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: - (2017)

Rubrik: Environnement = Umwelt

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Mehr erfahren

Conditions d'utilisation

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. En savoir plus

Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. Find out more

Download PDF: 24.12.2025

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

Chapitre / Kapitel 4

Environnement

Umwelt

4.1
Radioaktivität in der Luft (Aerosol) und im Niederschlag

P. Steinmann, S. Estier, D. Lienhard, P. Beuret, G. Ferreri, A. Gurtner, M. Müller,
Sektion Umweltradioaktivität, URA / BAG, 3003 Bern

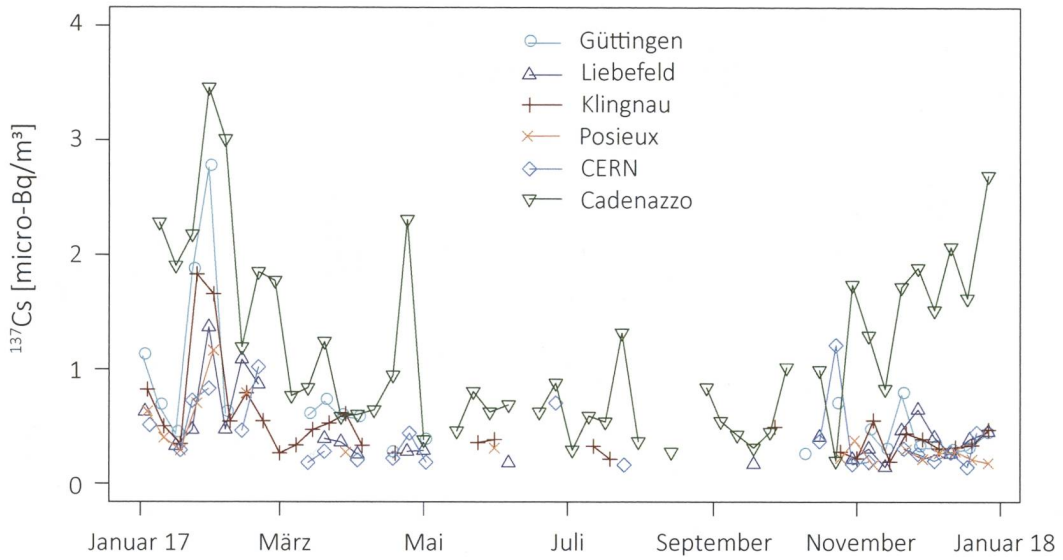
Zusammenfassung

Die Radioaktivität in der Luft und im Niederschlag zeigte 2017 keine erhöhten Werte, welche die Gesundheit der Bevölkerung gefährdet hätten. In der Atmosphäre überwiegt die natürliche Radioaktivität deutlich. Dank der grossen Empfindlichkeit der verwendeten Messmethoden konnten trotzdem kleinste Spuren von künstlichen Radionukliden auf den Aerosolpartikeln nachgewiesen werden. Aussergewöhnlich waren die Ende September im Tessin festgestellten Spuren von Ruthenium-106, einem Spaltprodukt, dass normalerweise in der Luft nicht messbar ist (siehe Kapitel 4.3). Im Niederschlag wurden 2017 mit Ausnahme von Tritium und sporadischen Spuren von ^{137}Cs keine künstlichen Radionuklide nachgewiesen. In der unmittelbaren Umgebung von Tritium-verarbeitenden Industriebetrieben erreichten die Tritiumwerte im Regenwasser maximal 11% des Immissionsgrenzwertes der StSV für öffentlich zugängliche Gewässer.

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 werden fortlaufend grosse Volumen von Luft gefiltert; je nach Station sind es 80'000 m^3 bis 150'000 m^3 pro Woche. Die Filter werden im Routinebetrieb wöchentlich gewechselt und zur Analyse ans BAG gesandt. Die Messung auf einem HPGe-Gammaspektrometer dauert 2 Tage. Die lange Messzeit ist nötig, weil die Konzentration der radioaktiven Stoffe sehr tief ist. Die Messresultate werden auf www.radenviro.ch und www.bag.admin.ch/hvs zeitnah veröffentlicht. Ziel der HVS Messungen ist nicht die schnelle Alarmierung (dafür gibt es URAnet, 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, 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 Gösgen, 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 in der Hochalpinen Forschungsstation Jungfraujoch. Die Filter der MV-Sammler werden wöchentlich gewechselt und als Monatsprobe (4 - 5 Filter) gammaspektrometrisch gemessen.



Figur 1 :
^{137}Cs Konzentrationen bei allen HVS Stationen für das Jahr 2017.

Künstliche Radioisotope in der Luft

Ende September bis anfangs Oktober 2017 sind von mehreren Europäischen Messstellen, darunter das BAG, Spuren von radioaktivem Ruthenium-106 (^{106}Ru) in der Luft festgestellt worden.

Dieses Radioisotop, welches unter normalen Umständen in der Atmosphäre nicht nachweisbar ist, muss bei einer ungeplanten Abgabe freigesetzt worden sein. Das Fehlen jeglicher anderer künstlicher Radioisotope schliesst eine Abgabe aus einem Kernkraftwerk aus. In der Schweiz wurden Spuren von ^{106}Ru Ende Oktober bis anfangs November bei Cadenazzo im Tessin nachgewiesen – mit einem Maximum von 1'900 micro-Bq/m^3 im Zeitraum vom 02.10. bis 03.10. Eine ausführliche Diskussion dieses ausserordentlichen und immer noch ungeklärten Ereignisses findet sich im Kapitel 4.3 sowie auf www.radenviro.ch (nach «Ruthenium-106» suchen).

Tabelle 1:
HVS-Stationen des BAG

Station	H.ü.M.	Gemeinde	Umgebung	Bemerkung
CAD	203 m	Cadenazzo TI	Landwirtschaft (Agroscope Forschungsstation)	Referenzstation für die Alpensüdseite
CERN	428 m	Meyrin GE	Landwirtschaft, Stadtnähe, Gelände CERN	zur Erfassung eventueller Abgaben aus den CERN Beschleunigern
GUT	440 m	Güttingen TG	Landwirtschaft, Bodensee	Referenzstation für das östliche Mittelland
KLI	315 m	Klingnau AG	ländlich, Stausee	im Einflussbereich der KKW Beznau und Leibstadt
LBF	560 m	Köniz BE (Liebefeld)	städtisch, Agglomeration	am Standort des Bundesamt für Gesundheit
POS	640 m	Hauterive FR (Posieux)	Landwirtschaft (Agroscope Forschungsstation)	Referenzstation für das westliche Mittelland

Das einzige regelmässig nachgewiesene künstliche Radioisotop in der Luft war wie in den Vorjahren Cäsium-137 (^{137}Cs). ^{137}Cs hat eine Halbwertszeit von 30 Jahren und rührt zur Hauptsache immer noch vom Reaktorunfall in Tschernobyl her. Die gemessenen Konzentrationen sind insgesamt sehr gering. Die höchsten Werte (Maximum 3.5 µBq/m^3 wurden 2017 wie in früheren Jahren im Januar und Dezember für die Station Cadenazzo gemessen (siehe Figur 1). Diese Werte sind rund eine Million Mal tiefer als der Immissionsgrenzwert für ^{137}Cs von 3.3 Bq/m^3. Zu den erhöhten ^{137}Cs Konzentrationen in den Wintermonaten tragen wahrscheinlich das Aufwirbeln von Bodenpartikel in der vegetationsarmen Zeit sowie das Verbrennen von leicht mit ^{137}Cs kontaminiertem Holz bei. Die stärkere Kontamination der Böden im Kanton Tessin nach Tschernobyl erklärt

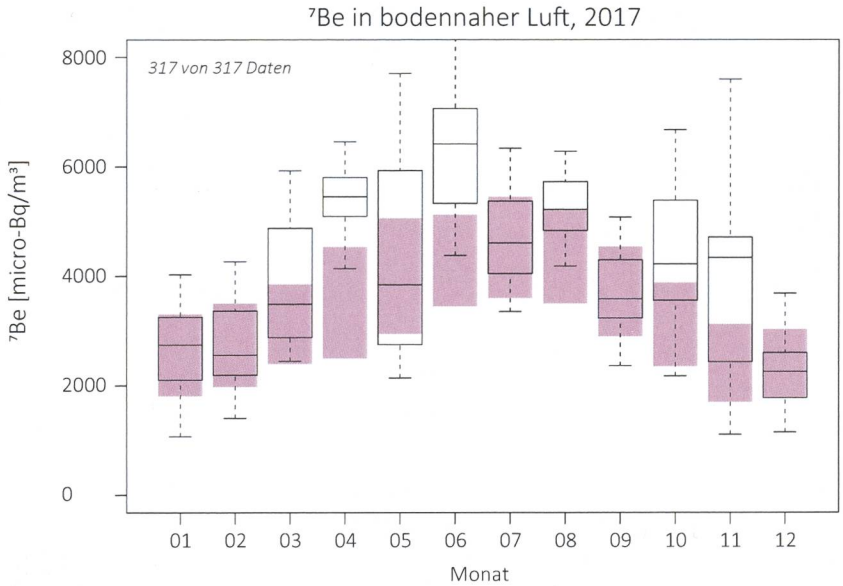
so die höheren Werte der Station Cadenazzo. Das radioaktive Natriumisotop ^{24}Na mit einer Halbwertszeit von 15 Stunden kann sowohl natürliche als auch künstliche Quellen haben. Natürliches ^{24}Na wird wie das ^{7}Be und ^{22}Na in der oberen Atmosphäre durch die kosmische Strahlung erzeugt. Künstliches ^{24}Na kann in Beschleunigern erzeugt werden, wie sie z. B. am Cern in Genf oder am PSI in Villigen im Einsatz stehen. Bei HVS CERN und bei HVS Klingnau konnten im Berichtsjahr gelegentlich Spuren von ^{24}Na nachgewiesen werden, im Bereich von 28 - 377 µBq/m³. Die HVS Station Klingnau liegt in rund 6 km Entfernung vom PSI, welches daher als mögliche Quelle in Betracht gezogen werden muss. Aufgrund der kurzen Halbwertszeit von ^{24}Na kann die Nachweisgrenze variieren und lag 2017 bei rund einem Siebtel der Messungen bei > 1'000 µBq/m3. Die gemessenen ^{24}Na Werte und die Nachweisgrenzen insgesamt liegen allerdings stets deutlich unterhalb des Immissionsgrenzwertes von 100 Bq/m³. Geringste Spuren von Jod-131 (^{131}I) tauchten 2017 in einigen (n=8) HVS Filtern auf, vor allem bei der HVS Station CERN mit einem höchsten Wert von 4.0 µBq/m³. Das auf dem Gelände des CERN gemessene ^{131}I stammt wohl aus einem Beschleuniger. Bei anderen Stationen ist die Ursache von Spuren von ^{131}I in dessen medizinischen Anwendungen zu suchen, etwa wenn ^{131}I durch die Verbrennung von Abfällen aus Spitälern in die Luft gelangt. Gesundheitlich sind diese Konzentrationen – eine Million Mal tiefer als der Immissionsgrenzwert – irrelevant.

Plutonium-Isotope wurden 2017 an zwei Sammelproben von HVS-Filtern der Station Liebefeld bestimmt - eine Probe mit Filtern vom Sommer und eine Probe mit Filtern vom Winter. Die Summe der Alphastrahler ^{238}Pu, ^{239}Pu, ^{240}Pu und ^{241}Am ergab 0.84 ± 0.09 nano-Becquerel pro m³ Luft (nBq/ m³) im Winterhalbjahr (2016/2017) und 1.70 ± 0.14 nBq/m³ im Sommerhalbjahr. Zusätzliche Proben von den Stationen Klingnau, Posieux, Güttingen und CERN betrug die Summe der Alphastrahler betrug zwischen 1.5 und 1.8 nBq/m³. Diese Konzentrationen der künstlichen Alphastrahler sind sehr tief und liegen wie beim ^{137}Cs eine Million Mal tiefer als der Immissionsgrenzwert. Kurioserweise fand sich Curium-244 in den HVS-Mischproben von Klingnau, Posieux und Liebefeld. Die gemessenen Konzentrationen waren zwar sehr tief (0.05 bis 0.09 nBq/m³) aber im Gegensatz zu früheren Jahren doch über der Nachweisgrenze (siehe Kapitel 7.2).

Die Resultate der MV-Filter in der Umgebung der Kernkraftwerke werden im Kapitel 8.5 näher besprochen.

Natürliche Radioisotope in der Luft

Die 2016 auf den HVS Filtern gemessenen Radioisotope waren fast ausschliesslich natürlicher Herkunft. Vorherrschend waren das Radonfolgeprodukt Blei-210 (^{210}Pb; Halbwertszeit 21 Jahre) und Beryllium-7 (^{7}Be; Halbwertszeit 50 Tage), welches durch die kosmische Strahlung in hohen Schichten der Atmosphäre gebildete und deshalb auch kosmogen genannt wird. Die Konzentration von ^{210}Pb lag 2017 im üblichen Bereich mit Mittelwert = 0.6 mBq/m³, Median = 0.5 mBq/m³, 5%-Quantil = 0.2 mBq/m³ und 95%-Quantil = 1.3 mBq/m³. Das heisst 90 Prozent der Werte liegen zwischen 0.2 und 1.3 mBq/m³. Der enstsprechende Konzentrationsbereich für ^{7}Be liegt zwischen 1.6 und 6.6 mBq/m³ (Mittelwert = Median = 4.1 mBq/m³). Neben ^{7}Be war in kleinsten Spuren von meist weniger als einem µBq/m³ das ebenfalls kosmogene Natrium-22 (^{22}Na) nachweisbar. Die Figur 2 zeigt für jeden Monat die Verteilung der ^{7}Be Konzentrationen aller Stationen im Vergleich mit dem langjährigen Jahresverlauf. Der Jahresverlauf der ^{7}Be Konzentrationen widerspiegelt das Wettergeschehen, insbesondere



Figur 2 :
Boxplot der monatlichen ^{7}Be 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 1].

die konvektive vertikale Durchmischung der Troposphäre an warmen Sommertagen, wobei ^{7}Be reiche Luft aus der obersten Troposphäre an den Boden gelangt. Weitere Einflüsse für die ^{7}Be Konzentration in der Luft sind Niederschlag (Auswaschen von ^{7}Be) und die kosmische Strahlung (negative Korrelation mit der Sonnenaktivität). Die kosmische Strahlung war 2017 noch etwas höher (+1%) als 2016 (NM64 Neutron Monitor Junfraujoch , cosray.unibe.ch). Der Jahresmittelwert 2017 von ^{7}Be ist mit 4.1 mBq/ m³ sogar deutlich höher (+12%) als im Vorjahr. Diese erhöhten Werte passen zur Tatsache, dass sich der Sonnenzyklus 24 dem Ende zuneigt.

Die auffälligsten Monate bezüglich ^{7}Be Luftkonzentrationen waren 2017 April und Juni (beide mit deutlich mehr ^{7}Be als im langjährigen Mittel; Figur 2). Der Juni war extrem warm und relativ trocken (MeteoSchweiz 2018: Klimabulletin Jahr 2017). Stärkere vertikale Konvektion und wenig Niederschlag erklären so die hohen ^{7}Be Werte in der bodennahen Luft.

Als weiteres natürliches Radioisotop findet sich in den HVS Filtern oft auch ^{40}K. Die Konzentrationen liegen typischerweise bei 5 - 20 µBq/m³. Der einzige etwas höhere Wert von 63 µBq/m³ wurde in der Stadtnahen Station Liebefeld in der Woche des 1. Augusts festgestellt. Dieses Kalium stammt aus dem Kaliumnitrat des zum erwähnten Datum abgebrannten Schwarzpulvers.

Niederschlag

Messungen von Gammastrahlern

Im Berichtsjahr 2017 wurde an folgenden Sammelstationen kontinuierlich Niederschlag gesammelt und monatlich gammaspektrometrisch gemessen: Umgebung der Kernkraftwerke Mühleberg, Leibstadt, Gösgen und Benznau, Umgebung PSI/ZWILAG sowie Posieux FR, Güttingen TG, Cadenazzo TI, Cernier NE und Davos GR. Für die natürlichen Radioisotope ^{7}Be und ^{210}Pb wurden Werte im Bereich 0.2 - 3.9 (Mittelwert 0.8) Bq/l, respektive 0.01 - 0.75 (Mittelwert 0.09) Bq/l gemessen. Mit Ausnahme einer einzigen Probe mit 0.6 mBq/l ^{137}Cs konnten in Regen und Schnee keine künstlichen Gammaemitter nachgewiesen werden. Als Referenzpunkt kann hier der Immissionsgrenzwert aus der Strahlenschutzverordnung von 16 Bq/l ^{137}Cs in öffentlich zugänglichen Gewässern herangezogen werden, da bei starken Niederschlägen ein öffentlich zugängliches Gewässer im Wesentlichen durch Regenwasser gespeist sein könnte. Für eine weitere Diskussion dieser Resultate siehe auch Kapitel 8.5.

Tritium-Messungen

Für die monatlichen Sammelproben von Niederschlag der Referenzstationen Posieux, Güttingen, Cadenazzo sowie bei den Stationen Basel-Binningen und La Chaux-de-Fonds lagen alle Tritiumkonzentrationen unterhalb von 5 Bq/l. Tritium-Messungen an Regenproben aus der Umgebung der Kernkraftwerke, dem PSI und dem ZWILAG ergaben ebenfalls Messwerte unterhalb oder knapp über der Nachweisgrenze von 2 - 5 Bq/l. Alle gemessenen Konzentrationen liegen sehr deutlich unterhalb der gesetzlichen Grenzwerte (siehe Kapitel 8.5). Höhere Tritiumwerte - aber auch klar unterhalb der Grenzwerte - zeigte die Überwachung von Tritium-verarbeitender Industrie. Nahe bei den betroffenen Standorten in Teufen AR und Niederwangen BE enthielt das Regenwasser zwischen 13 und 1'316 Bq/l Tritium mit einem Mittelwert von 154 Bq/l. Die Höchstkonzentration entspricht rund 11% des Immissionsgrenzwertes der StSV für öffentlich zugängliche Gewässer. Ausführlicher werden diese Tritium-Resultate in Kapitel 9.3 besprochen.

Referenzen

[1] Steinmann P., Zeller M., Beuret P., Ferreri G., Estier S., 2013. Cosmogenic ^{7}Be and ^{22}Na in ground level air in Switzerland (1994-2011). Journal of Environmental Radioactivity 124, 68-73.

4.2
RADAIR

Réseau Automatique de Détections dans l'Air des Immissions Radioactives

S. Estier, P. Beuret, A. Gurtner, D. Lienhard, M. Müller, P. Steinmann
Section Radioactivité de l'environnement, URA / OFSP, 3003 Berne

Résumé

Le réseau automatique de surveillance de la radioactivité dans l'air, RADAIR, exploité par l'Office Fédéral de la Santé Publique sera remplacé dès 2018 par le nouveau réseau URAnet. Les résultats des mesures réalisées en continu par les 6 moniteurs RADAIR encore en fonction en 2017 n'ont mis en évidence aucune valeur inhabituelle. 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 30 à 200 mBq/m^3 n'a été enregistrée par les collecteurs d'aérosols. Les concentrations d'iode-131 gazeux sont elles aussi restées inférieures aux limites de détection de 40 - 50 mBq/m^3.

