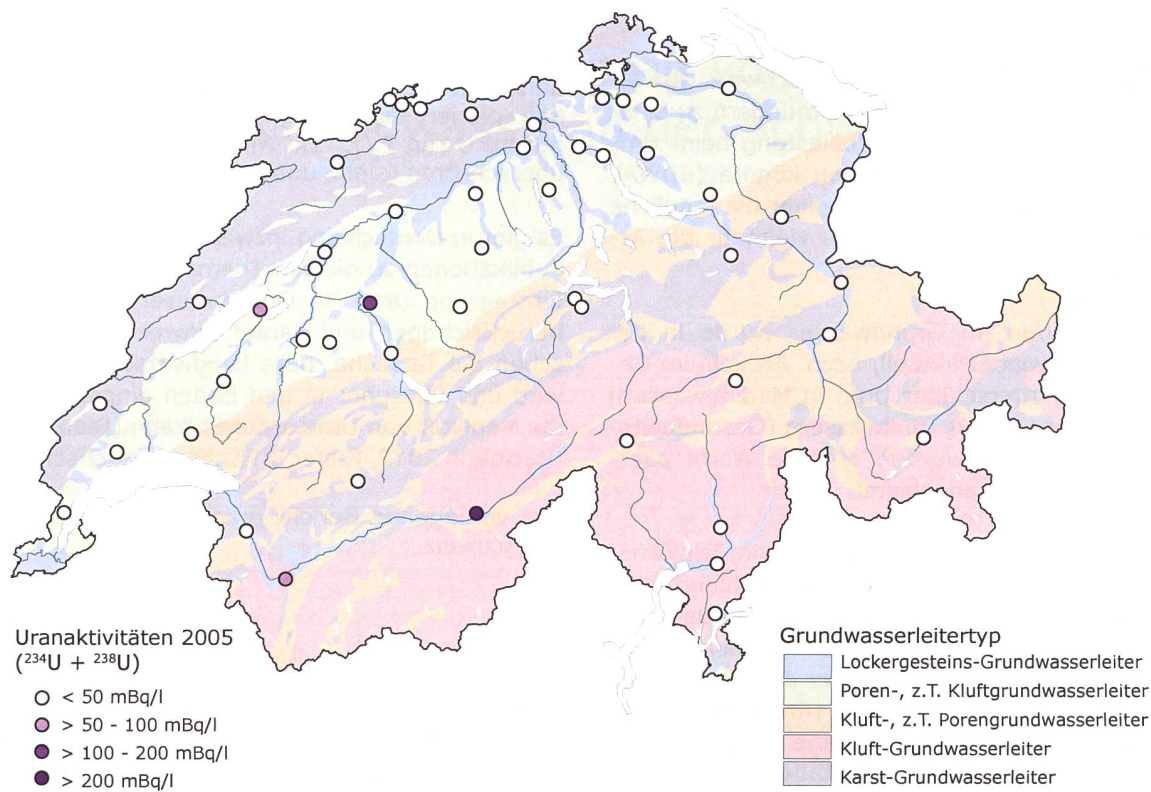
Gesetzliche Grundlagen, Trinkwasserhöchstwerte

Ein Grenzwert für Uran im Trinkwasser ist für die Radioaktivität im Anhang 6 der Fremd- und Inhaltsstoff-Verordnung (FIV) festgelegt. Für Radionuklide der Uran- und Thoriumreihe, Gruppe I (^{224}Ra , ^{228}Th , ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U) gilt für flüssige Lebensmittel ein Grenzwert von 10 Bq/l.