Introduction

L'OFSP exploite depuis de nombreuses années trois réseaux de surveillance de la radioactivité dans l'air. Le premier, d'une très grande sensibilité, est constitué de collecteurs d'aérosols à haut débit (env. 500 m^3/h) situés à Posieux/FR, Cadenazzo/TI, Güttingen /TG, au CERN/GE, à Klingnau/AG et à Liebefeld/BE et permet la mesure de traces de radioactivité dans l'air. Le second se compose de collecteurs d'aérosols à moyen débit (40 m^3/h) et est principalement dédié à la surveillance des centrales nucléaires (Gösgen-Däniken, Leibstadt et Mühleberg. Finalement, l'OFSP gère le réseau automatique de surveillance de la radioactivité dans l'air, 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 collecte 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. Par contre les limites de détection sont très faibles, env. 0.5 μBq/m^3 pour le ^{137}Cs. 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. Ce réseau, tout comme le réseau de collecteur à moyen débit dédié à la surveillance des centrales nucléaires, sera remplacé dès 2018 par le nouveau réseau automatique de surveillance de l'air de l'OFSP, nommé URAnet aero. Le projet de rénovation a démarré en 2016 déjà, et seules 6 stations RADAIR étaient encore en fonction en 2017. Le présent chapitre détaille les résultats des mesures enregistrées par le réseau RADAIR au cours de sa dernière année de fonctionnement.

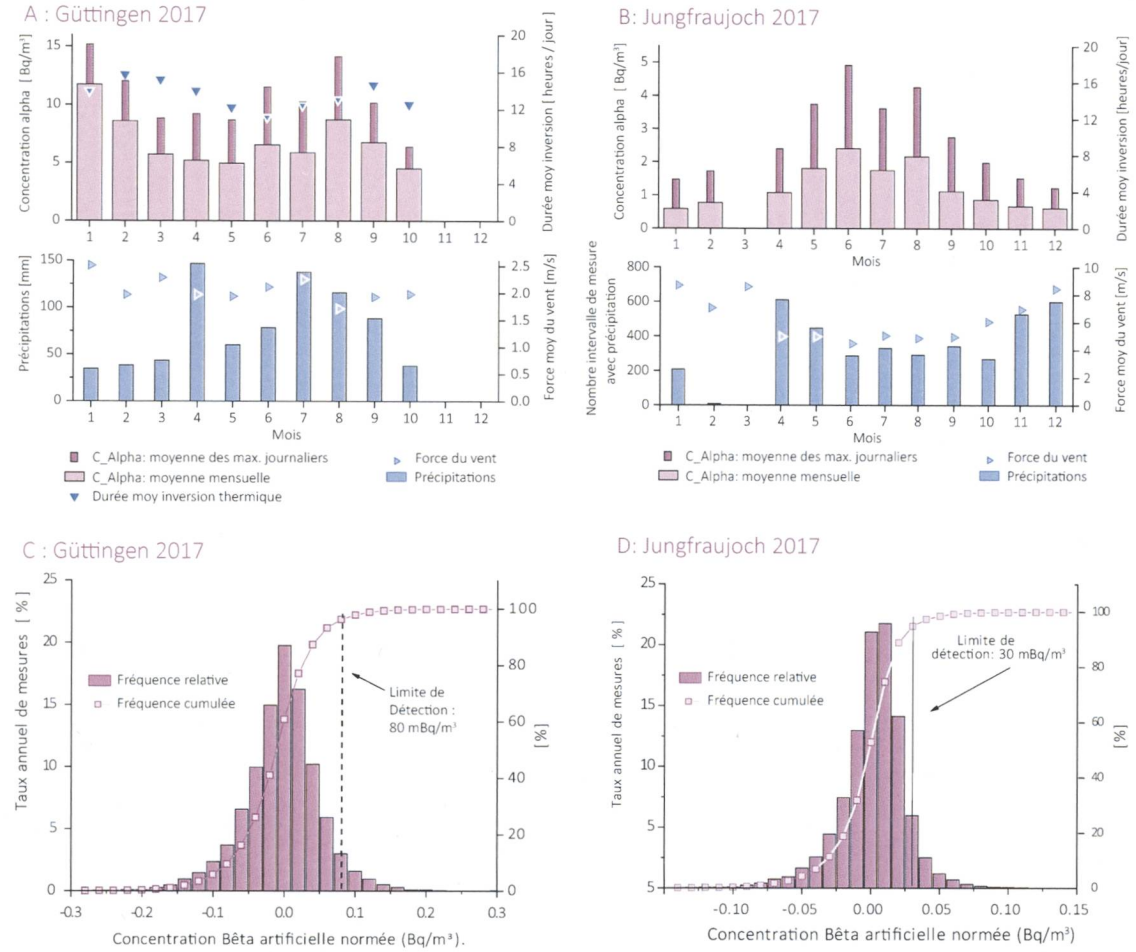


Figure 1 :
*Les figures **A, B** montrent les concentrations alpha totales (d'origine naturelle) mensuelles moyennes, les moyennes mensuelles des concentrations alpha maximales, la durée moyenne des inversions thermiques entre l'air (2m) et le sol, les précipitations cumulées mensuelles ainsi que la vitesse moyenne des vents enregistrées en 2017 aux stations de Güttingen, Jungfraujoch, Sion et Vaduz. Les figures **C, D** représentent les histogrammes des concentrations bêta artificielles compensées obtenus en 2017 à ces mêmes stations.*

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. À cette activité α naturelle ($A_{nat} = A_{tot}$) est, en tout temps, associée une activité β naturelle, B_{nat}. Le rapport entre les activités $A_{tot} = A_{nat}$ 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

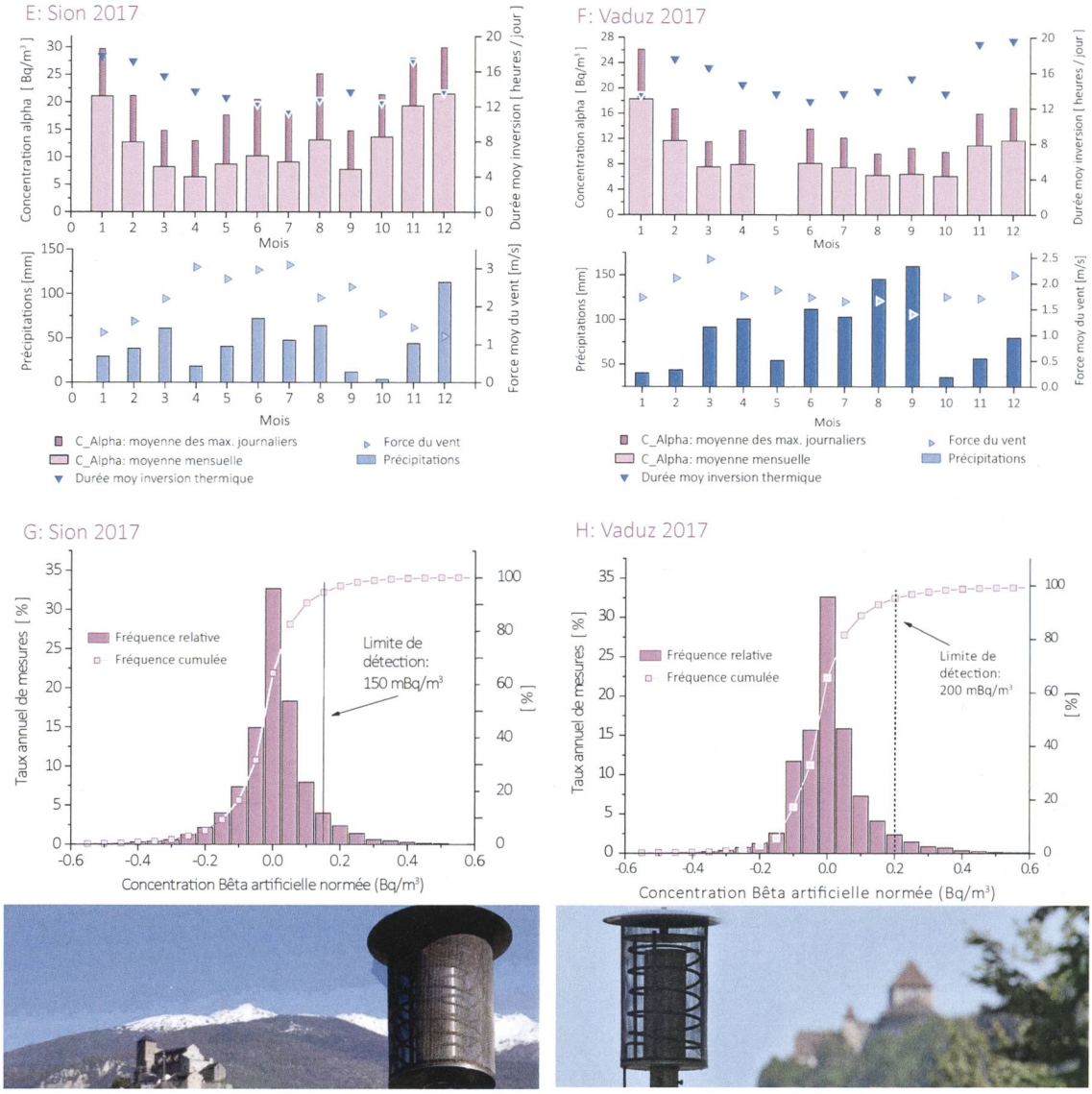


Figure 1 (suite):
*Les figures **E, F** montrent les concentrations alpha totales (d'origine naturelle) mensuelles moyennes, les moyennes mensuelles des concentrations alpha maximales, la durée moyenne des inversions thermiques entre l'air (2m) et le sol, les précipitations cumulées mensuelles ainsi que la vitesse moyenne des vents enregistrées en 2017 aux stations de Güttingen, Jungfraujoch, Sion et Vaduz. Les figures **G, H** représentent les histogrammes des concentrations bêta artificielles compensées obtenus en 2017 à ces mêmes stations.*

algorithme de compensation qui soustrait la part naturelle de l'activité β ($B_{nat} = A_{tot}/F$) à l'activité β totale (B_{tot}) mesurée :

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

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

Dans la pratique, toutefois, il apparait 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. Afin d'automatiser le plus possible l'évaluation des résultats, les moniteurs sont équipés d'un 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 au site de mesure. 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. Cette technique de compensation automatique du facteur α/β (F_m), offre par ailleurs un abaissement de la limite de détection, jusqu'à un facteur 2 suivants les sites, par rapport à la méthode de correction manuelle utilisée jusqu'en 2011.

Les modifications apportées en 2017

Les moniteurs restants et le serveur du réseau RADAIR ont fonctionné avec satisfaction.

En novembre 2017, le moniteur αβ du réseau RADAIR de Güttingen a été remplacé par un moniteur spectroscopique FHT59N3 du réseau URAnet aero. L'installation de ce nouveau collecteur a nécessité l'agrandissement du local, la rénovation de la ligne électrique et du climatiseur ainsi que le passage de la ligne d'aspiration, c'est pourquoi les données de ce moniteur sont incomplètes pour 2017. Contrairement aux moniteurs αβ, les nouvelles sondes URAnet permettront l'identification et la quantification individuelle des divers radionucléides (émetteurs gamma) présents dans l'air, grâce à la mesure par spectrométrie gamma automatique et en continu des aérosols collectés sur un filtre déroulant. Les moniteurs du réseau URAnet aero étant encore en test durant 2017, les résultats obtenus durant cette année ne seront pas détaillés ici.

Les résultats de mesure

Collecteurs d'aérosols α/β :

La figures 1 montre les concentrations α naturelles mensuelles moyennes et maximales enregistrées en 2017 aux stations de Güttingen, de Jungfraujoch, de Vaduz et de Sion ainsi que les histogrammes des concentrations β artificielles obtenues après compensation.

Les concentrations α moyennes enregistrées dans les différentes stations (cf figures A, B, E et F de la figure 1) dépendent de la nature géologique du sol, de l'environnement ainsi que des conditions météorologiques. Pour une station donnée, ces valeurs fluctuent d'un facteur 2 à 3 au cours de l'année.

Les différences marquées entre la moyenne des concentrations maximales et les concentrations moyennes reflètent les importantes fluctuations diurnes-nocturnes de radioactivité naturelle passant de 5 à 30 Bq/m^3 (en 24 heures) suivant les sites (figures A, B, E et F de la figure 1).

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, c'est pourquoi il s'en suit une augmentation de la concentration en fin de nuit. Afin de mieux comprendre le phénomène, les figures A, E et F montrent, pour chaque mois, la durée journalière moyenne de l'inversion. Ces durées ont été déterminées à l'aide des mesures demi-horaires des températures de l'air à 2 m et celles au sol. Ces graphiques montrent que l'inversion est plus longue en automne et hiver et par conséquent le cumul des produits de filiation du radon (concentrations alpha) est plus important. Ce mécanisme explique les résultats mesurés pour les sites de plaine.

Dans les stations de montagne comme au Jungfraujoch et au Weissfluhjoch, les concentrations en radon sont très faibles, en moyenne de l'ordre de 4- 6 Bq/m^3. La contribution provient essentiellement de la plaine, soit avec les vents thermiques, soit avec les vents dominants. Les plus fortes concentrations se rencontrent plutôt en été et sont moindres en hiver. Pour le site du Junfraujoch, qui se trouve en dessus de l'inversion thermique des vallées avoisinantes, les mois de novembre à février, montrent une concentration α nettement plus petite qu'en été. De plus, ces mois sont relativement venteux ce qui augmente la dilution. Le phénomène s'inverse en été où les courants thermiques, plus faibles, apportent les concentrations vers la station de mesure.

Les concentrations alpha des sites de plaines des mois d'avril à juin sont atténuées, d'une part à cause d'une durée moins importante des inversions thermiques, d'autre part à cause des précipitations (lessivage des aérosols), à cela s'ajoute également un brassage plus important des masses d'air (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. Suivants les sites, on observe ainsi un rapport d'environ 100 à 200 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 des limites de détection de la radioactivité β d'origine artificielle. Les histogrammes de la concentration β (graphiques C, D,G et H de la figure 1) montrent ces limites. Avec l'algorithme automatique de compensa-

tion, des incidents de radioactivité plus petits que 200 mBq/m³ pour les stations de plaine et plus petits que 30 mBq/m³ pour les stations d'altitude ne sont pas décelables. À noter que pour 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. En effet, en raison de pannes diverses, le nombre annuel de mesures réalisées par moniteur n'est pas identique.

De manière générale, les limites de détection restent sensiblement les mêmes ces dernières années. Elles se situent entre 80 et 200 mBq/m³ pour les sites de plaine.

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 2017.

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 (40 - 50 mBq/m³) au cours de l'année 2017. La figure 2 montre l'histogramme de la concentration moyenne du ^{131}I enregistré dans les stations de Bellinzona et de Fribourg. Les deux histogrammes de la figure 2 sont quasiment identiques pour deux sites géographiquement très différents.

Disponibilité du système

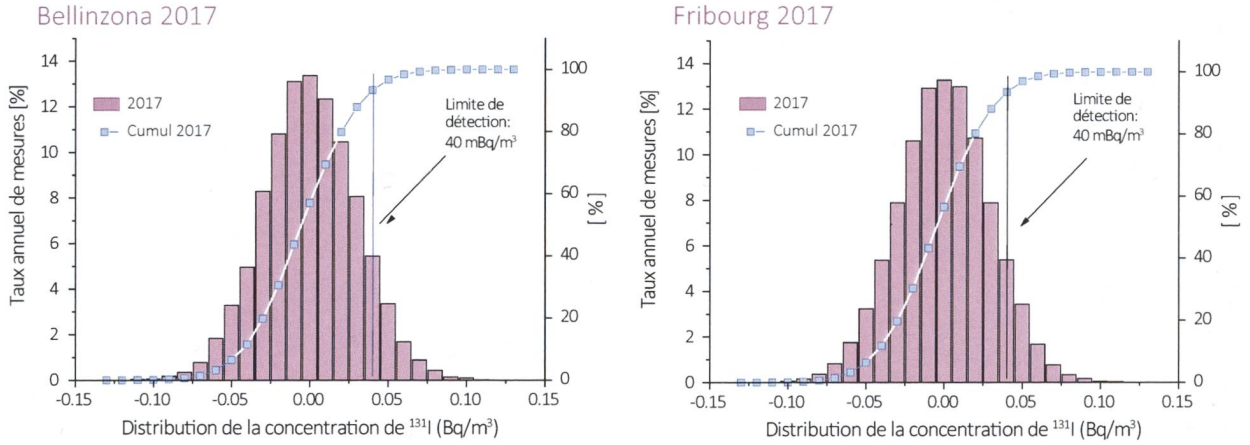


Figure 2:
Histogramme de la concentration du ^{131}I des stations de Bellinzona et de Fribourg en 2017

Hormis l'arrêt des moniteurs pour travaux, les pannes les plus courantes ont été : les pannes de la carte mère de l'ordinateur de mesure (mars pour Jungfraujoch et mai pour Vaduz), ouvertures sporadiques du système de contournement de l'air (Sion) et quelques pannes de secteurs et de communication principalement sur le site du Jungfraujoch.

Conclusions

L'OFSP a arrêté l'exploitation du réseau RADAIR au 31 décembre 2017. Toutefois, comme complément au nouveau réseau URAnet aero, quatre moniteurs αβ (Jungfraujoch, Sion, PSI et Weissfluhjoch) ont été intégrés au nouveau réseau. L'expérience de l'exploitation de RADAIR a aidé l'implantation et l'installation des nouveaux moniteurs.

4.3 Ruthénium-106 mesuré dans l'air en Suisse et en Europe

S. Estier, P. Beuret, G. Ferreri, A. Gurtner, D. Lienhard, M. Müller, P. Steinmann
Section Radioactivité de l'environnement, URA / OFSP, 3003 Berne

Résumé

Des traces de l'isotope radioactif Ruthénium-106 (^{106}Ru) ont été mesurées dans l'air en Suisse méridionale et dans plusieurs pays d'Europe entre la fin septembre et début octobre 2017. Les concentrations enregistrées dans l'air n'ont toutefois pas présenté de risque pour la santé de la population et aucune trace de ce radionucléide n'a pu être mise en évidence dans les denrées alimentaires analysées. La source à l'origine de cette contamination de l'air reste toutefois toujours officiellemenet inconnue.

La phase de détection (de fin septembre au 6/7 octobre 2017)

Du ruthénium-106 (^{106}Ru) a été détecté dans l'air dès fin septembre 2017 par plusieurs laboratoires européens de mesure de la radioactivité dans l'atmosphère. En Suisse, la surveillance de la radioactivité menée par l'OFSP dans l'air a également révélé une concentration de 50 µBq/m³ de ^{106}Ru à Cadenazzo (Tessin) entre le 25 septembre et le 2 octobre 2017. Dès lors, et pendant une semaine environ, les filtres aérosols à haut volume (HVS) ont été changés et envoyés au laboratoire de l'OFSP pour analyse chaque jour. Parallèlement à la publication journalière (puis à nouveau hebdomadaire) des résultats de mesure, l'OFSP a régulièrement informé sur ce sujet via sa plateforme spécialisée www.radenviro.ch dès le 03.10.2017 (voir figure 1).

La concentration maximale de ^{106}Ru a atteint 1'900 µBq/m³ entre les 2 et 3 octobre. La concentration de ^{106}Ru dans l'air a ensuite progressivement diminué. Entre les 3 et 4 octobre, elle s'élevait encore à 480 µBq/m³. Elle est ensuite passée à 466 µBq/m³ entre les 4 et 5 octobre, puis à 320 µBq/m³ entre les 5 et 6 octobre, jusqu'à devenir indétectable (inférieure à la limite de détection de 3 µBq/m³) à partir du 7 octobre.

La concentration maximale de ^{106}Ru mesurée dans l'air à Cadenazzo, bien qu'anormale, est toutefois restée 350 fois inférieure à la limite d'immission dans l'air fixée pour ce radionucléide dans l'ORaP et n'a donc représenté aucun risque pour la santé de la population. Le laboratoire cantonal du Tessin a également prélevé des échantillons d'herbe à Cevio, Mezzovico et Prato Leventina le 4 octobre 2017. Dans ces échantillons, les concentrations en ^{106}Ru sont restées inférieures à la limite de détection: il n'y a donc pas eu de contamination des denrées alimentaires. Par ailleurs, aucune trace de ^{106}Ru n'a pu être décelée au cours des mêmes périodes par les autres stations de mesures dans l'air de Suisse, situées au Nord des Alpes.

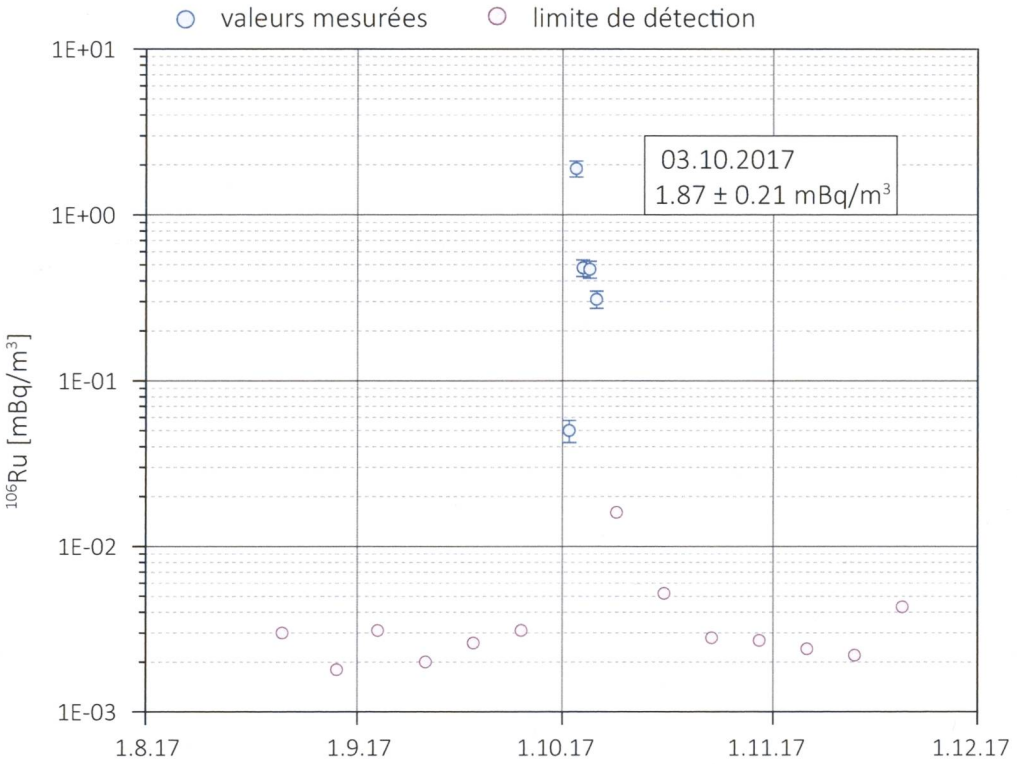


Figure 1:
Résultats des mesures du ^{106}Ru dans les filtres HVS de Cadenazzo, tels que publiés sur la plateforme www.radenviro.ch.

L'OFSP a été très rapidement informé de la détection de ruthénium dans de nombreux autres pays européens par l'intermédiaire du Ring of Five (Ro5[1]). Ce réseau informel d'experts appartenant à divers organismes publics européens spécialisés dans la mesure de la radioactivité dans l'air à très bas niveau (de l'ordre du dixième de µBq/m³) fonctionne sur l'échange entre pairs. Les informations transmises n'ont pas de caractère officiel mais circulent très rapidement, ce qui est primordial en cas d'augmentation anormale de la radioactivité dans l'air.

Le 02.10.2017 le laboratoire de mesure de Milan a été le premier à annoncer la détection de Ruthénium dans l'air entre le 29.09 et le 02.10.2017, avec une concentration atteignant 3 mBq/m³. Il a été suivi le même jour par les laboratoires tchèques et autrichiens. Les filtres aérosols du collecteur à haut volume de Cadenazzo étant changés manuellement et envoyés par poste, ce n'est que le lendemain que l'OFSP a pu constater que le Tessin était également concerné et publier les premières valeurs. Les concentrations mesurées dans les pays de l'Est et du Sud de l'Europe ont été généralement supérieures à celles enregistrées en Suisse, avec par exemple une valeur de 40 mBq/m³ dans l'Est de l'Autriche.

Echange et communication au niveau international

Informée de cette situation, l'Agence internationale de l'énergie atomique (AIEA) a demandé dès le 07.10.2017 à l'ensemble de ses pays membres de communiquer leurs résultats de mesure concernant ce radionucléide. Parmi environ 400 résultats collectés jusqu'à mi-octobre, la valeur la plus élevée rapportée à l'AIEA s'élève à 0.15 Bq/m³ et a été mesurée le 30 septembre en Roumanie. Dans les pays où les concentrations maximales ont été enregistrées, des traces de ^{106}Ru ont à nouveau été sporadiquement mesurées jusqu'en novembre, probablement suite à la remise en suspension de particules déposées au sol. Toutefois, les résultats tendent à montrer que le rejet est aujourd'hui terminé. A noter que les données fournies en octobre par la Russie étaient lacunaires. Fin novembre 2017 le service météorologique russe a annoncé avoir également mesuré des valeurs plus élevées de ^{106}Ru sur le territoire russe, à des niveaux comparables à ceux enregistrés en Pologne.

1 Pour plus d'informations sur le Ring Of Five, consulter le site de l'IRSN (www.irsn.fr).

Origines possibles et enquête

Le ^{106}Ru est un élément radioactif d'une demi-vie de 373.6 jours. N'étant pas détecté dans l'air en temps normal, sa présence ne peut être liée qu'à un rejet non maîtrisé. L'absence de tout autre radionucléide artificiel conduit à écarter l'hypothèse d'un rejet issu d'un réacteur nucléaire. En revanche, un tel rejet pourrait résulter d'une activité de retraitement de combustibles nucléaires usés ou d'une activité de production de sources radioactives. Cependant, aucun pays n'a déclaré à l'AIEA être à l'origine de ce rejet.

L'office fédéral allemand de radioprotection (BfS) ainsi que l'institut de radioprotection et de sûreté nucléaire français (IRSN) ont effectué des simulations pour reconstituer le rejet à partir des centaines de résultats de mesures observés. Les calculs effectués indépendamment par les deux instituts et publiés début novembre arrivent aux mêmes conclusions, à savoir que la zone de rejet la plus plausible se situe au sud de l'Oural sans qu'il ne soit possible, avec les données disponibles, de préciser la localisation exacte du point de rejet. La carte présentant la plausibilité de l'origine du rejet est disponible sur le site internet de l'IRSN. Par ailleurs, pour la zone de rejet la plus plausible, la quantité de ^{106}Ru rejetée estimée par les simulations de l'IRSN est très importante, comprise entre 100 et 300 térabecquerels.

Du fait des quantités rejetées, les conséquences d'un accident de cette ampleur en France (ou en Suisse) auraient nécessité localement de mettre en œuvre des mesures de protection des populations sur un rayon de l'ordre de quelques kilomètres autour du lieu de rejet. Un dépassement des niveaux maximaux admissibles dans les denrées alimentaires (1'250 Bq/kg pour le ^{106}Ru) serait quant à lui observé sur des distances de l'ordre de quelques dizaines de kilomètres autour du point de rejet. Toutefois, suite aux investigations menées par l'OFSP en collaboration avec l'office fédéral de la sécurité alimentaire et des affaires vétérinaires(OSAV), le canton de Bâle et les douanes, il apparait que la probabilité d'un scénario qui verrait l'importation en Suisse de denrées alimentaires contaminées par du ^{106}Ru à proximité de la source de rejet est extrêmement faible et, d'autre part, que le risque sanitaire potentiel lié à ce scénario est lui aussi très faible. Il n'apparait donc pas nécessaire de mettre en place des contrôles systématiques des niveaux de radioactivité de denrées alimentaires importées en Suisse en provenance du Sud de l'Oural.

Début février 2018, l'IRSN a publié un rapport qui fait la synthèse des différentes investigations qu'il a menées à la suite de cet incident. Ce rapport a été présenté par l'IRSN le 31 janvier 2018 à Moscou à l'occasion de la première réunion de la Commission internationale d'experts mise en place par les autorités russes, dédiée à l'examen de l'origine du ^{106}Ru. Les travaux de cette commission sont encore en cours. En date de parution de ce rapport, l'origine du rejet de ^{106}Ru dans l'atmosphère à l'origine des contaminations mesurée en Suisse et en Europe reste toutefois officiellement toujours inconnue.

Conclusions

Les concentrations maximales de ^{106}Ru mesurées dans l'air en Suisse méridionale entre la fin septembre et début octobre 2017 sont restées 350 fois inférieures à la limite d'immissions pour ce radionucléide dans l'air selon l'ORaP. Par ailleurs, les échantillons prélevés au Tessin par le laboratoire cantonal ont permis d'exclure une contamination des denrées alimentaires. La présence de ce radionucléide artificiel dans l'air, dont l'origine reste toujours inconnue mais qui provient de régions très éloignées de la Suisse, n'a donc pas eu de conséquences sanitaires pour la population suisse. Cet événement a toutefois permis de démontrer que la surveillance de la radioactivité dans l'air mise en place par l'OFSP est efficace. La plateforme www.radenviro.ch créée à la suite de l'accident de Fukushima a permis une information rapide et transparente de la population. La collaboration entre les différentes institutions cantonales et fédérales (OFPP, OSAV, DFAE, douanes, etc) a par ailleurs parfaitement fonctionné. Les réseaux de contacts informels entre experts/spécialistes européens ont également joué un rôle important au cours de la phase de détection. Les processus officiels de communication au niveau international sont en effet basés sur le principe de l'annonce d'un événement par un pays ; en son absence, comme ce fut le cas ici, les organismes internationaux officiels n'ont que peu de moyens d'action immédiats.

4.4
Überwachung der Radioaktivität der Luft mit Militärflugzeugen

M. Müller, S. Estier, G. Ferreri
Sektion Umweltradioaktivität, URA / BAG, 3003 Bern

Zusammenfassung

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

Vorgeschichte

In den 1960er-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 1950er-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 überirdischen 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. In der Folge wurden in Zusammenarbeit der KUER mit den damaligen Flugzeugwerken Emmen in den 1960er-Jahren Sammelgeräte entwickelt und im Windkanal kalibriert. Diese ermöglichen es, mittels Militärflugzeugen Aerosolpartikel in bis zu 12'000 m Höhe zu sammeln. Die Proben können anschliessend im Labor mittels Gamma-

Spektrometrie analysiert werden. Ebenfalls ab Mitte der 1960er-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 für diesen Zweck eingesetzten Tiger-Flugzeuge über eine andere Aufhängevorrichtung verfügen. Zudem zeigte sich, dass die seit rund 30 Jahren eingesetzten Geräte einer Überholung bedurften. Mit dieser Erneuerung und Anpassung sowie der erneuten Flugzulassung wurde RUAG Aerospace (die Nachfolgerin der Flugzeugwerke Emmen) beauftragt. Seit 2004 sind die Geräte wieder einsatzbereit und flugerprobt.

Figur 1 :
Höhenluftfilter-Aggregate montiert an den beiden Flügeln eines Tiger.

Sammlung der Proben

Die Probenahme der Aerosolpartikel erfolgt mit Hilfe von Filtern, 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 kalibriert, sodass bei bekannter Flughöhe, Geschwindigkeit und Flugdauer die Anzahl gesammelter Kilogramm Luft ermittelt werden kann.

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

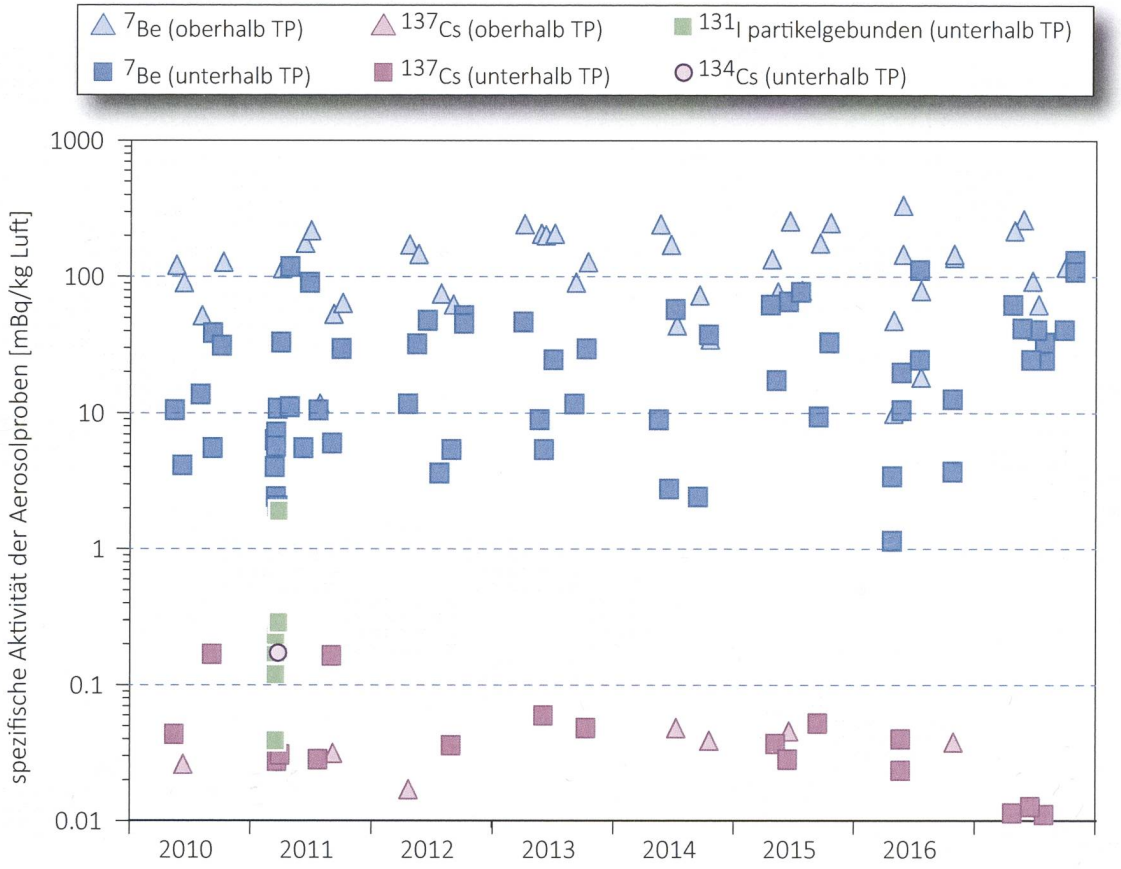
Die Fluggeschwindigkeit beträgt normalerweise etwa Mach 0.8. Bei einer durchschnittlichen Probenahmedauer von 20 bis 30 Minuten liegt die gesammelte Luftmenge zwischen 2'000 und 4'000 kg.

Figur 2:
Höhenluftfilter-Aggregate: Detail-Aufnahme eines Sammelgerätes.

Als Filtermaterial wird ein Zellulosefilter (Sorte 0048, Art. Nr. 348987) von Whatman mit den Dimensionen 555 x 526 mm verwendet. Für die Messungen wird der Filter halbiert. Eine Hälfte wird 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 freigesetzter Radioaktivität, da 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 durchgeführt werden, z.B. mit radiochemischen oder massenspektrometrischen verfahren.



Figur 3:
^{7}Be-, ^{134}Cs-, ^{137}Cs- und partikelgebundene ^{131}I- Messwerte in mBq/kg Luft in den Jahren 2010-2017.

Über die letzten sechs Jahre liegt die durchschnittliche Konzentration des kosmogenen Radionuklids ^{7}Be oberhalb der Tropopause bei 124 mBq/kg. Bei den Messungen 1 km unterhalb der Tropopause liegt der Durchschnittswert bei 17 mBq/kg. Als Vergleich seien hier die Werte von P. Winiger [1] bis [4] erwähnt, die für ^{7}Be im Mittel bei 100 mBq/kg bzw. 20 mBq/kg liegen, jeweils 1'000 m über bzw. unter der Tropopause ermittelt.

Der grösste Teil der ^{137}Cs-Werte lag im Jahr 2017 unter der Nachweisgrenze von 0.01- 0.05 mBq/kg. In Figur 3 deutlich sichtbar sind die nach dem Reaktorunfall Fukushima (Japan) 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 in den Jahren nach 2011 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 ^{7}Be, ^{137}Cs und jungen Spaltfragmenten an der Tropopause. Tellus Vol. 28/5, 434-441.