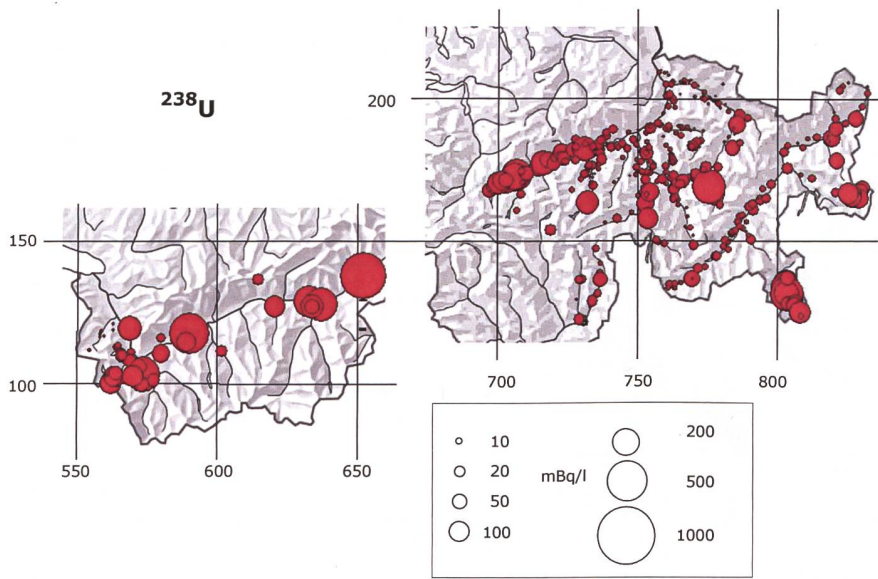


Figur 1:

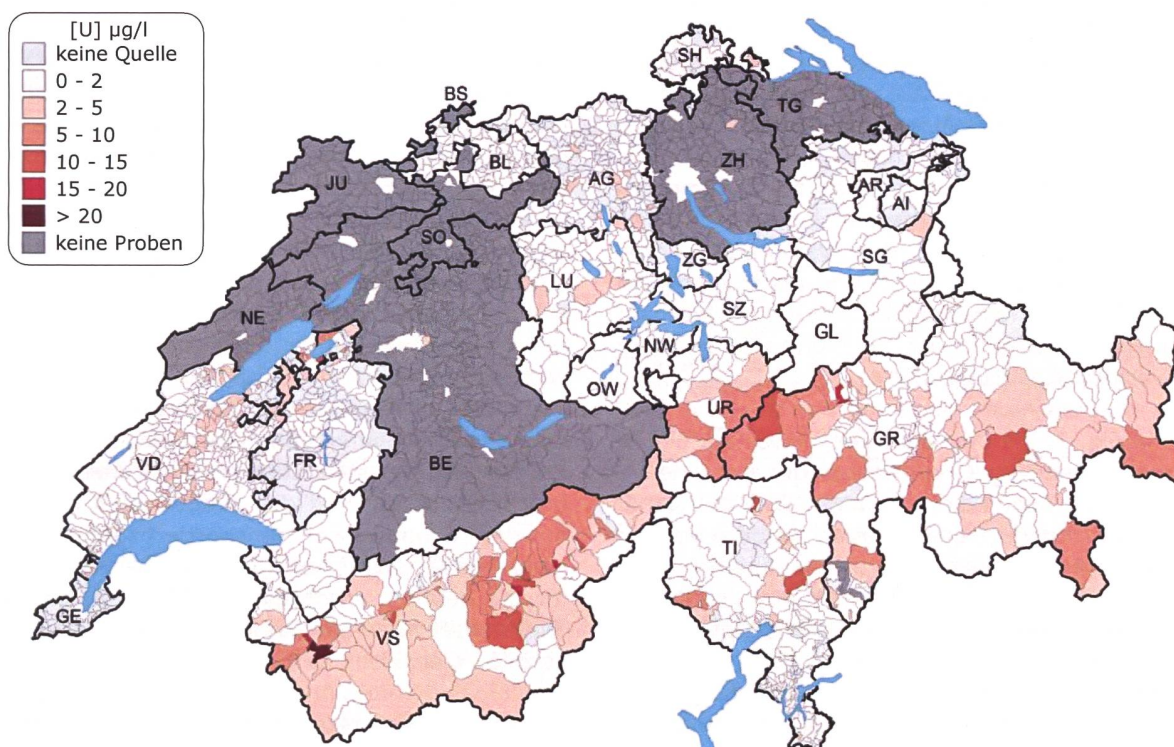
Uran-Konzentrationen in Schweizer Grundwässern. NAQUA-trend: Nationale Grundwasserbeobachtung NAQUA, Modul TREND 2005, BAFU (2009), Surbeck (2007); VS und TI_06: private Mitteilung KL-VS und KL-TI; GR Diss. Deflorin: Deflorin (2004); G_Tipp: Gesundheitstipp (2006).



Figur 2:
Räumliche Verteilung der Uran-Aktivität im Jahr 2005. Nationale Grundwasserbeobachtung NAQUA, Modul TREND, Bundesamt für Umwelt (BAFU 2009).



Figur 3:
Räumliche Verteilung der Daten für die Kantone VS und GR (Surbeck et al. 2006).



Figur 4:
Räumliche Verteilung der Uran-Aktivitäten im Trinkwasser der Schweiz (Haldimann 2012, Stalder et al. 2012).

Die Limite bezieht sich auf die Summe der Radionuklide der Gruppe I. ^{224}Ra ist in Schweizer Trinkwässern bisher nie mit Aktivitäten über 0.1 Bq/l festgestellt worden und Th ist höchstens in sehr sauren Wässern löslich. Solch saure Wässer werden aber nicht als Trinkwasser genutzt. Daher müssen nur die Uranisotope berücksichtigt werden. Falls kein angereichertes Uran vorliegt, macht das ^{235}U nur etwa 5% der Gesamtaktivität aus. Die bisherigen Messungen an Schweizer Trinkwässern haben gezeigt, dass das ^{234}U weitgehend im Gleichgewicht mit dem ^{238}U auftritt. Daher entspricht die Limite von 10 Bq/l je 5 Bq/l ^{238}U und 5 Bq/l ^{234}U . Chemisch sind das etwa 400 µg U/l (1 µg U/l = 12.4 mBq ^{238}U /l).

In der Fremd- und Inhaltsstoffverordnung, FIV, ist das Uran neu auch in der Liste der toxischen Metalle mit einem Grenzwert von 30 µg U/l in Trinkwasser und Mineralwasser aufgelistet. Bezüglich der Radioaktivität entspricht das je 0.37 Bq/l ^{238}U und 0.37 Bq/l ^{234}U .

Im internationalen Vergleich liegen diese 30 µg U/l gleich hoch wie in den USA und entsprechen der aktuellen WHO Empfehlung. Deutlich tiefer ist mit 10 µg U/l der Grenzwert in Deutschland (gültig seit dem 1.11.2011).

Urankonzentrationen in Schweizer Grundwässern

Figur 1 zeigt die Häufigkeitsverteilungen der Urankonzentrationen im Grundwasser für verschiedene Messkampagnen in der Schweiz. Die höchsten bisher in der Schweiz in Trinkwasser gemessenen Urankonzentrationen wurden im Rahmen einer Masterarbeit in der Gegend von Saxon gefunden (ca. 160 µg U/l, Granges 2009). Die höchsten in Grundwasser allgemein in der Nähe des Lyssbachs bei Bern (ca. 400 µg U/l, Schmidt 2013). Beim letztgenannten Standort handelt es sich allerdings um Drainagewasser, das möglicherweise von einer Deponie beeinflusst ist.

Daten aus Deutschland zeigen ähnliche Häufigkeitsverteilungen der Urankonzentrationen im Grundwasser wie in der Schweiz (Knolle 2009, Diemann & Utermann 2012, Hinrichsen 2013, Kiefer & Fischer 2013).

Die teilweise in Fig. 1 und 2 dargestellten Proben der 50 Messstellen der Nationalen Grundwasserbeobachtung NAQUA, Modul TREND wurden in Zusammenarbeit mit dem Bundesamt für Umwelt 2005, 2007/2008 und 2012 vom Bundesamt für Gesundheit auf Uran analysiert (BAFU 2009, Steinmann & Estier 2013). Die Ergebnisse der massenspekt-

rometrischen Messungen von 2007/2008 und von 2012 liegen sehr nahe beieinander. Die mit Alpha-Spektrometrie erhaltenen Werte von 2005 scheinen ein wenig höher zu sein. Auf jeden Fall zeigen diese Messungen keine Zunahme über die letzten 8 Jahre. Es ist auch kein klarer Zusammenhang zwischen der landwirtschaftlicher Nutzung und Urankonzentration zu sehen. So werden im landwirtschaftlich stark genutzten Mittelland nicht systematisch höhere Werte gemessen (Figur 2) und die Mediane der Messstellen mit Hauptbodennutzung "Ackerbau" sowie Hauptbodennutzung "Siedlung und Verkehr" sind vergleichbar (BAFU 2014).

Auch in Fig. 3, die die räumliche Verteilung der U-Konzentrationen im Grundwasser der Kantone VS und GR zeigt, liegen die hohen Werte nicht in landwirtschaftlich genutzten Gebieten, sondern dort wo sie aufgrund der Geologie zu erwarten sind.

Ein etwas anderes Bild zeigen Uran-Messungen an Trinkwasserfassungen des Kantons Bern. Hier wurden die höchsten Werte im Mittelland festgestellt und nicht bei den Fassungen im Alpenraum oder im Jura (KL BE, 2013).