4.5 Radioaktivität in aquatischen Systemen

M.S. Brennwald
Eawag, Gruppe Umweltisotope, Abteilung W+T, 8600 Dübendorf
P. Rünzi
Eawag, Gruppe Sedimentologie, Abteilung SURF, 8600 Dübendorf
M. Zehringer
Kantonales Labor Basel-Stadt, 4012 Basel

Zusammenfassung

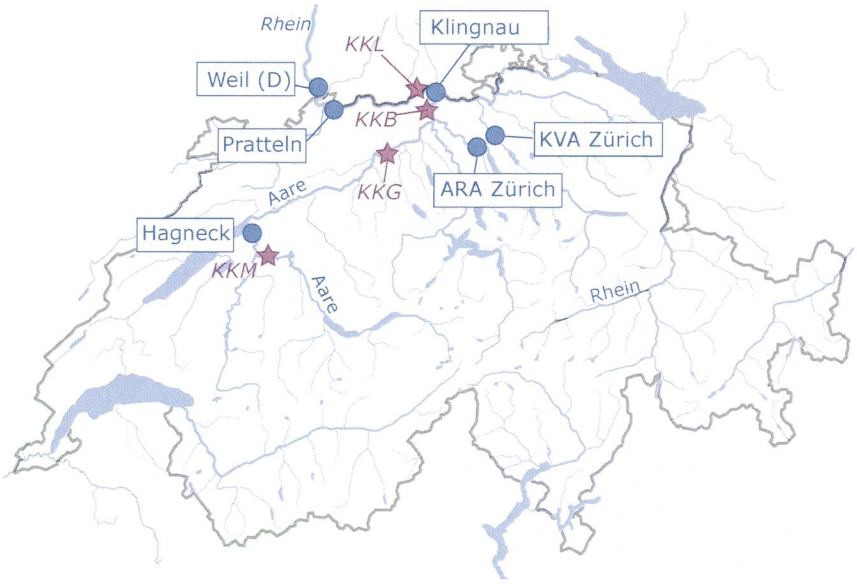
In den Wasserproben von Aare und Rhein wurden 2017 weder ^{54}Mn, ^{58}Co oder ^{60}Co aus Abgaben der Kernkraftwerke Mühleberg, Gösgen, Beznau oder Leibstadt nachgewiesen. Nur in den Schwebestoffproben von Aare und Rhein wurden sporadisch ^{54}Mn und ^{60}Co in geringen Konzentrationen gefunden. Weiter wurde vereinzelt ^{137}Cs beobachtet, welches zum grössten Teil vom Tschernobylunfall stammt. In Stichproben von Schwebstoffen im Rhein bei Weil (D) wurden im Weiteren die kurzlebigen Radionuklide ^{131}I, ^{177}Lu und ^{223}Ra gefunden, welche in der Nuklearmedizin eingesetzt werden. In Fischen waren keine künstlichen Radionuklide nachweisbar. In verschiedenen Wasserpflanzenproben wurde vereinzelt ^{60}Co und ^{137}Cs 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. Entsprechend wird die Radioaktivität in aquatischen Systemen kontinuierlich analysiert mit dem Ziel, die Radionuklid-Immissionen der entsprechenden Betriebe zu überwachen und die gesamte Radioaktivität, welche die Schweiz über den Wasserpfad 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



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.

regelmässig Schwebestoffproben gesammelt. Zusätzlich werden einmal jährlich auch Grundwasser-, Fisch- und Wasserpflanzenproben untersucht. Die Aktivitäten der Radionuklide in allen Proben werden an der Eawag mittels Gammaspektrometrie bestimmt.

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 50 L und 200 L ergibt. 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 aus dem Produkt der gemessenen Aktivität und der während der Sammelperiode abgeflossenen Wassermenge. Im Jahr 2017 ist durch technische Umstellungen an der Überwachungsanlage (BAFU/METAS) bei der Station Hagneck die Steuerung der Wasserbeprobung für die Radionuklidüberwachung im April, September und Oktober ausgefallen. In diesen Monaten konnten deshalb keine aussagekräftigen Wasserproben genommen werden.

Die Schwebestoffproben werden mit Hilfe von Sedimentfallen als monatliche Sammelproben gesammelt. Die Fisch- und Wasserpflanzenproben (ohne Wurzeln) werden unmittelbar stromabwärts der Kernkraftwerke entnommen. Die Fische werden filetiert und die Wasserpflanzenproben werden gereinigt, 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.

Bei der Rheinüberwachungsstation Weil (D) werden durch das Amt für Umweltschutz und Energie Basel Stadt (AUE BS) täglich Wasserproben gesammelt. Das kantonale Labor Basel-Stadt (KLBS) mischt die Tagespoben zu Wochenmischproben und bestimmt deren ^{3}H-Aktivität (Bestimmungsgrenze 2 Bq/L). Zudem sammelt das AUE BS bei Weil monatlich Schwebstoff-Stichproben. Dabei wird über Zeiträume von einigen Tagen Rheinwasser aus der Querprofilmischung entnommen und davon die Schwebestoffe abzentrifugiert. Die Schwebstoffe werden gefriergetrocknet, gemahlen und danach vom KLBS 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 auf der Annahme beruht, dass die über 1- 4 Tage gesammelten Stichproben repräsentativ für den ganzen Monat sind, was aufgrund der diskontinuierlichen Abgaben der Kernkraftwerke nicht immer zutrifft.

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.

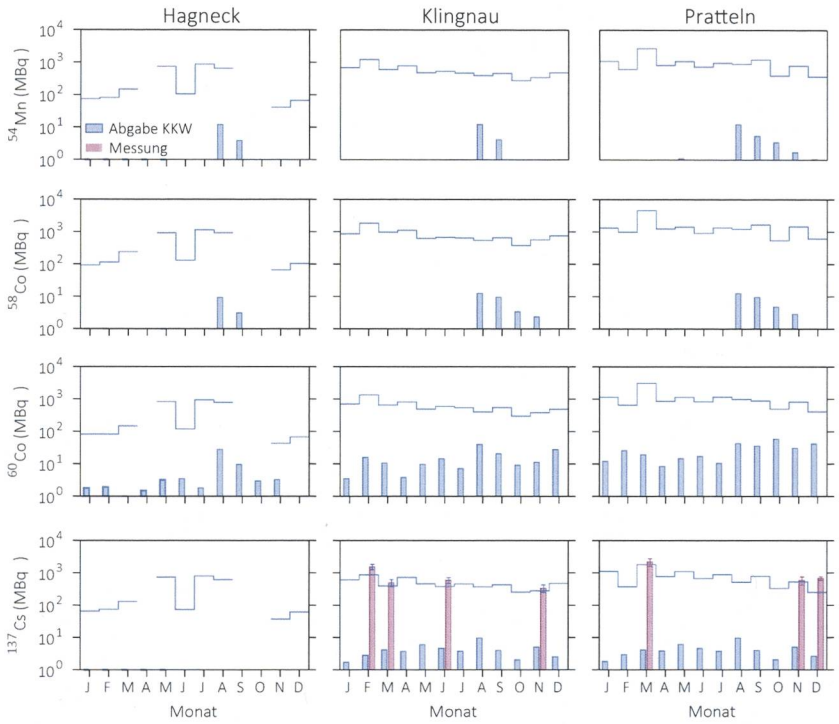
Ergebnisse

Wasserproben

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 kumulierten Abgaben von ^{54}Mn, ^{58}Co und ^{60}Co der flussaufwärts gelegenen Kernkraftwerke sind vorwiegend durch die Abgaben aus dem Kernkraftwerk Mühleberg dominiert. Die kumulative ^{137}Cs-Bilanz ist durch die Abgaben des Kernkraftwerks Beznau bestimmt, welche relativ gleichmässig über das Jahr verteilt waren.

Bei allen drei Stationen (Hagneck, Klingnau und Pratteln) wurde über das ganze Jahr kein ^{54}Mn, ^{58}Co oder ^{60}Co nachgewiesen. In früheren Jahren wurden vereinzelt Spuren dieser Nuklide nahe der Nachweisgrenze gefunden. Im Jahr 2017 war der Abfluss in den überwachten Fliessgewässern allerdings nochmals geringer als im Jahr 2016, als der Abfluss ebenfalls schon gering war. Möglicherweise sind Mn und Co durch die stärkere Partikelsedimentation in der schwächeren Strömung effizienter aus dem Wasser entfernt worden als in den Vorjahren. Zudem waren die Abgaben aus den KKW in den Jahren 2016 und 2017 deutlich geringer als in den Vorjahren (Fig. 4).



Figur 2 :
Vergleich der berechneten und gemessenen Frachten von ^{54}Mn, ^{58}Co, ^{60}Co und ^{137}Cs an den drei Stationen bei Hagneck, Klingnau und Pratteln. Die berechneten Frachten entsprechen den kumulierten Abgaben der flussaufwärts gelegenen Kernkraftwerke. Die Messwerte lagen mit wenigen Ausnahmen immer unter der Bestimmungsgrenze (blaue Stufenlinie). Die Fehlerbalken zeigen den Standardmessfehler der Fracht.

^{137}Cs wurde bei Klingnau und Pratteln nur sporadisch und in Konzentrationen nahe der Bestimmungsgrenze gefunden. Diese ^{137}Cs-Nachweise sind grösser als die Abgaben der Betriebe, was wie in bisherigen Jahren auf die Remobilisierung von ^{137}Cs vom Tschernobylunfall zurückgeführt wird.

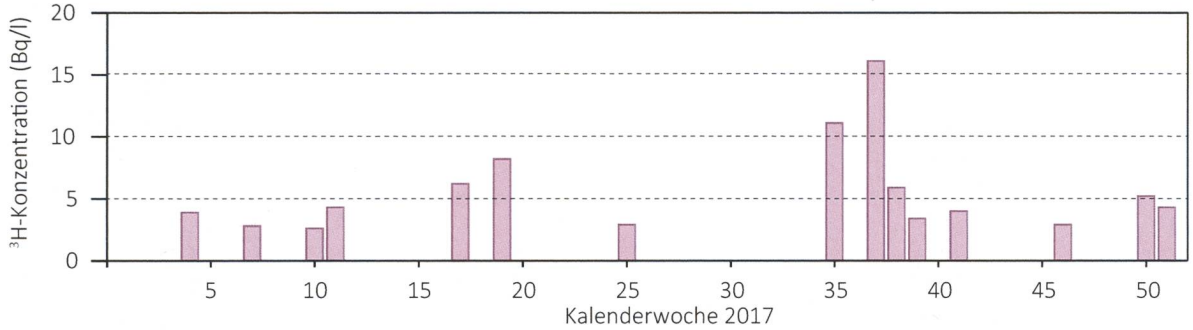
Die ^{3}H-Aktivität der wöchentlichen Rheinwasserproben von Weil am Rhein (D) ist in Figur 3 dargestellt. Die ^{3}H-Konzentrationen betragen über das ganze Jahr generell ≤ 8 Bq/L. Dieser Wert wurde nur in den beiden Proben der Kalenderwoche 35 (11 Bq/L) und Kalenderwoche 37 (16 Bq/L) übertroffen.

In allen analysierten Proben liegen die Konzentrationen von ^{54}Mn, ^{58}Co, ^{60}Co, ^{137}Cs und ^{3}H um mindestens drei bis vier Grössenordnungen unterhalb Immissionsgrenzewerte für Gewässer (StSV).

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

Langfristige Entwicklung der Radionuklidabgaben und Frachten in Aare und Rhein

Figur 4 zeigt den zeitlichen Verlauf der Abgaben von ^{54}Mn, ^{58}Co, ^{60}Co und ^{137}Cs aller Kernkraftwerke während den Jahren 2000 - 2017. Als Folge der Revisionen der Kernkraftwerke sind die Abgaben in der Regel im



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

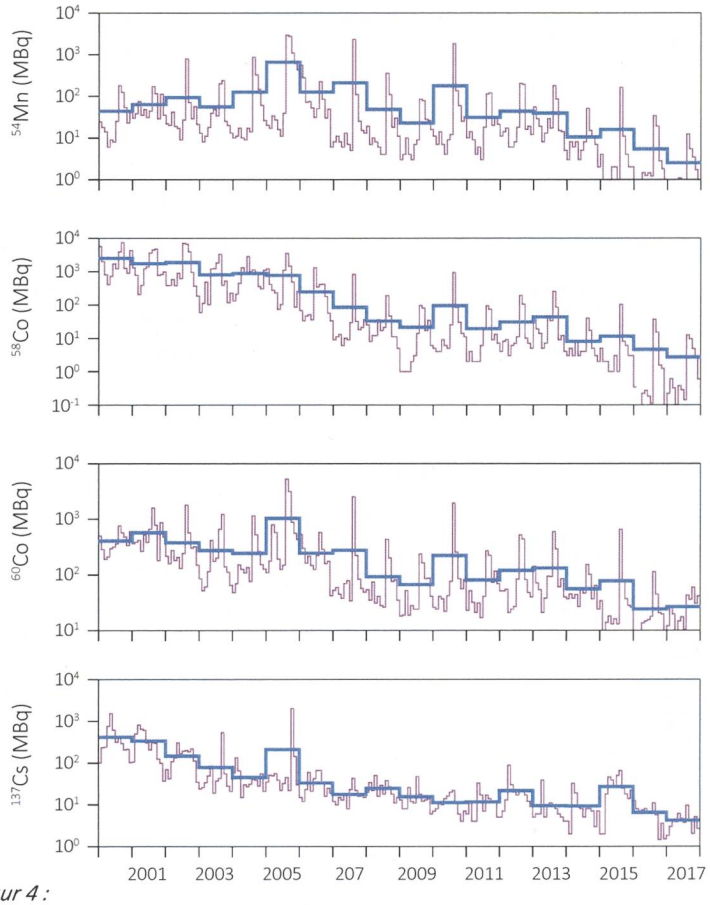
Sommer/Herbst am grössten. Über die Jahre betrachtet haben die Abgaben von ^{58}Co, ^{60}Co und ^{137}Cs bis ca. 2008 tendenziell abgenommen. Danach ist bis 2015 keine systematische Veränderung erkennbar. In den Jahren 2016 und 2017 verringerten sich die Abgaben aller vier Nuklide weiter.

Im Einklang mit den generell geringeren Abgaben während der letzten Jahre lagen die Messwerte der im Wasser gelösten Radionuklide mit sporadischen Ausnahmen bei ^{137}Cs unterhalb der spezifischen Bestimmungsgrenzen. Deshalb ist wie bereits in den Vorjahren eine Quantifizierung der Jahresgesamtfracht anhand der monatlich überwachten Radionuklidfrachten nicht sinnvoll möglich.

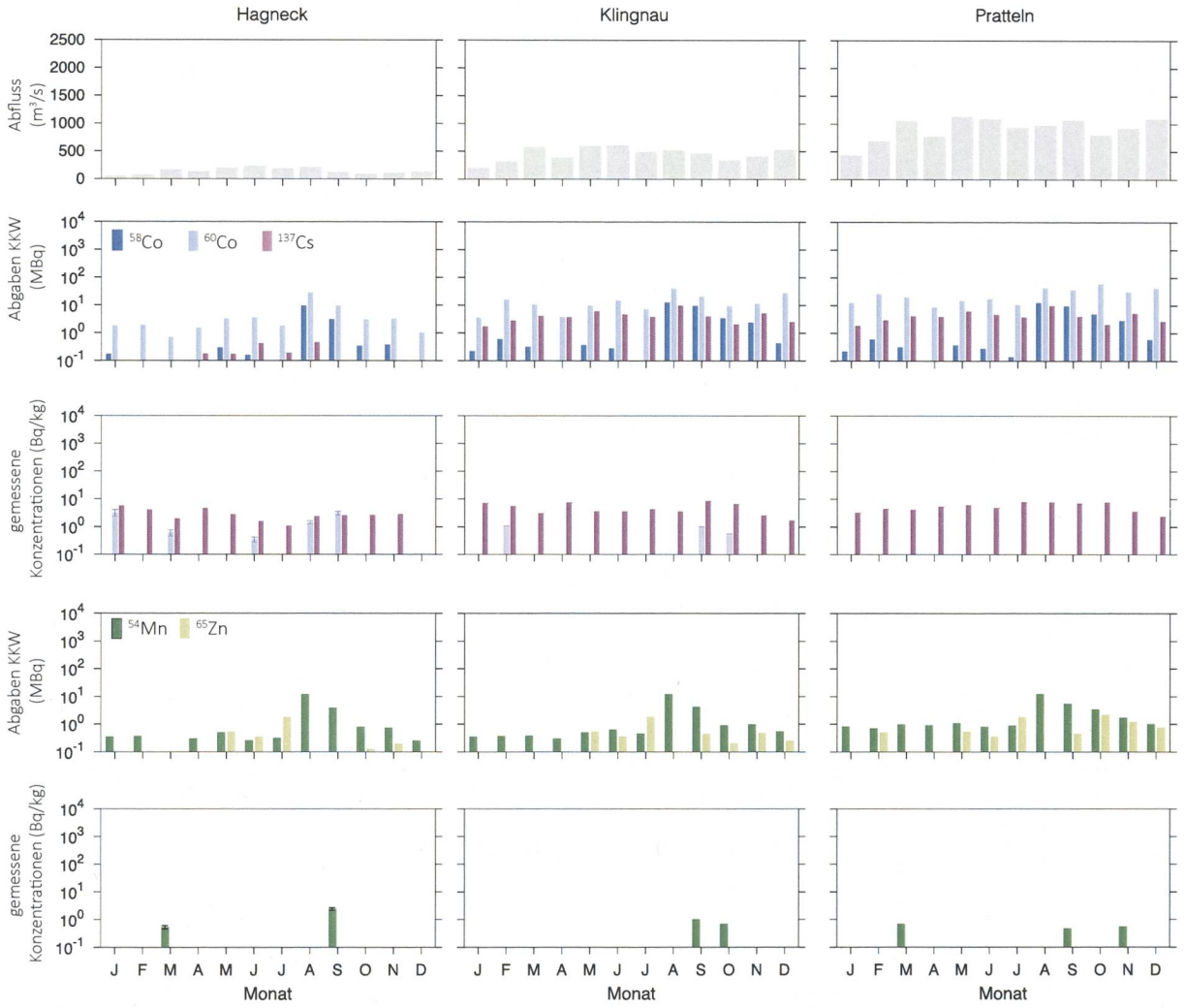
Partikelproben

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 in die Wasserphase gelangen.

Die spezifischen ^{137}Cs-Aktivitäten der Partikelproben liegen bei allen drei Stationen bei 0.5 - 8.4 Bq/kg und zeigen keine generelle Korrelation mit den Abgaben aus den Kernkraftwerken (Figur 5). Die ^{137}Cs-Nachweise werden in Übereinstimmung mit dem im Wasser gelösten ^{137}Cs auf die Mobilisierung von ^{137}Cs vom Tschernobylunfall zurückgeführt. Ansonsten wurden vereinzelt ^{54}Mn (bei allen drei Stationen) und ^{60}Co (bei Hagneck und Klingnau) gefunden. ^{58}Co und ^{65}Zn wurden nicht nachgewiesen.



Figur 4 :
Zeitliche Entwicklung der Abgaben von ^{54}Mn, ^{58}Co, ^{60}Co und ^{137}Cs aus den Kernkraftwerken während 2000 - 2017 (jährliche und monatliche Mittelwerte der Summen der Abgaben aller Kernkraftwerke; Angaben ENSI).