Die Figur 4 zeigt die räumliche Verteilung der Urankonzentrationen in Trinkwasser für einen grossen Teil der Schweiz als Wert pro Gemeinde. Leider verunmöglicht diese Darstellung einen Vergleich mit geologischen Daten oder der Landnutzung.

Niederschlag in der Schweiz, Oberflächenabfluss, Evapotranspiration, Infiltration

Die mittlere jährliche Niederschlagsmenge im Schweizer Mittelland liegt bei etwa (1000 ± 200) mm, der Oberflächenabfluss und die Evapotranspiration bei je etwa 200 mm (BAFU, 2013). Damit verbleiben für den Infiltrationsanteil der Grundwasserneubildung (600 ± 200) mm pro Jahr. Dieser aufgrund der Daten aus dem Hydrologischen Atlas der Schweiz berechnete Wert stimmt recht gut mit den Annahmen der EAWAG (Von Gunten, 2000) für die ganze Schweiz überein (250 bis 500 mm pro Jahr). Für die Abschätzung des Uraneintrags wird für die Infiltration der Wert von (600 ± 200) mm pro Jahr benützt.

Geogene Uranquellen

Uran ist in Gesteinen und damit auch in den Böden allgegenwärtig. Neben Vererzungen (Gillieron 1988) finden sich in der Schweiz auch grossflächig erhöhte Urankonzentrationen. Im Schweizer Mittelland betrifft das neben dem uranreichen Quartärgeschiebe aus den Alpen vor allem Gebiete, bei denen der Übergang von der Unteren Süsswassermolasse zur Oberen Meeresmolasse nahe der Oberfläche liegt. Hier finden sich zahlreiche Tier- und Pflanzenreste mit stark erhöhten Urankonzentrationen. Das Uran wurde zur Zeit der Ablagerung unter anoxischen Bedingungen angereichert. Die Erosion hat im Lauf der letzten Millionen Jahre diese Schichten in den Bereich untiefer, sauerstoffreicher Grundwässer gebracht. Dadurch wird das Uran wieder mobil und mit dem Grundwasser transportiert (Schott & Wiegand 2003). Das ist auch eine mögliche Erklärung für die deutlich erhöhten Urankonzentrationen im Trinkwasser in einem Streifen Seeland - Neuenburgersee - Genfersee (Fig. 4).

Die stark erhöhten Urankonzentrationen im Grundwasser im Wallis und im Kanton Graubünden (Deflorin & Surbeck 2003, Deflorin 2004, Surbeck et al. 2006) finden sich vor allem in Gebieten mit bekannten Verrucano-Vorkommen. Der Verrucano, ein klastisches Sediment aus dem Permokarbon weist häufig erhöhte Urankonzentrationen auf (Gillieron 1988).

Uran kann aber auch aus völlig durchschnittlichen Boden ins Grundwasser gelangen. Im landwirtschaftlich genutzten Oberboden in der Schweiz finden sich ca. 3 mg U/kg (hergeleitet aus Estier & Gurtner, 2013). Das entspricht auch dem Mittelwert in anderen Gegenden Europas (Dienemann & Utermann 2012). Wird auch nur 0.1% dieses Urans pro Jahr aus einer 10 cm dicken Schicht ausgelaugt so ergibt das bereits etwa 0.5 bis 1 µg U/l im Sickerwasser.

Unter besonderen Bedingungen kann natürliche Urananreicherung auch in Gebieten ohne speziell uranreiche Gesteine zu sehr hohen Konzentrationen von Uran in Böden führen. Ein Beispiel dazu findet sich im Dischmatal wo sich in einem natürlichen „hotspot“ Urankonzentrationen von beinahe 1000 mg U/kg T.S. gemessen werden konnten (Regenspurg, 2010).

Anthropogene Uranquellen

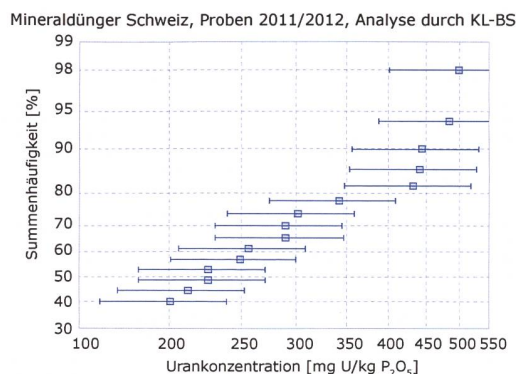
Mineraldünger

Sedimentäre Phosphate zeigen häufig erhöhte Urankonzentrationen: "there is a natural and unavoidable connection between phosphate mining and radioactive material. It is because phosphate and uranium were laid down at the same time and in the same place by the same geological processes millions of years ago. They go together. Mine phosphate, you get uranium" (Profitt 1995). Eruptive Phosphate enthalten dagegen nur wenig Uran. Der überwiegende Teil des zu Phosphatdünger verarbeiteten Rohphosphats stammt aber aus sedimentären Lagerstätten. Eine ausführliche Darstellung zum Uran in Rohphosphaten und in Mineraldüngern findet sich in IAEA 2003.