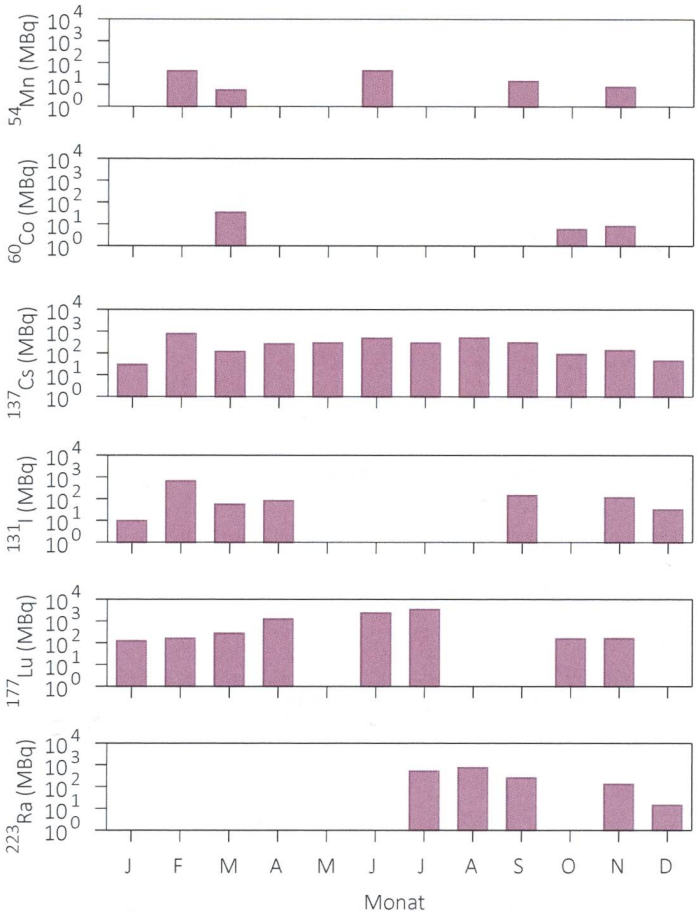


Figur 5 :
Spezifische Aktivitäten von ^{54}Mn, ^{58}Co, ^{60}Co, ^{65}Zn und ^{137}Cs in den monatlichen Partikelproben aus den Sedimentfallen bei Hagneck, Klingnau und Pratteln im Vergleich mit dem Abfluss und den kumulierten Abgaben der stromaufwärts gelegenen Kernkraftwerke. Die Messwerte wurden nur dann eingezeichnet, wenn die Bestimmungsgrenze der jeweiligen Messung erreicht wurde (typische Bestimmungsgrenzen für alle Nuklide in der Figur: 0.5 - 4 Bq/kg). Die Fehlerbalken zeigen den Standardmessfehler der spezifischen Aktivitäten.

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 nachgewiesen. In allen Stichproben wurde ^{137}Cs gefunden, was wiederum primär auf die Mobilisierung von ^{137}Cs aus dem Tschernobylunfall zurückgeführt werden kann. Zusätzlich zu den relativ langlebigen Radionukliden konnten in den Stichproben von Weil (D) auch die kurzlebigen Radionuklide ^{131}I (Halbwertszeit: 8 Tage), ^{177}Lu (Halbwertszeit: 6.7 Tage) und ^{223}Ra (Halbwertszeit: 11.4 Tage) nachgewiesen werden (ebenfalls Figur 6), welche in der Nuklearmedizin eingesetzt werden.

Fische

Im Jahr 2017 wurden Fische aus der Aare bei Hagneck (gefangen am 16.8.2017), bei Schönenwerd (5.10.2017), dem Klingnauer Staubecken (2.8.2017) und dem Rhein bei Birsfelden (26.9.2017) analysiert. Bei allen Fischproben wurde natürliches ^{40}K gefunden (511 - 670 Bq/kg). Künstliche Radionuklide wurden keine nachgewiesen



Figur 6 :
Monatliche Frachten von ^{54}Mn, ^{60}Co, ^{137}Cs, ^{131}I, ^{177}Lu und ^{223}Ra auf Schwebestoffen bei Weil am Rhein (D). Die Frachten wurden aus den Messergebnissen der Stichproben abgeschätzt, welche über kurze Zeiträume (1 - 4 Tage pro Monat) gesammelt wurden.

Wasserpflanzen

Es wurden Wasserpflanzen bei den verschiedenen Überwachungsstationen entnommen und analysiert:

- In der Probe von Wehr bei Hagneck (12.10.2017) wurden ^{60}Co (1.6 Bq/kg), und ^{137}Cs (1.8 Bq/kg) gefunden.
- In der Probe vom Klingnauer Staubecken (12.10.2017) wurde ^{60}Co (4.1 Bq/kg) und ^{137}Cs (3.5 Bq/kg) gefunden.
- In der Probe von Pratteln (13.10.2017) wurde ^{137}Cs (6.3 Bq/kg) gefunden.

Abgesehen von künstlichen Radionukliden wurde in allen Proben ^{40}K gemessen (458 - 626 Bq/kg).

Grundwasser

In den Grundwasserproben von Aarberg (17.8.2017), Döttingen (17.8.2017) und Pratteln (17.8.2017) wurden keine künstlichen Radionuklide nachgewiesen (Bestimmungsgrenze 0.3 - 1 mBq/L).

4.6 Tritium-Monitoring in der Aare

Th. Stocker, R. Purtschert, P. Dürring, H.P. Moret und T. Wagner
Abt. Klima- und Umweltphysik, Physikalisches Institut Universität Bern, Sidlerstrasse 5, 3012 BERN

Einführung

Im Januar 2017 lancierte die Abteilung für Klima- und Umweltphysik (KUP) der Universität Bern im Auftrag der BKW Energie AG (BKW) und des Kantons Bern sowie mit Unterstützung des Bundesamtes für Gesundheit (BAG) ein umfangreiches Monitoring von Tritium (^3H) in Fliessgewässern des Kantons Bern. Im Rahmen dieses zunächst dreijährigen Monitorings soll im Hinblick auf die Stilllegung des Kernkraftwerks Mühleberg (KKM) am 20.12.2019 das Tritium im Wasser der Aare in hoher zeitlicher Auflösung gemessen werden. Das Ziel ist die detaillierte Aufnahme des bisherigen Normalzustandes bezüglich Tritiumaktivität im Flusswasser über drei vollständige Jahresgänge (2017- 2019), um damit eine Referenzgrösse zu bestimmen. Diese Referenzgrösse ist eine unerlässliche Basis für allfällige entsprechende Messungen während der Rückbauphase des KKM ab 2020.

Probenahmen

Aarewasser wurde an drei Standorten entnommen:

- Aare flussaufwärts vom KKM (Standort Eymatt am Wohlensee)
- Aare flussabwärts vom KKM (Standort Mühleberg-Rewag)
- Aare Wynau (kurz vor dem endgültigen Verlassen der Aare des Kantons Bern)

Zusätzliche Tritiummessungen erfolgten am Wasser von drei Trinkwasserfassungen des Wasserverbunds Seeland (nahe Gimmiz/Worben), welche von Aarewasser gespiesen werden, sowie am Wasser von zwei Referenzstandorten:

- Aare am Altenbergsteg Bern (unterhalb der Kornhausbrücke)
- Emme an der Heimiswilbrücke Burgdorf

Darüber hinaus wurde auch das auf dem Dach des Physikalischen Instituts der Universität Bern gesammelte Regenwasser regelmässig auf seinen Tritiumgehalt hin untersucht.

Tabelle 1 enthält Einzelheiten zu den Messungen, die 2017 durchgeführt wurden.

Tabelle 1:
Anzahl der Tritiummessungen 2017 nach Art und Entnahmeort

Art bzw. Entnahmeort der Probe	Anzahl.
Aare Eymatt	342
Aare Mühleberg Rewag	359
Aare Wynau	52
Gimmiz/Worben	49
Referenzstation Kornhausbrücke	12
Referenzstation Heimiswilbrücke	12
Regenwasser Physikalisches Institut	11
Standards/Nulleffektmessungen	50
Vergleichsmessungen/Wiederholungen	26
	Total: 913

Die täglichen Proben aus der Aare an den Standorten Eymatt und Mühleberg wurden mit Hilfe von automatischen Probenehmern vom Typ ISCO 6712 gesammelt. Dabei werden in Abständen von je 30 Minuten einige Milliliter Flusswasser in Probeflaschen abgefüllt, sodass jede Probeflasche eine Mischprobe eines 24-Stunden-Intervalls darstellt. Das Regenwasser auf dem Dach der Universität Bern wurde monatlich gesammelt und variierte im Volumen je nach Niederschlagsmenge. Bei den restlichen Proben handelte es sich um Stichproben mit einem Volumen zwischen 0.5 Litern und 1 Liter pro Probe.

Nachweis und Messung des Tritiumgehalts

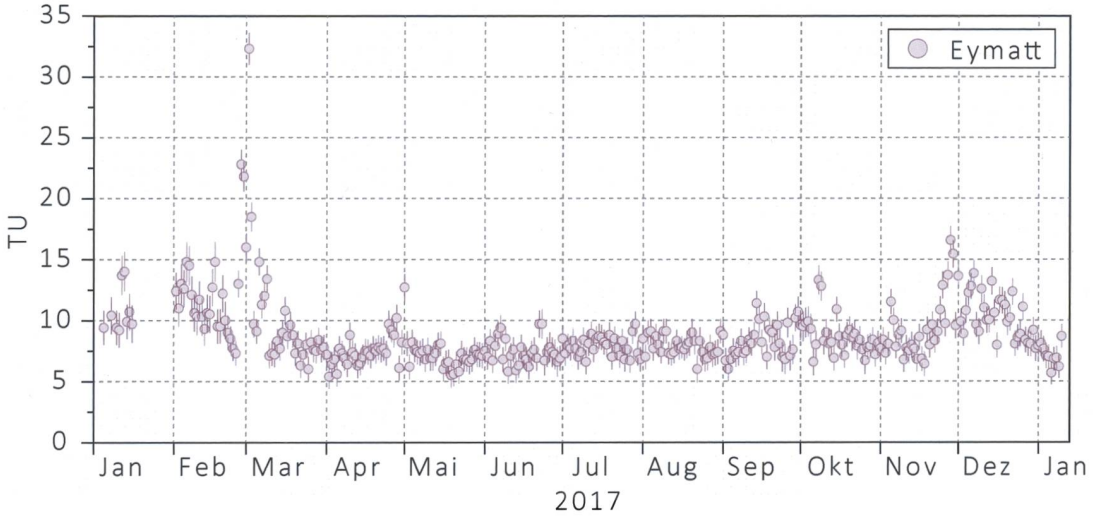
Die Aktivitätskonzentration von Tritium im Wasser wurde mit einem Liquid-Szintillationsmessgerät vom Typ Aloka LSC-LBIII bestimmt, welches im Tieflabor des Physikalischen Instituts der Universität Bern installiert ist. Die Nachweisgrenze liegt bei 0.5 Bq/L, sodass auch die natürliche Hintergrundaktivität von ^3H im Niederschlag detektiert werden kann.

Messergebnisse 2017

Standorte Eymatt und Mühleberg

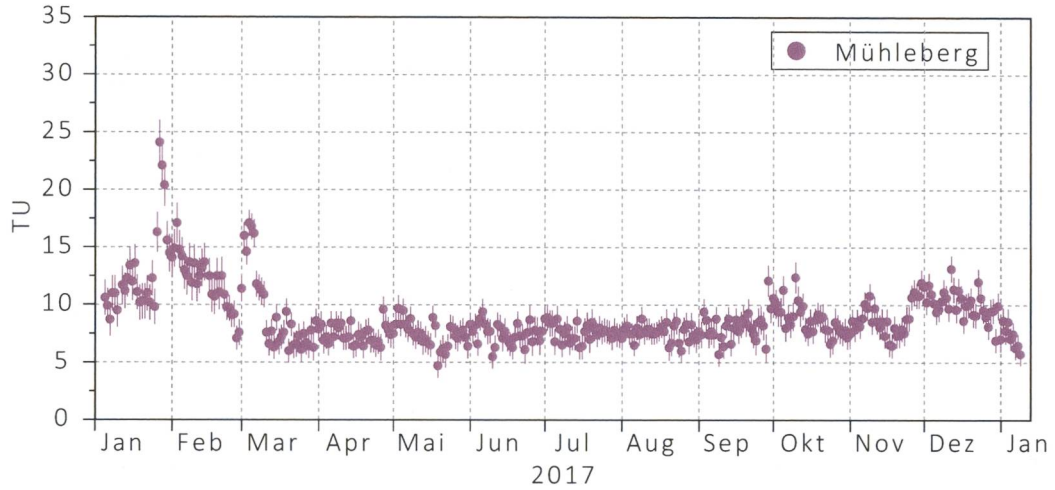
Der grösste Teil der Probenahmen im Jahr 2017 entfiel auf die Standorte Eymatt und Mühleberg, d. h. stromauf- bzw. stromabwärts vom Kernkraftwerk Mühleberg als potenziellem Tritiumemittenten. Die Tritiummesswerte an diesen beiden Standorten bewegten sich relativ stabil in einem Band zwischen 5 und 15 TU (1 Tritium Unit = 1 TU = 0.118 Bq/L), also ca. 0.6 bis 1.8 Bq/L.

Die Probenahme im Januar 2017 war aufgrund der extremen Kälte lückenhaft. Seither sind die beiden automatischen Probenahmestationen mit zusätzlichen Akkumulatoren nachgerüstet worden. Ende Februar wurden am Standort Eymatt einige deutlich erhöhte Tritiumwerte bis maximal 35 TU gemessen, die ebenfalls, jedoch reduziert, am Standort Mühleberg festgestellt werden konnten. Dies weist auf einen Tritiumemittenten oberhalb des Wohlensees hin.

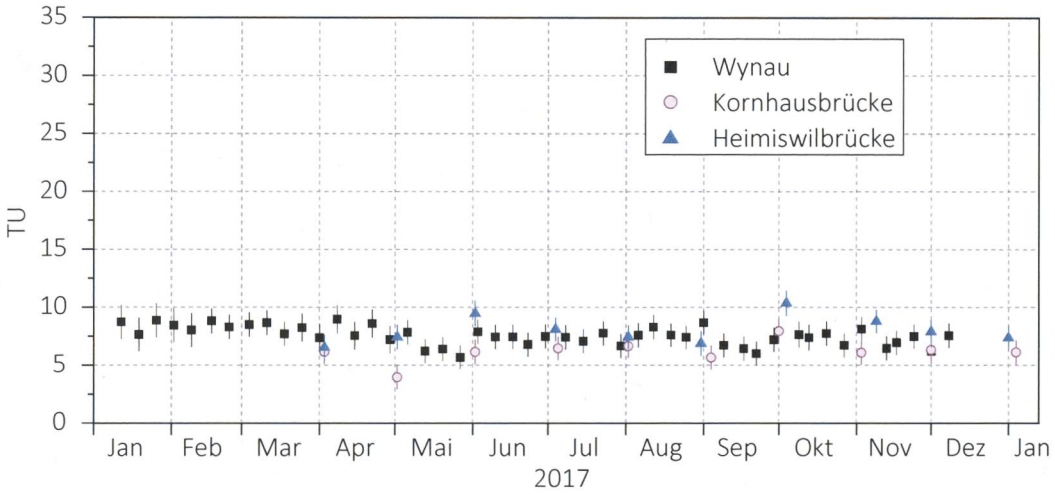


Figur 1 :
Tritium-Messwerte Januar bis Dezember 2017 am Standort Eymatt.

Es liessen sich gute Korrelationen zwischen den Standorten Eymatt und Mühleberg beobachten, wobei die Messwerte aus Mühleberg im Allgemeinen leicht unter den Werten des Standorts Eymatt lagen. Im Jahr 2017 trat das KKM im Leistungsbetrieb somit nicht als messbare Tritiumquelle für Aarewasser in Erscheinung. Die Jahresrevision des KKM, welche zwischen dem 13. August und dem 7. September 2017 stattfand, führte ebenfalls zu keiner messbaren Erhöhung des Tritiumgehalts des Aarewassers. Auch an den anderen Probenahmestellen der Aare wurden während des gesamten Jahres keine erhöhten Werte gemessen.



Figur 2 :
Tritium-Messwerte Januar bis Dezember 2017 am Standort Mühleberg.



Figur 3 :
Tritium-Messwerte Januar bis Dezember 2017 an den Standorten Wynau, Kornhausbrücke und Heimiswilbrücke.

Standorte Gimmiz

Im Raum Gimmiz wurden im Sommer 2017 die drei Wasserfassungen Gimmiz 3, Gimmiz 4 und Römerstrasse beprobt. Der Tritiumgehalt des Wassers von Gimmiz 3 lag mit Werten zwischen 10.5 und 29.5 TU deutlich über dem der beiden anderen Wasserfassungen, deren Tritiumgehalt mit Werten zwischen 6.5 und 9.4 TU dem des Aarewassers entspricht.

Standort Physikalisches Institut

Der im Jahr 2017 gemessene absolute Höchstwert betrug 117 TU (entsprechend 13.8 Bq/L) und trat bei Regenwasser auf, das im März auf dem Dach des Physikalischen Instituts gesammelt wurde. Möglicherweise wurde das Tritium mit dem Wind aus Mühleberg oder Niederwangen, wo sich einer der grössten Tritiumemittenten der Schweiz befindet, nach Bern verfrachtet. Für das Jahr 2018 sind einige zusätzliche Messungen geplant, um mögliche Quellen für tritiumhaltige Niederschläge genauer zu bestimmen.

Begleitgruppe Tritium-Monitoring

Zur Begleitung des Projekts sowie zur Sicherstellung des Informationsstandes aller Beteiligten wurde eine Begleitgruppe bestehend aus Vertretern des Kantons Bern, der BKW, des BAG und der Universität Bern geschaffen. Das erste jährliche Treffen fand am 24. November 2017 statt.

4.7
Automatisches Messnetz zur Überwachung des Flusswassers

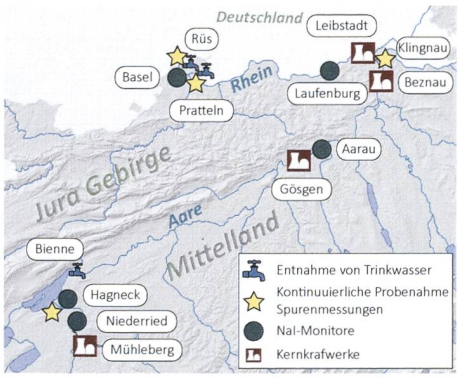
P. Steinmann, M. Müller, S. Estier
Sektion Umweltradioaktivität, URA / BAG, 3003 Bern

Zusammenfassung

Die fünf automatische Natrium-Iodid-Sonden des Messnetzes URAnet aqua messen fortlaufend die Konzentration von Gammastrahlern in Aare und Rhein und übermitteln alle 10 Minuten einen Messwert. Künstliche Radionuklide konnten im Berichtsjahr nicht nachgewiesen werden. Die Verfügbarkeit der Messsonden war sehr hoch, mit der Ausnahme eines fast dreitägigen Ausfalls beider Sonden unterhalb des Kernkraftwerks Mühleberg Anfang Januar.