Urankonzentrationen in den in der Schweiz gehandelten Mineraldüngern

BUWAL (1991) erwähnt Messungen an Mineraldüngern durch das Paul-Scherrer Institut (PSI) und durch die Sektion Ueberwachung Radioaktivität des BAG (SUEr). Das PSI findet einen Mittelwert von 100 mg U/kg, bezogen auf die Trockensubstanz (T.S.). Die damals nicht publizierten Messungen der SUEr ergaben für 23 Proben einen Mittelwert von 670 Bq ^{238}U /kg, das entspricht 53 mg U/kg T.S. Der Maximalwert der SUEr-Messungen betrug 1965 ± 430 Bq ^{238}U /kg (dies entspricht 158 ± 35 mg U/kg T.S.).

Die Kantonalen Laboratorien Bern, Zürich und Basel haben Messungen an 24 Mineraldünger-Proben, die 2011 und 2012 erhoben wurden, durchgeführt. Diese Messungen entstanden im Rahmen einer Marktkontrolle der kantonalen Vollzugsstellen Chemikaliensicherheit in Zusammenarbeit mit dem Bundesamt für Landwirtschaft (BLS). Die Resultate sind in Fig. 5 zu sehen. Die Uran-Aktivitäten liegen im Bereich dessen, was auch in Deutschland gemessen wurde (Kratz & Schnug 2006, Deutscher Bundestag 2009, Dienemann & Utermann 2012, Bundesumweltamt 2012). Es wird daher angenommen, dass die KL BS Daten repräsentativ für in Europa gehandelte Mineraldünger sind. Der Urangelgehalt dieser Proben (mg U/kg P_2O_5) in Fig. 5 erstreckt sich über 2 Größenordnungen. Die Häufigkeitsverteilung zeigt 3 deutlich unterschiedliche Populationen. Etwa 30% der Proben enthalten kaum Uran, etwa 20% extrem viel. Für die Abschätzung des Eintrags wurde die mittlere Population benützt. Sie weist eine lognormale Verteilung auf. Verwendeter Wert: (250 ± 100) mg U/kg P_2O_5 . Dieser Bereich entspricht der Summenhäufigkeit zwischen 30% und 80%.



Figur 5: Häufigkeitsverteilung der Uran-Konzentrationen in 2011 / 2012 in der Schweiz erhobenen Phosphatdünger-Proben (private Mitteilung KL-BS).

Organische Dünger

Für organische Handelsdünger, Klärschlamm und Hofdünger liegen für die Schweiz keine Daten zum Urangelgehalt vor. Messungen in Deutschland zeigten, dass Klärschlamm und Hofdünger maximal 8 mg U/kg P_2O_5 enthalten (Dienemann & Utermann 2012). Seit 2003 darf in der Schweiz der Klärschlamm nicht mehr auf die Felder ausgetragen werden. Im Moment entfallen daher allfällige Einträge von Uran aus dem Klärschlamm. Es gibt aber Bemühungen, wegen der drohenden Verknappung von Phosphor, den im Klärschlamm enthaltenen Phosphor rückzugewinnen (Ludwig 2009). Es gibt aber noch keine Messungen des Urangelgehaltes in diesem Recycling Phosphor.

Einsatz von Phosphatdüngern in der Schweiz

Der Phosphatbedarf der verschiedenen Kulturpflanzen ist sehr unterschiedlich. Diese grossen Unterschiede wurden bis etwa 1990 kaum berücksichtigt. Es herrschte die Meinung vor, dass kaum zu viel ausgebracht werden könne. Zunehmender Preisdruck und insbesondere die Auflagen für die Ausrichtung von Flächenbeiträgen (Integrierte Produktion) haben zu einem Umdenken geführt. In den letzten Jahren haben zusätzlich die strengen Auflagen für Bio-Labels zu einer weiteren Senkung des Mineraldüngerverbrauchs geführt.

Wurden 1980 noch 20'500 Tonnen Phosphor in der Form von Mineraldüngern importiert waren es 2002 nur noch 6'000 Tonnen (Spiess 2005). Bei einer offenen Ackerfläche von 270'000 ha in der Schweiz 2010 (Erdin 2010) entspricht das etwa 22 kg P/ha und Jahr. Diese Menge wird auch von Dienemann & Utermann 2012 für Deutschland angenommen. In den letzten Jahren ist der Mineraldüngerverbrauch in der Schweiz noch einmal zurückgegangen und liegt für 2012 bei rund 4'500 t P (BLW, 2013).

Die Düngungsnormen der Agroscope (GRUDAF = Grundlagen für die Düngung im Acker- und Futterbau) sind je nach Kultur unterschiedlich. Die Bandbreite geht von 10 kg P/ha für Zwischenfrüchte bis zu 52 kg P/ha für Futterrüben und liegt bei Getreide bei ungefähr 25 kg P/ha. Nach Flisch (2013) liegt der aktuelle durchschnittliche Phosphoreintrag in der Schweiz bei ca. 30 kg P/ha und Jahr, wobei der Anteil der Mineraldünger aber nur noch ca. 5 kg/ha beträgt. Dieser Anteil war früher 3 bis 4 mal höher.

Geschätzt liegt daher der jährliche Phosphoreintrag über Mineraldünger in der Schweiz bei (15 ± 5) kg P/ha. Das entspricht (35 ± 12) kg P_2O_5 /ha und Jahr. Dieser Wert ist wahrscheinlich höher als der aktuelle Eintrag, berücksichtigt aber, dass frühere Einträge möglicherweise durch die Bodenbearbeitung remobilisiert werden können. Er berücksichtigt indirekt zusätzlich, dass Uran auch aus organischen Düngern stammen kann.

Geochemie des Urans

Uran kommt hauptsächlich in zwei Oxidationsstufen vor, U(IV) und U(VI). U(IV) bildet nur sehr schlecht wasserlösliche Verbindungen und dominiert unter anoxischen Bedingungen. Bei Anwesenheit von Sauerstoff liegt das Uran vorwiegend als UO_2^{2+} (Uranyl) vor. Uranyl bildet mit Karbonat, Phosphat, Nitrat und Sulfat leicht lösliche Komplexe. Von besonderer Bedeutung für den Transport im Wasser sind ungeladene oder negativ geladene Uranyl-Karbonat Komplexe, da sie im Boden kaum adsorbiert werden. Details zur anorganischen Geochemie des Urans finden sich bei Gascoyne 1992 und zahlreiche Referenzen dazu bei Gainon 2006.

In biologisch aktiver Umgebung, wie das in landwirtschaftlich genutzten Böden der Fall ist, genügt es aber nicht, nur anorganische Prozesse zu betrachten. Allein schon die Huminsäuren sind sehr effiziente Komplexbildner und können so die Löslichkeit von Metallen erhöhen. In den letzten Jahren konnte auch gezeigt werden, dass Bakterien Uran sowohl binden als auch mobilisieren können (Wang et al. 2013). Insbesondere bei der Mobilisierung unter anoxischen Bedingungen spielt dabei die Anwesenheit von Phosphor eine entscheidende Rolle. Gebunden an extrazelluläres Material kann Uran auch in kolloidaler Form und damit weitgehend unbeeinflusst vom Redoxzustand transportiert werden.

Zusammengefasst heisst das, dass die Anwesenheit von Sauerstoff, CO_2 , Phosphat, Nitrat und eine biologisch aktive Umgebung die Löslichkeit von Uran deutlich erhöhen können. Das sind Bedingungen, die typisch für einen landwirtschaftlich genutzten

Boden sind. Dienemann & Utermann 2012 weisen daher darauf hin, dass allein schon die Tatsache, dass ein Boden landwirtschaftlich genutzt wird zu erhöhten Urankonzentrationen im Sickerwasser führen kann.

Abschätzung des Eintrags von Uran über Mineraldünger ins Grundwasser in der Schweiz

Die für die Abschätzung benutzten und in den vorherigen Kapiteln begründeten Wertebereiche für die Schweiz sind:

- Infiltration (IN): 600 ± 200 mm pro Jahr = $(6 \pm 2) \times 10^6$ l pro ha und Jahr.
- Phosphoreintrag über Mineraldünger (PE): 35 ± 12 kg P_2O_5 pro ha und Jahr
- Urankonzentration der Mineraldünger (CU): 250 ± 100 mg U/kg P_2O_5

Unter der Annahme, dass eine vollständige Auslaugung erfolgt, beträgt damit die U-Konzentration im Sickerwasser = $(PE \times CU) / IN = 1.5 \mu\text{g U/l}$.