Das Messnetz und seine Aufgaben

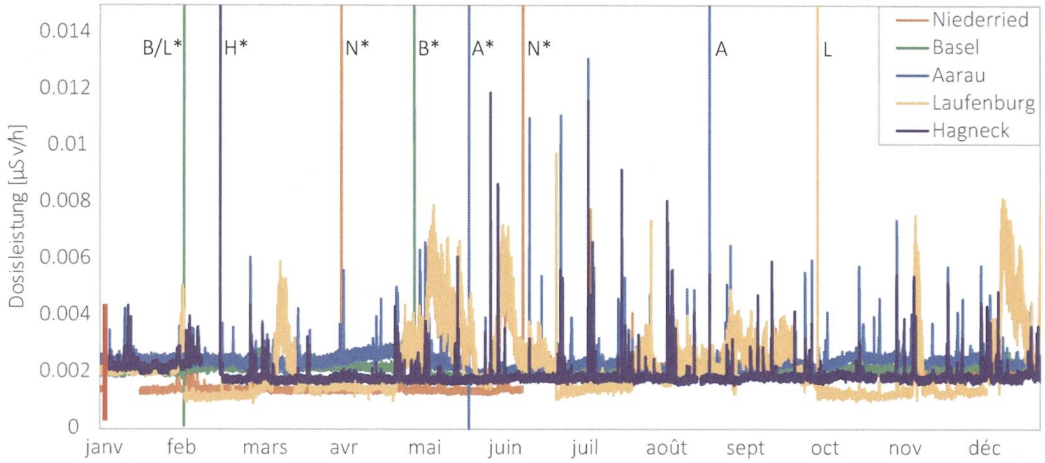
Das Messnetz URAnet aqua überwacht kontinuierlich und automatisch das Flusswassers von Aare und Rhein stromabwärts der Kernkraftwerke (Figur 1). Die beiden Sonden bei Niederried und Hagneck messen zwischen dem KKW Mühleberg und dem Bielersee, welcher ein wichtiges Trinkwasserreservoir für die Stadt Biel ist. Um eine möglichst lückenlose Messung zu gewährleisten bestehen in diesem Abschnitt zwei Messstandorte. Flussabwärts des Kernkraftwerks Gösgen sowie der beiden relativ nahe beieinander liegenden Standorte Beznau und Leibstadt sind zwei weitere Sonden installiert: eine bei Aarau und eine bei Laufenburg. Eine fünfte Sonde überwacht das von IWB für die Trinkwasserversorgung der Stadt Basel aus dem Rhein entnommene Wasser. Auch hier befinden sich also zwei Messsonden zwischen dem letzten Kernkraftwerk und der Trinkwasserentnahme.



Figur 1 :
Standorte der NaI-Detektoren; EAWAG-Stationen mit kontinuierlicher Probenahme für Spurenmessungen (Hagneck, Klingnau und Pratteln); Rheinüberwachungsstation RüS Weil a.Rh. (Messungen KL BS); Entnahmestellen von Trinkwasser im Bielersee und im Rhein (Pratteln und Basel).

Die Aufgabe der neuen automatischen Messsonden ist es starke Erhöhungen von Radioaktivität im Flusswasser rasch zu erkennen. Die Nachweisgrenze von rund 1 Bq/l erlaubt es eine untere Meldeschwelle im Bereich des Toleranzwertes aus der bis 1.5.2017 gültigen Fremd- und Inhaltstoffverordnung (FIV) bzw. der Immissionsgrenzwerte für Gewässer aus der revidierten Strahlenschutzverordnung zu setzen. Für ^{137}Cs ist die untere Meldeschwelle auf 10 Bq/l gesetzt. Eine zweite Schwelle mit Alarmauslösung entspricht den Höchstgehalten für Radionuklide nach einem nuklearen Unfall aus der Kontaminantenverordnung (VHK); für ^{137}Cs in flüssigen Lebensmitteln beträgt dieser 1'000 Bq/l. Bei Überschreitung der unteren Meldeschwelle wird per SMS die zuständige Stelle am BAG benachrichtigt, welche die Messwerte verifiziert, die Ursache einer allfälligen Kontamination eruiert und informiert. Bei Überschreitung der zweiten Schwelle wird sofort eine Alarmmeldung an die Nationale Alarmzentrale gesandt, die nach Rücksprache mit dem BAG die nötigen Massnahmen anordnet.

Die automatischen Messsonden sind komplementär zu den monatlichen Messungen der EAWAG (siehe Figur 1), welche mit einer mehr als tausendmal tieferen Nachweisgrenze auch geringe Abgaben der Kernkraftwerke erfassen können.



Figur 2 :
Dosisleistung aller URAnet aqua Stationen für das Jahr 2017. Der Asterisk (*) zeigt an, dass die Sonde zur Reinigung und Konstanzprüfung aus dem Wasser genommen wurde. Der rote Balken links zeigt den Unterbruch der Messungen der beiden Sonden vor dem Bielersee.

Messtechnik

Die eingesetzten Sonden enthalten 3'' NaI-Detektoren, welche im Wasser eine «Sichtweite» von rund einem Meter haben. Die NaI-Kristalle registrieren die Gammastrahlung und die Sonde zeichnet ein Energiespektrum auf. Alle 10 Minuten werden die Messwerte an die Messzentrale weitergeleitet. Am Ende einer vollen Stunde werden die sechs 10-Minuten-Spektren addiert und neu ausgewertet, was eine tiefere Nachweisgrenze ermöglicht (1Bq/l für ^{137}Cs). Siehe auch Lit. [1].

Verfügbarkeit der Messsonden und Messergebnisse 2017

Die Verfügbarkeit der Sonden, d.h. die Verfügbarkeit der 10-MinutenSpektren, ist in Tabelle 1 zusammengefasst. Generell sind diese Werte sehr hoch. Hingegen ist Anfangs Jahr der ungünstige Fall aufgetreten, dass beide Messonden zwischen Kernkraftwerk Mühleberg und dem Bielersee gleichzeitig ausgefallen sind. Während knapp 3 Tagen (zwischen dem 1. und 4. Januar 2017) sind für diesen Flussabschnitt keine Werte verfügbar.

Tabelle 1:
Verfügbarkeit (Uptime) der NaI-Wassersonden im Jahr 2017

Station	Uptime	Inbetriebnahme
Niederried	95.9%	Juni 2014
Hagneck	97.1%	Juni 2015
Aarau	99.8%	Juni 2014
Laufenburg	99.3%	Januar 2015
Basel	98.4%	Juli 2013

Die NaI-Detektoren des URAnet aqua Messnetzes konnten 2017 keine künstlichen Radioisotope im Flusswasser nachweisen. Bei den Messwerten fallen vor allem Spitzen in der Dosisleistung auf, wenn nach starken Niederschlägen viele Radonfolgeprodukte ins Flusswasser gelangen (siehe Fig. 2). Neben den kurzen «Radonspitzen» zeigt die Sonde Laufenburg anhaltendes Ansteigen der ODL bei Hochwasser. Das hat damit zu tun, dass die Sonde frei im Wasser hängt und bei erhöhter Strömung aufschwimmt; zudem werden durch das Öffnen der Schleusen die Strömungsverhältnisse geändert. Bei genauerer Betrachtung lässt sich bei der Ortsdosisleistung der Sonde Niederried eine geringe Erhöhung im August und September feststellen. Die Ursache ist die Stauabsenkung des Stausees Niederried in dieser Zeit. Auch hier führt eine geringere Abschirmung des Detektors durch die Wassersäule zu einem stärkeren Beitrag an kosmischer Strahlung. Die grossen Spitzen der ODL in Figur 2 kommen daher, dass die Sonden aus dem Wasser genommen wurden, zwecks Reinigung, Konstanzprüfung oder Austausch für Reparaturen. Kleine Stufen im Verlauf der ODL-Kurven sind ebenfalls auf Reinigung oder Austausch der Messsonden zurückzuführen. Online werden zurzeit die 24-Stunden-Mittelwerte der gemessenen Radioisotope auf www.radenviro.ch publiziert.

Literatur

[1] Steinmann P. und Estier S., 2015. Radioaktivität in Flusswasser unterhalb KKW: Das neue Messnetz zur kontinuierlichen Überwachung von Aare und Rhein. Aqua & Gas, 10, 66-72.

4.8
Sedimentationsrate im Südbecken des Luganersees

Bestimmung von Sedimentationsraten im Südbecken des Luganersees über Datierung von Sedimentschichten mit Hilfe von ^{137}Cs und ^{210}Pb

E. Klemt, V. Putyrskaya
Hochschule Ravensburg-Weingarten, D-88250 Weingarten
S. Röllin, J.A. Corcho-Alvarado, H. Sahli
LABOR SPIEZ, Bundesamt für Bevölkerungsschutz, 3700 Spiez

Zusammenfassung

Nach dem Unfall von Tschernobyl im Jahr 1986 wurde im Luganersee die Aktivitätskonzentration von künstlichen Radionukliden, insbesondere von ^{137}Cs, schon in mehreren langfristigen radioökologischen Studien (Dominik und Span, 1992; Konoplev et al., 2002; Putyrskaya et al., 2009; Santschi et al., 1990; Zibold et al., 2002) untersucht. In dem hier vorliegenden Bericht werden die Ergebnisse einer neuen Sedimentationsstudie vorgestellt, die im Südbecken des Luganersees durchgeführt wurde. Ein Sedimentkerns, der aus dem Jahr 2017 stammt, wurde mit einem anderen Sedimentkern einer naheliegenden Position verglichen, der schon zwei Jahrzehnte früher entnommen und untersucht wurde. Zum ersten Mal wurde ein Sedimentkern des Luganersees mit einer speziellen ^{210}Pb-Datierungsmethode untersucht: Es handelt sich dabei um das «piecewise Constant Rate Supply» Modell (CRSPW), bei dem der ^{210}Pb-Eintrag in das Sediment in verschiedenen Zeitintervallen jeweils konstant ist. Mit dem CRSPW-Modell wurden in den Zeitintervallen 1986 - 2017, 1963 - 1986 und vor 1963 als durchschnittliche Massen-Sedimentationsraten (0.041 ± 0.003) g/(cm^2 Jahr), (0.070 ± 0.009) g/(cm^2 Jahr) und (0.83 ± 0.066) g/(cm^2 Jahr) berechnet.

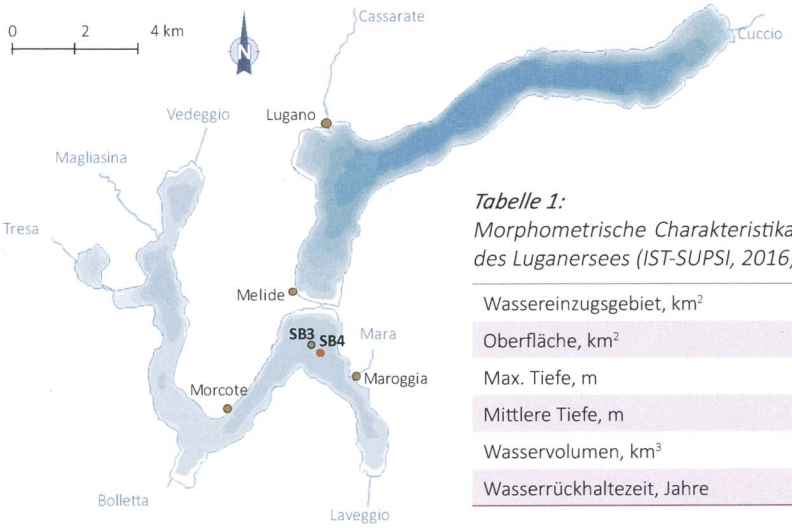
Einleitung

Der eiszeitlich geformte Luganersee liegt auf der Grenze zwischen der Schweiz (Tessin) und Italien (Lombardei) und er ist einer der großen Trinkwasserspeicher am südlichen Alpenrand. Nach dem Unfall von Tschernobyl am 26. April 1986 wurden auf Grund des Fallouts etwa 24 kBq/m^2 an ^{137}Cs auf der Oberfläche des Sees deponiert (Santschi et al., 1990). Ursprünglich war der See oligotroph aber in den 40er bis 60er Jahren hat er sich sehr rasch zu einem eutrophen See gewandelt. Bis heute ist er eutroph geblieben (Barbieri and Mosello, 1992; UPDA, 2006). Der See ist in zwei Becken (Nord-, Südbecken) aufgeteilt, die durch einen künstlichen Damm, der 1844 gebaut wurde, getrennt sind. Die vorliegende Studie beschäftigt sich mit der Messung von künstlichen und natürlichen Radionukliden in Sedimentkernen des monomiktischen und damit saisonal anoxischen Südbeckens und der Bestimmung von Sedimentationsraten in den letzten etwa 120 Jahren. In Tabelle 1 sind die wichtigsten morphometrischen Parameter des Luganersees zusammengestellt.

Probennahme und Probenvorbereitung

Am 13.Mai 1997 wurde ein Sedimentkern LS97-SB3 aus dem Südbecken des Luganer Sees entnommen (in der Nähe von Melide). Zwanzig Jahre später, am 5. Mai 2017, wurde der Kern LS17-SB4 nahe der Position SB3 entnommen (Figur 1). Die Koordinaten und weitere Parameter der zwei Kerne sind in Tabelle 2 zu finden.

Zur Beprobung wurde ein «Gravity Corer» mit einem Rohrinnendurchmesser von 58 mm verwendet. Die Sedimentkerne wurden bei 4 °C in einem Kühlschrank aufbewahrt, bevor sie geöffnet und längs in zwei Hälften aufgeteilt wurden. Die Hälften wurden in 1 cm dicke Schichten aufgeteilt. Nach Gefriertrocknung und Homogenisierung wurden alle Proben gewogen und in transparente zylindrische Polystyrol-Becher (LICEFA Kunststoffverarbeitung GmbH & Co. KG) mit einem Durchmesser von 58 mm und einer Höhe von 11 mm gegeben. Um zu verhindern, dass gasförmiges ^{222}Rn ($T_{1/2}$=3.8 Tage) aus den Proben herausdiffundiert, wurden sie in «Vacumetic Aluminium-Composite Foil» (BRANOpac GmbH) versiegelt, wie in Putyrskaya et al. (2015) beschrieben ist. Ein radioaktives Gleichgewicht zwischen den Töchtern von ^{222}Rn wurde dadurch sichergestellt, dass die Proben noch weitere ca. drei Wochen (> 5 $T_{1/2}$ von ^{222}Rn) gelagert wurden.



Figur 1 :
Karte des Luganersees mit den Beprobungspositionen in den Jahren 1997 (SB3) und 2017 (SB4).

Tabelle 1:
Morphometrische Charakteristika des Südbeckens des Luganersees (IST-SUPSI, 2016)

Wassereinzugsgebiet, km²	607,8
Oberfläche, km²	20,3
Max. Tiefe, m	95
Mittlere Tiefe, m	55
Wasservolumen, km³	1,14
Wasserrückhaltezeit, Jahre	1,4

Analyseverfahren

Die Aktivitätskonzentration der Radionuklide in den Sedimentproben wurde mit Hilfe von «Broad Energy Germanium» Detektoren (BEGe-5030) von Canberra-Eurisys gammaspektrometrisch bestimmt. Dabei variierte die Messzeit pro Probe zwischen 24 und 48 Stunden. Zur Bestimmung der «Single Photon Peak Efficiency» wurde die Kalibrierungssoftware «LabSOCS» (Canberra-Eurisys) verwendet. Eine Summationskorrektur wurde, falls erforderlich, in der Auswertesoftware Genie 2000 V3.2 (Canberra-Eurisys) berücksichtigt. Die Energiekalibrierung wurde mit einem gemischten Radionuklidstandard (QCYB12064, AEA Technology QSA) in regelmässigen Abständen überprüft.

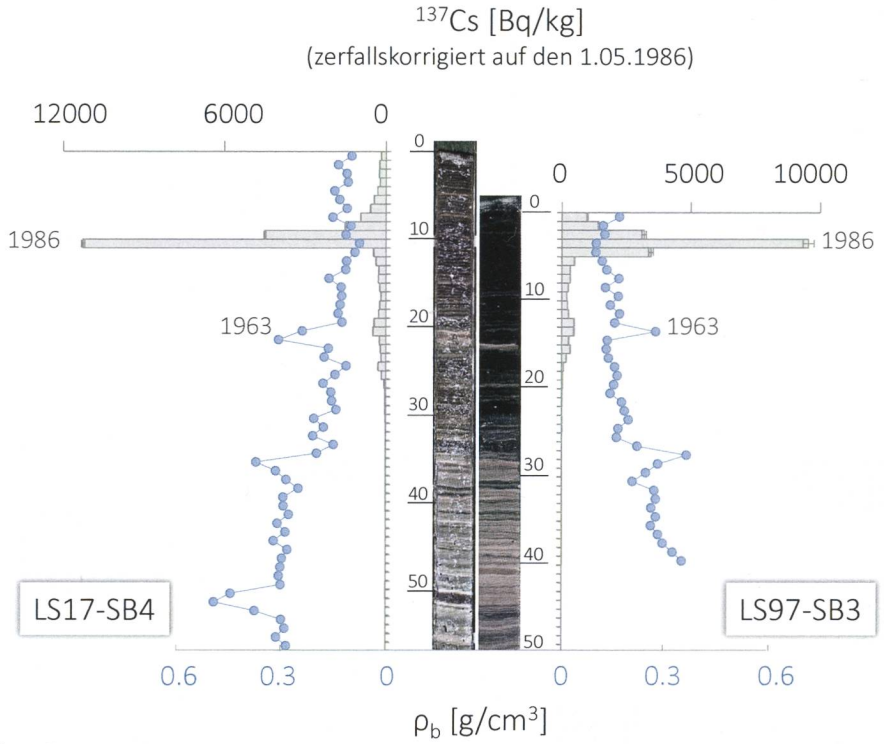
Tabelle 2:
Probennahmeparameter, Tschernobyl und Kernwaffen ^{137}Cs-Inventare und Sedimentations-geschwindigkeit (v_s) von zwei Sedimentkernen aus dem Südbecken des Luganersees.

Kern	LS97-SB3	LS17-SB4
Koordinaten CH1903	E 717470 N 88960	E 717828 N 88726
Probennahme Datum	13. Mai 1997	03. Mai 2017
Seetiefe, m	85	84
Kernlänge, cm	75	72
Tschernobyl [a] ^{137}Cs-Inventar, kBq/m²	22.1	21.9
Kernwaffen [b] ^{137}Cs-Inventar, kBq/m²	7.9	8.1
v_s, cm/Jahr:		
seit 1986	0.36	0.35
1963 - 1986	0.44	0.44

[a] Tschernobyl ^{137}Cs-Inventare sind auf den 1.Mai 1986 zerfallskorrigiert
[b] Kernwaffen ^{137}Cs-Inventare sind auf den 1. Juli 1963 zerfallskorrigiert

Tiefenverteilung von ^{137}Cs und von natürlichen Radionukliden im Sediment

In Figur 2 werden die zwei Sedimentkerne aus dem Luganersee, die 1997 (rechts, Core LS97-SB3) bzw. 2017 (links, Core LS17-SB4) entnommen wurden, verglichen. Auf den Fotos der beiden Sedimentkerne in der Mitte der Figur ist eine deutliche jährliche Laminierung, die bei beiden Kernen eine ähnliche Struktur hat, zu sehen. Die Tiefenverteilung der ^{137}Cs-Aktivitätskonzentration, die auf den 1.5.1986 zerfallskorrigiert ist, hat bei beiden Kernen ebenfalls eine sehr ähnliche Struktur: Deutlich sind zwei Maxima, die dem Fallout nach dem Tschernobyl-Unfall (1986) und dem Fallout nach den atmosphärischen Kernwaffentests (1963) zuzuordnen sind, zu erkennen. Für ^{137}Cs betragen die Tschernobyl-Inventare in den Kernen LS97-SB3 und LS17-SB4 ungefähr 22 kBq/m^2 (s. Tab. 2). Dies ist etwa genauso viel, wie ursprünglich durch den Fallout im Jahr 1986 auf der Oberfläche des Luganersees deponiert wurde.