Die Summe der relativen Unsicherheiten beträgt ca. 100%. Damit erscheint folgendes Schlussresultat für den geschätzten Beitrag der Mineraldüngung zum Urangehalt des Grundwassers in der Schweiz als gerechtfertigt: < 0.1 bis $3 \mu\text{g U/l}$.

In diesem Bereich liegen, je nach Region, 50% bis über 90% der Messwerte in Schweizer Grundwässern. Das heisst nun aber nicht, dass die Urankonzentrationen anthropogenen Ursprungs sind. Das heisst nur, dass geogener und anthropogener Beitrag in der gleichen Grössenordnung liegen könnten.

Diese Abschätzung beruht auf durchschnittlichen Wertebereichen für die verwendeten Parameter und dürfte 80 % der Fälle abdecken. Gleichzeitig ist klar, dass genaue Untersuchungen von Einzelfällen bei Verdacht auf erhöhten Eintrag von Uran aus Düngern durch diese Abschätzung nicht ersetzen werden. Übermässiger Einsatz von stark uranhaltigen Düngern, ungünstige Bodenverhältnisse oder plötzliches Auswaschen von über lange Zeit akkumuliertem Uran aus Dünger sind durchaus Faktoren, die lokal zu einer stärkeren Belastung von Trinkwasser führen könnten. Aufgrund der Komplexität der Vorgänge bei der Auswaschung von Uran aus dem Boden besteht zu diesem Thema noch grosser Forschungsbedarf.

Literatur

- BAFU (2009), Ergebnisse der Grundwasserbeobachtung Schweiz (NAQUA). Zustand und Entwicklung 2004–2006. Umwelt-Zustand Nr. 0903. Bundesamt für Umwelt, Bern.
- BAFU (2013), Hydrologischer Atlas der Schweiz, Bundesamt für Umwelt, Universität Bern.
- BAFU (2014), Ergebnisse der Grundwasserbeobachtung Schweiz (NAQUA), Zustand und Entwicklung 2007–2012.
- BLW (2013), Agrarbericht 2013, Bundesamt für Landwirtschaft, Bern.
- BUWAL (1991), Schwermetalle und Fluor in Mineraldüngern Schriftenreihe Umwelt Nr. 162, Boden. Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL), Bern, November 1991
- Deflorin, O., Surbeck, H. (2003), Natürliche Radionuklide im Trinkwasser am Beispiel des Kantons Graubünden. GWA (Gas, Wasser, Abwasser), 1, 2003, 40 – 45.
- Deflorin, O. (2004) Natürliche Radionuklide in Grundwässern des Kantons Graubünden, Dissertation, Universität Neuenburg, Schweiz
- Deutscher Bundestag, (2009) Bundestagsdrucksache 16/11539, Deutscher Bundestag, 2009
- Dienemann, C., Utermann, J. (2012), Uran in Boden und Wasser, Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau
- Erdin, E. (2010), Die Ackerflächen der Schweiz, LMZ-Aktuell, LMZ 8/2010, Schweizer Bauernverband
- Estier, S., Gurtner, A. (2013), Mesures in situ et exposition externe, Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz 2012, 87, Bundesamt für Gesundheit, CH-3003 Bern
- Flisch, R. (2013), Private Mitteilung, Agroscope
- Gainon, F. (2008), Les isotopes radioactifs de la série de l'uranium-238 (^{222}Rn , ^{226}Ra , ^{234}U et ^{238}U) dans les eaux thermales de Suisse. Diss. Univ. Neuchâtel.
- Gascoyne, M. (1992): Geochemistry of the actinides and their daughter, in: Uranium Series Disequilibrium. M. Ivanovitch & R. S. Harmon. Oxford, Clarendon Press. Second edition.
- Gesundheitstipp (2006), Uran im Trinkwasser: Die Ortschaften.
- Gilliéron, F. (1988): Zur Geologie der Uranmineralisationen in den Schweizer Alpen. Beitr. Geol. Schweiz, geotech. Ser. 77.
- Granges, M. (2009), Systeme hydrothermal de Saxon : hydrochimie, origine et radioactivite de l'eau thermale, these master en hydrogeologie, Univ. de Neuchâtel
- Von Gunten, U. (2000), Grundwasser: Vom Trinkwasser-Reservoir zum Gewässer, EAWAG news 49d
- Haldimann, M. (2012), Vorkommen von Uran in Schweizer Trinkwasser, BAG-Bulletin 12/12, Bundesamt für Gesundheit CH-3003 Bern
- Hinrichsen, S. (2013), Untersuchungen zur Herkunft von Uran im Grundwasser von Baden-Württemberg, Masterarbeit, Karlsruher Institut für Technologie, Abteilung für Hydrogeologie
- IAEA (2003) Environmental contamination by natural occurring radioactive material (NORM) and technological options for mitigation, technical reports series No. 419, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2003
- Kiefer, J., Fischer, T. (2013) Grundwasserdatenbank, Wasserversorgung, Sonderbeitrag zum Jahresbericht 2012. Erweiterte Beurteilung der Grundwasserbeschaffenheit in Baden-Württemberg 2012, TZW: DVGW-Technologiezentrum Wasser Karlsruhe
- KL BE, 2014, Jahresbericht 2013, Kantonales Laboratorium Bern
- Knolle, F. (2009), Ein Beitrag zu Vorkommen und Herkunft von Uran in deutschen Mineral- und Leitungswässern, Dissertation, Fakultät für Lebenswissenschaften, Technische Universität Braunschweig
- Kratz, S.; Schnug, E. (2006): Rock phosphates and P fertilizers as sources of U contamination in agricultural soils in: Merkel, B.; Hasche-Berger, A. (Hrsg.): Uranium in the Environment – Mining Impact and Consequences, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 57– 67
- Ludwig, H. (2009): Rückgewinnung von Phosphor aus der Abwassereinigung. Eine Bestandsaufnahme. Umwelt-Wissen Nr. 0929. Bundesamt für Umwelt, Bern. 196 S.
- Proffitt, W. (1995) Phosphate mining legacy feared Sarasota Herald Tribune | June 14th, 1995
- Regenspurg, et al. (2010) Speciation of naturally-accumulated uranium in an organic-rich soil of an alpine region (Switzerland) Geochimica et Cosmochimica Acta, 74, 2082–2098.
- Schmidt, F. (2013), Schwermetalle im Lyssbach – Herkunft und Bedeutung, Bachelorarbeit, ETH Zürich, Dept. Erdwissenschaften
- Schnug, E. (2012), Uran in Phosphor-Düngemitteln und dessen Verbleib in der Umwelt, in : Strahlentelex 612-613, S. 3-10
- Schott, B. & Wiegand, J. (2003), Processes of radionuclide enrichment in sediments and ground waters of Mont Vully (Canton Fribourg, Switzerland, Eclogae geol. Helv. 96 (2003) 99-107
- Spiess, E. (2005), Die Phosphorbilanz der Schweiz, Schriftenreihe der FAL (57), 2005, 82-85
- Stalder E, Blanc A, Haldimann M, Dudler V. (2012), Occurrence of uranium in Swiss drinking water. Chemosphere 2012; 86: 672–9.
- Steinmann, P., Estier, S. (2013), Radioaktivität

in Lebensmitteln, in Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz 2012, 87, Bundesamt für Gesundheit, CH-3003 Bern

- Surbeck, H., Deflorin, O. und Kloos, O. (2006), Spatial and temporal variations in the uranium series background in Alpine groundwaters, In : Uranium in the Environment, Mining Impact and Consequences, B.J.Merkel & A.Hasche-Berger (Eds.), Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 2006, p.831-839.
- Surbeck, H. (2007), Uran im Trinkwasser, in: Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz 2006, 58-61, Bundesamt für Gesundheit, CH-3003 Bern
- Süß, E. (2005), Eintrag von Uran über Phosphat- und KPN-Dünger: Gefahr für das Grundwasser? Referat zum Seminar Grundwasserschutz im SS 2005, TU Bergakademie Freiberg.
- Umweltbundesamt (2012), Positionspapier der Kommission Bodenschutz beim Umweltbundesamt, Uran Einträge in landwirtschaftliche Böden durch Düngemittel
- Wang Y., et al (2013), Mobile uranium(IV)-bearing colloids in a mining-impacted wetland, accepted in: Nature Communications

Dank für Informationen, Anregungen und kritische Durchsicht des Manuskripts gilt Markus Flisch, Moritz Bigalke, Stephanie Zimmermann und Alexandra Gisler. Überarbeitung der ursprünglichen Version: Philipp Steinmann.