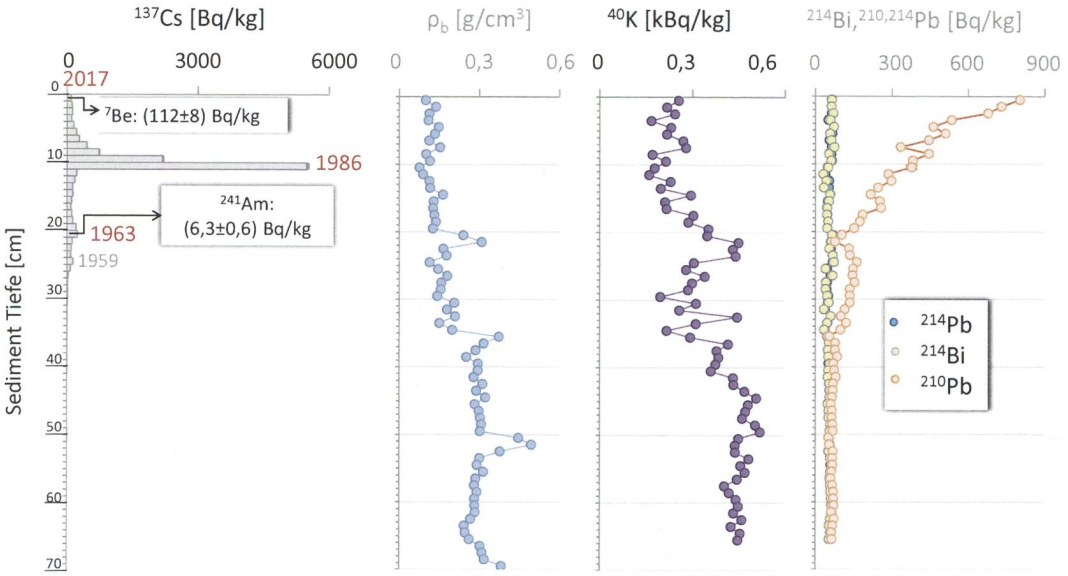


Figur 2:
Tiefenverteilungen von ^{137}Cs Aktivitätskonzentration (zerfallskorrigiert auf den 1. Mai. 1986) und Sedimentdichte pb (blau) sowie Fotos von zwei Sedimentkernen, entnommen aus dem Südbecken des Luganersees im Jahr 1997 (LS97-SB3) und Jahr 2017 (LS17-SB4).

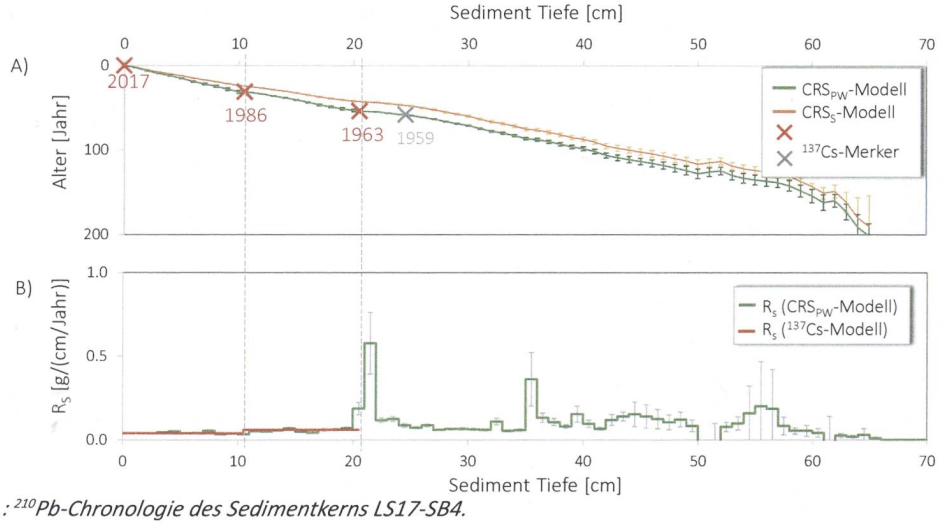
In beiden Sedimentkernen nimmt die Trockendichte auf Grund der Kompaktierung mit der Tiefe zu. Dabei gibt es ein paar Unregelmässigkeiten: Im Kern LS17-SB4 (Figur. 2, links) gibt es relativ grosse Dichtewerte in den Schichten 20 - 22 cm, 34 - 36 cm und 50 - 52 cm. Dies ist ebenfalls im Kern LS97-SB3 in den Schichten 13 - 14 cm und 27 - 28 cm (Figur 2, rechts) zu sehen. Solche Unregelmässigkeiten, die in Seen des Alpenvorlandes häufiger vorkommen, können mit einzelnen Ereignissen, z.B. heftigem Gewitterregen, erklärt werden, bei denen in kurzer Zeit zusätzliches, allochthones Material auf den Seegrund transportiert wird. Diese Ereignisse können als Mini-Turbidite bezeichnet werden (Putyrskaya et al., 2015). In den Luganersee-Sedimenten haben, verglichen mit benachbarten Schichten, die Schichten mit höheren Trockendichten auch eine höhere ^{40}K- und eine geringere ^{210}Pb-Aktivitätskonzentration (Figur 3).

In beiden untersuchten Sedimentkernen steigt die ^{40}K-Aktivitätskonzentration (Figur 3) bis zu einer Tiefe von ca. 40 cm an. Unterhalb von 40 cm bleibt die ^{40}K-Aktivitätskonzentration mehr oder weniger konstant und ist etwa doppelt so hoch wie in den oberen Schichten. Dies ist ein Indiz dafür, dass sich der Ursprung und/oder die Zusammensetzung des Sedimentes mit der Zeit geändert haben.

In Figur 3 sind ebenfalls die Tiefenverteilungen des gesamten (über die Wassersäule eingetragenen + im Sediment produzierten) und des «supported» (nur im Sediment produzierten) ^{210}Pb des Sedimentkerns LS17-SB4 gezeigt; Daten, die im Südbecken des Luganersees bisher noch nicht erhoben wurden. Nachdem die Sedimentproben gasdicht verpackt und drei Wochen gelagert wurden, sind die natürlichen Radionuklide ^{214}Pb und ^{214}Bi in radioaktiven Gleichgewicht mit der ^{238}U-Zerfallsreihe zwischen ^{226}Ra und ^{210}Pb. Deswegen sind dann ^{214}Pb und ^{214}Bi ein Mass für das im Sediment produzierte ^{210}Pb. Um das «unsupported» ^{210}Pb ($T_{1/2}$=22.3 Jahre), das für die Datierung benötigt wird, zu erhalten, wird das «supported» ^{210}Pb von gemessenen, gesamten ^{210}Pb subtrahiert. Weitere Details der ^{210}Pb-Datierungsmethode sind in Putyrskaya et al. (2015) zu finden.



Figur 3 :
Sedimentkern LS17-SB4 aus dem Südbecken des Luganer Sees (von links nach rechts): Tiefenverteilungen von ^{137}Cs, Sedimentdichte pb, ^{40}K, gesamtes ^{210}Pb, ^{214}Pb, und ^{214}Bi. Die Aktivitätskonzentration aller Radionuklide ist auf den 3. Mai 2017 (Zeitpunkt der Probenahme) zerfallskorrigiert. Die ^{137}Cs-Maxima sind den Fallouts nach dem Unfall von Tschernobyl (1986) und nach den atmosphärischen Kernwaffentests (1963 und 1959) zuzuordnen.



Figur 4 : ^{210}Pb-Chronologie des Sedimentkerns LS17-SB4.
A) Vergleich der ^{210}Pb-Tiefen-Altersrelationen nach dem einfachen (CRSS, orange) und dem «piecewise Constant Rate Supply»-Modell (CRSPW, grün). Beim CRS_{PW}-Modell wird angenommen, dass der ^{210}Pb-Fluss in das Sediment in verschiedenen Zeitintervallen, die durch bekannte ^{137}Cs Peaks (1986 und 1963, rot) getrennt sind, konstant ist. Ein zusätzlicher ^{137}Cs Peak (1959) der in der ^{137}Cs-Tiefenverteilung (s. Fig. 3) zu sehen ist, wurde nicht als Zwangsbedingung für das ^{210}Pb Modell verwendet. B) Massen-Sedimentationsrate R_s in g/(cm^2 Jahr), abgeleitet vom CRSPW ^{210}Pb- (grün) Modell.

Datierung der Sedimente des Luganersees

Die Erstellung einer Alters-Tiefenrelation für Sedimente des Luganersees basiert auf der Identifikation von ^{137}Cs-Depositionsmaxima. Die Maxima der ^{137}Cs-Aktivitätskonzentration im Sedimentkern LS17-SB4 sind dem Fallout nach dem Tschernobyl-Unfall 1986 und den atmosphärischen Kernwaffentests in den 1960ern mit einem Maximum im Jahr 1963 zuzuordnen (s. Figur 3). Die Zuordnung des tieferen Maximums zum globalen Fallout der Kernwaffentests wurde durch die Anwesenheit von ^{241}Am bestätigt. Zusätzlich wurde die Aktivitätskonzentration von ^{7}Be ($T_{1/2}$=54 Tage), das in der oberen Atmosphäre produziert wird, in der obersten

0 - 1 cm Schicht nachgewiesen, was zeigt, dass die oberste Sedimentschicht bei der Probennahme nicht verlorengegangen ist. Damit kann die Oberfläche des Sedimentkerns LS17-SB4 dem Probennahmedatum (3.5.2017) zugeordnet werden. Dies entspricht nun dem Alter von 0 Jahre.

Ein alternativer Ansatz zur Altersbestimmung von Sedimenten basiert auf dem piecewise Constant Rate Supply (CRSPW) des «unsupported» ^{210}Pb (Appleby, 2001). Im Gegensatz zum einfachen CRS-Modell (CRSS) (Appleby and Oldfield, 1978), bei dem der ^{210}Pb-Fluss auf Dauer als konstant angenommen wird, ist beim piecewise CRS-Modell (CRSPW) der ^{210}Pb-Fluss nur zwischen bekannten Zeitmarkern, z. B. den ^{137}Cs Maxima von 1986 und 1963, konstant. Um beim Sedimentkern LS17-SB4 eine exakte Übereinstimmung zwischen den ^{137}Cs-Zeitmarkern und der kontinuierlichen ^{210}Pb-Zeitskala zu erreichen, müssen die ^{210}Pb-Flüsse 290, 360 und 490 Bq/(m^2 Jahr) in den Zeitintervallen 1986 - 2017, 1963 - 1986, und vor 1963 betragen (Tabelle 3).

Tabelle 3:
Durchschnittliche Massensedimentationsraten (R_s), und Pb-Flüsse (ϕ(^{210}Pb) im Sedimentkerns LS17-SB4, Luganersee. ^{210}Pb-Berechnung mit dem CRS$_{pw}$-Modell

Position	Zeit	R_s in g/(cm^2 Jahr)	ϕ(^{210}Pb) Bq/m^2 Jahr
LS17-SB4	1986 - 2017	0.041 ± 0,003	290 ± 11
	1963 - 1986	0.070 ± 0,009	360 ± 33
	vor 1963	0.083 ± 0,066	490 ± 45

Figur 4 zeigt, dass, wenn der ^{210}Pb-Fluss nicht konstant ist, das CRSPW-Modell, das ja Zwangsbedingungen durch die ^{137}Cs-Zeitmarker beinhaltet, eine bessere Alters-Tiefenrelation ergibt als das einfache CRSS-Modell. Im Fall des Sedimentkerns LS17-SB4 gibt es die Tendenz, dass das einfache CRSS-Modell den Sedimentkern jünger macht.

Sedimentationsraten

Nimmt man an, dass die Position des ^{137}Cs-Tschernobyl-Peaks dem 1.5.1986 entspricht, kann man für das Zeitintervall 1986 - 2017 sehr geringe Sedimentationsgeschwindigkeiten von $v_s \approx 0.35$ cm/Jahr direkt aus der ^{137}Cs-Tiefenverteilung beider Kernen entnehmen (Tab. 1). Die Sedimentations-geschwindigkeit ist in den Jahren 1963 - 1986 generell um einen Faktor von ≈ 1.2 größer. Dies liegt sicherlich an der seit den 1940er Jahren zunehmenden Eutrophierung, die mit Beginn der 1990er Jahre wieder umgekehrt wurde.

In Figur 4B ist die variable Massen-Sedimentationsrate RS des Sedimentkerns LS17-SB4 zu sehen, die mit dem ^{210}Pb-CRS$_{PW}$-Model berechnet wurde. Diese variable Massen-Sedimentationsrate erzählt von den Sedimentationsprozessen im Luganersee der letzten gut 100 Jahre (Davor steigt die statistische Unsicherheit schnell an). Die höheren Sedimentationsraten in den Schichten 20 - 22 cm und 34 - 36 cm des Sedimentkerns LS17-SB4 könnten z. B. durch Mini-Turbidite, die zusätzliches Material zum Seegrund transportiert haben, verursacht sein (s. oben).

Danksagung

Wir danken Stefano Beatrizotti und Fabio Lepori von SUPSI (Lugano) für die Organisation und Durchführung der Probennahme sowie Stamatina Makri von der Universität Bern (Geographisches Institut) für das Halbieren und Fotografieren der Sedimentkerne.

Referenzen

- Appleby, P.G., 2001. Chronostratigraphic technique in recent sediments. In: W.L. Last and J.P. Smol (Eds.), Tracking Environmental Change Using Lake Sediments, Volume 1: Basin Analysis, Coring, and Chronological Techniques. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands, pp. 171–203.
- Appleby, P.G., Oldfield, F., 1978. The calculation of 210Pb dates assuming a constant rate of supply of unsupported 210Pb to the sediment. Catena 5, 1–8.
- Barbieri, A., and Mosello, R., 1992. Chemistry and trophic evolution of Lake Lugano in relation to nutrient budget. Aquatic Sciences 54, 3/4, 219–237.
- Dominik, J., Span, D., 1992. The fate of 137Cs in Lake Lugano. Aquatic Sciences, 54, 3/4, 238–254.
- Istituto scienze della Terra (IST-SUPSI), 2012. Ricerche sull›evoluzione del Lago di Lugano – aspetti limnologici. Programma quinquennale 2008-2012. Campagne 2011. Ed. Commissione Internazionale per la Protezione delle Acque Italo-Svizzere: 106 pp.
- Konoplev, A., Kaminski, S., Klemt, E., Konopleva, I., Miller, R., Zibold, G., 2002. Comparative study of 137Cs partitioning between solid and liquid phases in Lakes Constance, Lugano and Vorsee. J. Environ. Radioact. 58, 1–11.
- Putyrskaya, V., Klemt, E., Röllin, S., 2009. Migration of 137Cs in tributaries, lake water and sediment of Lago Maggiore (Italy, Switzerland) – analysis and comparison with Lago di Lugano and other lakes. J. Environ. Radioact. 100, 35–48.
- Putyrskaya, V., Klemt, E., Röllin, S., Astner, M., Sahli, H., 2015. Dating of sediments from four Swiss prealpine lakes with 210Pb determined by gamma-spectrometry: progress and problems. J. Environ. Radioact. 145, 78–94.
- Santschi, P.H., Bollhalder, S., Zingg, S., Lück, A., Farrenhothen, A., 1990. The self-cleaning capacity of surface waters after radioactive fallout. Evidence from European waters after Chernobyl, 1986 – 1988. Envorin. Sci. Technol., 24, 519–527.
- Ufficio Protezione e Depurazione Acque (UPDA), 2006. Ricerche sull›evoluzione del Lago di Lugano- aspetti limnologici. Programma quinquennale 2003-2007. Campagne 2004 e 2005. Ed. Commissione Internazionale per la Protezione delle Acque Italo-Svizzere: 98 pp.
- Zibold, G., Kaminski, S., Klemt, E., Smith, J.T., 2002. Time-dependency of the 137Cs activity concentration in freshwater lakes, measurement and prediction. Radioprotection-Collogues, 37, 75–80.

4.9
Radioactivité du sol et de l'herbe

P-A. Pittet, P. Froidevaux, F. Barraud, F. Bochud
Institut de radiophysique, CHUV, Grand Pré 1, 1007 Lausanne

S. Estier, P. Steinmann, A. Gurtner
Section de surveillance de la radioactivité, URA / OFSP, 3003 Berne

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

M. Burger, S. Röllin, R. Holzer, H. Sahli, M. Astner
Labor Spiez, Office fédéral de la protection de la population, 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, et mesuré leurs niveaux d'activité. Dans certains cas, des mesures de spectrométrie gamma in-situ ont également été réalisées. Les résultats montrent que l'activité artificielle dans le sol et l'herbe est restée faible et est principalement due aux retombées des essais d'armes atomiques réalisées en atmosphère jusque dans les années soixante ainsi qu'aux retombées de l'accident de Tchernobyl.

Une attention particulière a été apportée au site de la centrale de Mühleberg, dont le fonctionnement sera stoppé à fin 2019 avant d'être ensuite démantelée. Les prélèvements ont été effectués sur sept sites et ont fait l'objet d'analyses indépendantes pour le strontium-90 (^{90}Sr), le plutonium et l'américium. Cela permettra de vérifier qu'aucune contamination de l'environnement n'intervienne lors des opérations de démantèlement.

Introduction

Le ^{90}Sr et le ^{137}Cs ont été largement dispersés dans l'environnement suite aux essais nucléaires des années cinquante et soixante ainsi que lors de l'accident de Tchernobyl en 1986. Ces radioéléments sont les deux principaux produits de fission à durée de vie moyenne (environ 30 ans) et ont un comportement chimique proche de deux éléments impliqués dans les cycles vivants, le calcium (pour le strontium) et le potassium (pour le césium). Par exemple, le ^{90}Sr est facilement transféré du sol aux plantes, puis tout au long de la chaine alimentaire, et pourra finalement se trouver dans les tissus osseux et les dents [1]. Le ^{137}Cs va aussi passer du sol aux végétaux et rejoindre la chaine alimentaire. Au contraire du ^{90}Sr, il et se retrouvera principalement dans les tissus musculaires des vertébrés, mais sera éliminé des organismes beaucoup plus rapidement que le strontium.

Le transfert d'un radioélément entre deux compartiments de l'environnement, par exemple du sol à l'herbe, peut être caractérisé par le facteur de transfert. Ce paramètre est cependant dépendant de plusieurs facteurs, tels que la nature des compartiments (type de sol et espèce de la plante), la concentration des autres éléments compétiteurs (Ca et K) ainsi que la progression de la croissance, cette dernière étant notablement affectées par les conditions météorologiques (température, pluviosité) [2,3,4].

Le démantèlement de la centrale nucléaire de Mühleberg sera opéré après sa mise à l'arrêt définitif qui est planifié au 20 décembre 2019. Après l'évacuation des éléments combustibles vers le centre de stockage intermédiaire de Würenlingen (Zwilag), les installations ayant été en contact avec la radioactivité seront ensuite démontées, les matériaux décontaminés ou conditionnés avant leur entreposage. Pour contrôler l'absence de contamination de l'environnement durant ce processus, le programme de surveillance a été élargi. Jusqu'à l'année 2016, la radioactivité de l'environnement immédiat de la centrale était effectuée par l'analyse d'un mélange de sols et d'herbe collectés sur 4 sites. En 2017, des échantillons ont été prélevés sur 3 nouveaux sites et chacun des échantillons a été soumis à une analyse indépendante du ^{90}Sr, du plutonium et de l'américium, afin de caractériser l'état initial des sols à proximité de la centrale. Afin de pouvoir comparer ces résultats avec ceux des années précédentes, deux valeurs moyennes ont été calculées, la première pour les quatre sites usuels et la seconde pour les sept sites de collecte.

Résultats et discussion

Les résultats des mesures pour les sols sont présentés dans le Tableau 1. La présence du ^{90}Sr et des actinides Pu et Am est principalement due aux retombées des essais nucléaires atmosphériques des années cinquante et soixante. Cette déposition ayant été amenée au sol par les précipitations, les régions connaissant une pluviosité plus importante montrent les activités les plus élevées. Ainsi, les activités en ^{90}Sr sont dans une gamme de 0.2 à 1 Bq/kg sur le plateau suisse et toutes supérieures à 1 Bq/kg dans les autres régions (Tessin, arc alpin, plateau de Diesse). La même tendance est observée pour les actinides, avec des activités inférieures à 0.4 Bq/kg pour le plutonium et à 0.15 Bq/kg pour l'américium sur le plateau suisse, alors que ces valeurs augmentent avec l'altitude, le point de prélèvement le plus élevé (alpage de l'Allmendhubel) montrant les activités les plus importantes.

La situation est plus complexe dans le cas du ^{137}Cs, le passage du nuage radioactif émis lors de l'accident de Tchernobyl en 1986 ayant provoqué une déposition supplémentaire dont la répartition géographique n'est pas uniforme. De fortes précipitations ayant eu lieu au Tessin lors du passage du nuage, c'est dans cette région que les dépôts les plus importants ont eu lieu [5] et où sont mesurées actuellement les plus fortes activités (> 200 Bq/kg). La région du lac de Constance a également été touchée, mais dans une moindre mesure, ainsi que l'atteste l'activité résiduelle de 47 Bq/kg observée à Arenenberg. Pour le ^{60}Co et le ^{134}Cs, deux radioéléments produits artificiellement dans les réacteurs nucléaires, aucune activité supérieure à la limite de détection n'a été observée. Enfin, c'est pour le ^{40}K, un des trois isotopes constituant le potassium naturel, que l'activité observée est la plus élevée.

Les mesures de radioactivité dans l'herbe sont rapportées dans le Tableau 2. On constate que la radioactivité de l'herbe est dominée par le ^{40}K, suivi du ^{7}Be, qui est formé par l'action du rayonnement cosmique sur les couches supérieures de l'atmosphère. Les activités en ^{60}Co et ^{134}Cs sont restés inférieures à la limite de détection. Pour le ^{137}Cs, les valeurs les plus élevées sont observées au Tessin, où les sols montrent également l'activité la plus élevée. L'activité en ^{90}Sr varie fortement selon la période de coupe pour un même site de prélèvement. Sur le plateau, le plus grand changement est observé à Posieux (0.5 à 3.1 Bq/kg MS), les valeurs observées pour les autres sites de plaine, y compris à proximité des centrales, étant comprises dans cette gamme. Ces différences observées dans l'activité en ^{90}Sr de l'herbe lors des coupes de printemps et d'automne a été déjà remarquée et son origine attribuée au métabolisme des végétaux qui influence de manière importante l'incorporation de certains éléments (Ca, K) et radioéléments (^{137}Cs et ^{90}Sr) en fonction des périodes de croissance végétale [4].

Les résultats obtenus lors des analyses distinctes des échantillons des sept sites de collecte autour de la centrale de Mühleberg sont présentés dans le tableau 3. Ces sites sont tous distants de moins de 2 km de la centrale mais les activités mesurées pour les sols varient d'un facteur 2 pour le ^{90}Sr et de plus de 5 pour le plutonium ou l'américium. Les valeurs les plus basses sont obtenues pour Niederruntingen, sur la rive de l'Aar, et les plus élevées Oberruntingen, situé 100 m plus haut sur une colline dominant le cours de la rivière. Ces différences illustrent la disparité du dépôt consécutif aux essais nucléaires dû au relief local. L'activité en ^{90}Sr des herbes est du niveau de celle observée pour les autres échantillons collectés sur le plateau suisse (Tableau 2).

Tableau 1:
Activités en ^{40}K, ^{60}Co, ^{134}Cs, ^{137}Cs, ^{90}Sr, Pu et Am dans des sols (0-5 cm) prélevés en Suisse en 2017 (Bq/kg matière sèche, fraction < 2 mm).

Canton / Lieu	n	^{40}K	^{60}Co	^{134}Cs	^{137}Cs	^{90}Sr	$^{239+240}Pu$	^{241}Am
AG (Voisinage KKB)	2	429 - 484	< 0.9	< 0.6	16.5 - 19.1	0.3 ± 0.1	0.181 ± 0.019	0.076 ± 0.010
AG (KKB in-situ)	2	342 - 368			10.0 - 12.2			
AG (PSI)	1	391 ± 42	< 0.6	< 0.6	10.1 ± 1.1	0.7 ± 0.1	0.142 ± 0.009	0.064 ± 0.008
AG (PSI in-situ)	1	313 ± 33			6.9 ± 0.9			
AG (ZWILAG)	1	415 ± 46	< 1.0	< 0.8	9.5 ± 1.3	1.0 ± 0.1	0.158 ± 0.010	0.051 ± 0.007
AG (ZWILAG in-situ)	1	369 ± 38			7.5 ± 0.9			
AG (Vois. KKL)	4	376 - 435	< 0.7	< 0.6	9.8 - 11.2	0.6 ± 0.1	0.199 ± 0.012	0.078 ± 0.009
AG (KKL in-situ)	4	203 - 377			4.9 - 9.7			
AG/SO (Vois. KKG)	4	396 - 430	< 1.0	< 0.8	9.4 - 16.3	0.9 ± 0.1	0.270 ± 0.014	0.115 ± 0.011
AG/SO (KKG in-situ)	4	288 - 311			5.7 - 10.7			
BE (Voisinage KKM)	4	438 - 811	< 0.8	< 0.7	4.5 - 13.6	0.6 ± 0.1	0.155 ± 0.011	0.063 ± 0.006
BE (KKM in-situ)	4	403 - 666			3.3 - 11.1			
BE (Voisinage KKM + dem)[1]	13	387 - 811	< 0.9	< 0.8	8.9 - 10.6	0.7 ± 0.1	0.179 ± 0.013	0.068 ± 0.007
BE (KKM in-situ + dem) [1]	7	403 - 666			4.1 - 10.0			
BE (Mürren) [2]	1	511 ± 22	< 0.2	< 0.3	28.2 ± 1.8	2.64 ± 0.38 2.7 ± 0.20	0.96 ± 0.14 0.745 ± 0.037	0.44 ± 0.10 0.301 ± 0.022
BE (Gimmelwald)	1	292 ± 13	< 0.2	< 0.3	13.0 ± 1.8	3.04 ± 0.42 3.0 ± 0.30	0.52 ± 0.14 0.526 ± 0.032	0.28 ± 0.10 0.144 ± 0.011
BE (Fahrni) [3]	1	474 ± 32	< 0.2	< 0.3	14.4 ± 2.0	2.88 ± 0.41 2.4 ± 0.30	0.52 ± 0.10 0.502 ± 0.027	0.26 ± 0.06 0.180 ± 0.015
BE (Diesse/Jura)	1	459 ± 31	< 0.2	< 0.3	14.3 ± 2.0	1.24 ± 0.20 1.2 ± 0.20	0.45 ± 0.10 0.417 ± 0.030	0.22 ± 0.04 0.179 ± 0.013
BL (Sissach)	1	497 ± 16	< 0.1	< 0.1	15.7 ± 0.5	3.3 ± 0.7		
FR (Posieux)	1	444 ± 48	< 0.8	< 0.7	5.0 ± 0.8	0.6 ± 0.1	0.164 ± 0.010	0.061 ± 0.007
FR (Posieux, in-situ)	1	378 ± 39			3.1 ± 0.6			
GE (Vois. CERN)	5	431 - 505	< 0.7	< 0.7	2.8 - 10.0	0.2 ± 0.1	0.092 ± 0.008	0.026 ± 0.004
GE (CERN in-situ)	5	337 - 394			2.9 - 7.1			
TG (Güttingen)	1	356 ± 38	< 0.6	< 0.6	20.0 ± 2.2	0.6 ± 0.1	0.175 ± 0.011	0.050 ± 0.007
TG (Güttingen in-situ)	1	283 ± 30			13.1 ± 1.5			
TG (Arenenberg)	1	483 ± 16	< 0.6	< 0.7	46.8 ± 0.8	0.6 ± 0.1	0.173 ± 0.012	0.054 ± 0.006
TI (Centovalli)	1	559 ± 48	< 0.1	< 0.1	183 ± 19.1	7.0 ± 1.4		
TI (Leventina)	1	542 ± 46	< 0.1	< 0.1	23.4 ± 2.5	11.3 ± 2.3		
TI (Malcantone)	1	579 ± 48	< 0.1	< 0.1	75.7 ± 7.9	7.3 ± 1.5		
TI (Stabio)	1	609 ± 64	< 0.8	< 0.6	224 ± 23.0	1.1 ± 0.1	0.351 ± 0.018	0.115 ± 0.010
TI (Stabio- In situ)	1	493 ± 51			129 ± 13.0			
TI (Cadenazzo)	1	695 ± 74	< 0.9	< 0.8	43.4 ± 4.5	1.4 ± 0.1	0.162 ± 0.011	0.044 ± 0.006
TI (Cadenazzo- In-situ)	1	562 ± 58			45.5 ± 4.7			
Ti (Caslano)	1	610 ± 65	< 1.0	< 0.8	75.6 ± 7.7	1.0 ± 0.1	0.084 ± 0.007 0.150 ± 0.012	0.067 ± 0.007
Ti (Caslano- in-situ)	1	525 ± 54			27.9 ± 2.9			

n = nombre d'échantillons; [1] avec 3 nouveaux sites de collecte d'échantillons pour la surveillance du démantèlement; [2] alpage (Allmendhubel, 1'900 m); [3] bord des alpes (850 m).

Remarque: Les résultats des mesures in situ sont représentatifs de l'activité moyenne du sol sur une surface d'environ 300 m², alors que les mesures en laboratoire permettent la détermination précise de l'activité du sol au point de prélèvement.

Tableau 2 :
Activité du ^{7}Be, ^{40}K, ^{60}Co, ^{134}Cs, ^{137}Cs et ^{90}Sr dans des échantillons d'herbe prélevés en Suisse en 2017 lors de deux saisons de coupe (Bq/kg de matière sèche). Pour les échantillons uniques, la valeur et l'incertitude sont indiquées (a±b). Si plusieurs échantillons ont été mesurés, la gamme des valeurs est donnée (a-b).

Canton/Lieu	n	^{7}Be	^{40}K	^{60}Co	^{134}Cs	^{137}Cs	^{90}Sr
AG (Voisinage KKB)	4	126 - 332	498 - 928	< 1.0	< 0.8	0.4 - < 1.0	0.6 ± 0.1[4)] 0.8 ± 0.1[5)]
AG (PSI-ZWILAG)	2	182 - 440	725 - 784	< 1.3	< 1.1	< 0.9 - 1.0	0.8 ± 0.1[4)] 1.1 ± 0.1[5)]
AG (PSI-OASE)	2	194 - 215	472 - 627	< 1.2	< 1.1	< 1.0 - 1.0	1.3 ± 0.1[4)] 0.9 ± 0.1[5)]
AG (Voisinage KKL)	8	100 - 116	397 - 1'575	< 1.3	< 1.1	< 0.7 - 3.3	0.6 ± 0.1[4)] 1.1 ± 0.1[5)]
AG/SO (Voisinage KKG)	8	36 - 512	623 - 1'072	< 1.4	< 0.9	< 0.7 - 0.9	0.5 ± 0.1[4)] 1.1 ± 0.1[5)]
BE (Voisinage KKM)	8	33 - 257	568 - 1'657	< 1.1	< 1.0	< 0.8 - 1.0	0.8 ± 0.1[4)] 1.1 ± 0.1[5)]
BE (Vois KKM + Dem)	11	33 - 257	568 - 1'657	< 1.2	< 1.0	< 0.8 - 1.0	1.2 ± 0.1[4)]
BE (Mürren)[2)]	1	148 ± 22	720 ± 64	< 0.4	< 0.3	< 0.2	3.62 ± 0.4[4)]
BE (Lauterbrunnen)	1	12.7 ± 2.4	624 ± 54	< 0.4	< 0.3	1.27 ± 0.2	3.04 ± 0.4
BE (Gimmelwald)	1	192 ± 30	709 ± 64	< 0.4	< 0.4	1.79 ± 0.13	2.62 ± 0.3[4)]
BE (Fahrni)[3)]	1	164 ± 26[4)] 354 ± 54[5)]	839 ± 76[4)] 846 ± 74[5)]	< 0.4[4)] < 0.4[5)]	< 0.3[4)] < 0.3[5)]	< 0.3[4)] 0.3 ± 0.10[5)]	1.00 ± 0.1[4)] 3.54 ± 0.5[5)]
BE (Diesse/Jura)	1	66 ± 10[4)] 324 ± 50[5)]	1'210 ± 106[4)] 1'130 ± 100[5)]	< 0.4[4)] < 0.4[5)]	< 0.3[4)] < 0.4[5)]	< 0.3[4)] < 0.4[5)]	0.68 ± 0.1[4)] 1.24 ± 0.2[5)]
BL (Sissach)	1	62.9 ± 3.5	373 ± 18	< 0.2	< 0.1	< 0.1	1.2 ± 0.2
GE (Voisinage CERN)	5	303 - 387	525 - 758	< 1.2	< 0.9	< 0.9 - 1.1	0.9 ± 0.1[5)]
FR (Posieux)	2	51 - 114	1'075 - 1'666	< 1.4	< 0.9	< 0.9	0.5 ± 0.1[4)] 3.1 ± 0.3[5)]
TG (Güttingen)	2	49 - 236	1'066 - 1'135	< 1.5	< 1.2	<1.2 - 1.7	0.5 ± 0.1[4)] 0.9 ± 0.1[5)]
TG (Arenenberg)	1	68 ± 7	771 ± 41	< 1.2	< 1.1	1.2 ± 0.6	0.7 ± 0.1
TI (Centovalli)	1	198 ± 24	997 ± 91	< 0.4	< 0.3	9.1 ± 1.5	8.3 ± 1.7
TI (Leventina)	1	95 ± 14	936 ± 84	< 0.4	< 0.3	1.4 ± 0.8	
TI (Malcantone)	1	270 ± 34	1'050 ± 100	< 0.3	< 0.2	20.6 ± 2.8	7.0 ± 1.4
TI (Cadenazzo)	2	110 - 594	1'028 - 1'058	< 1.5	< 1.3	3.9 - 6.7	6.8 ± 0.6[4)] 4.3 ± 0.4[5)]
Ti (Stabio)	1	234 ± 28	966 ± 106	< 1.9	< 1.4	2.1 ± 0.8	3.2 ± 0.3[5)]

n = nombre d'échantillons; [1)] avec 3 nouveaux sites de collecte d'échantillons pour la surveillance du démantèlement; [2)] alpage (Allmendhubel); [3)] bord des alpes, 850 m [4)]; coupe de printemps; [5)] coupe d'automne.

Tableau 3:
Activités en ^{90}Sr, Pu et Am dans des sols (0 - 5 cm, fraction < 2 mm) et en ^{90}Sr dans les herbes, prélevés en 2017 sur sept sites autour de Mühleberg (Bq/kg matière sèche).

Site	^{90}Sr (sol)	$^{239+240}Pu$	^{241}Am	^{90}Sr(herbe)
Rewag	0.63 ± 0.10	0.194 ± 0.012	0.079 ± 0.008	0.62 ± 0.09
Salvisberg	0.68 ± 0.09	0.206 ± 0.013	0.085 ± 0.007	1.47 ± 0.15
Ufem Horn	0.83 ± 0.12	0.176 ± 0.012	0.071 ± 0.007	1.39 ± 0.21
Niederruntigen	0.39 ± 0.08	0.046 ± 0.005	0.015 ± 0.003	0.89 ± 0.11
Oberruntigen	0.83 ± 0.10	0.305 ± 0.017	0.092 ± 0.011	1.21 ± 0.14
Fuchsenried	0.83 ± 0.09	0.182 ± 0.011 0.174 ± 0.021	0.069 ± 0.006	1.28 ± 0.16
Clôture KKW	0.55 ± 0.08	0.152 ± 0.009	0.064 ± 0.006	1.73 ± 0.18
Moyenne pour les 7 sites	**0.68 ± 0.09**	**0.179 ± 0.013**	**0.068 ± 0.007**	**1.23 ± 0.15**

Conclusions

Les mesures de ^{90}Sr et de ^{137}Cs dans les sols et les herbes en Suisse en 2017 présentent des activités similaires aux 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 en ^{90}Sr et en ^{137}Cs supérieures à celles mesurées sur les sites de plaine, centrales nucléaires incluses. Un marquage assez important en ^{137}Cs dans des échantillons de sol et d'herbe de certains sites de prélèvement du Tessin et de Suisse orientale est encore observé plus de trente ans après l'accident de Tchernobyl.

La caractérisation approfondie des points de prélèvements autour de la centrale de Mühleberg a été réalisée et pourra être utilisée lors du contrôle effectué après le démantèlement de la centrale.

Références

[1] voir chapitre «Mesures de ^{90}Sr, de ^{210}Po et de ^{226}Ra dans les vertèbres et de ^{90}Sr dans les dents de lait».

[2] Ehlken, S., Kirchner, G. Environmental processes affecting plant root uptake of radioactive trace elements and variability of transfer factor data: a review. J Environ Radioact. 2002, 58, 97–112.

[3] Guillaume, T. et al., Disparity in ^{90}Sr and ^{137}Cs uptake in Alpine plants: phylogenetic effect and Ca and K availability. Plant Soil 2012, 355, 29–39.

[4] Froidevaux, P. et al., chap. 4.6 de «Radioactivité de l'environnement et doses de rayonnement en Suisse», 2005, OFSP.

[5] OFSP, 2006: «20 ans après l'accident nucléaire de Tchernobyl : les conséquences en Suisse».