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: - (2021)

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: 19.11.2025

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



Environnement

Umwelt

Aérosols et précipitations

URAnet Aero

Surveillance de l'air avec des avions militaires

Radioactivité dans les systèmes aquatiques

URAnet Aqua

Tritium dans l'Aar

Sols et herbes

Aerosol und Niederschlag

URAnet Aero

Überwachung der Luft mit Militärflugzeugen

Aquatische System

URAnet Aqua

Tritium in der Aare

Boden und Gras

2021

Radioaktivität in der Luft (Aerosol) und im Niederschlag

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

Zusammenfassung

Die Radioaktivität in der Luft und im Niederschlag zeigte 2021 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. Im Niederschlag wurden 2021 mit Ausnahme von Tritium und sporadischen Spuren von ¹³⁷Cs keine künstlichen Radionuklide nachgewiesen. Die relativ trockenen Monate März, April und Oktober haben zu etwas höheren Konzentrationen von ⁷Be und ¹³⁷Cs in der Luft geführt. Im Tessin wurde – wie üblich – auch in den Wintermonaten etwas mehr ¹³⁷Cs in der Luft gemessen. In der unmittelbaren Umgebung von Tritium-verarbeitenden Industriebetrieben erreichten die ³H Konzentrationen im Regenwasser maximal 3.9 % des Immissionsgrenzwertes der StSV für öffentlich zugängliche Gewässer.

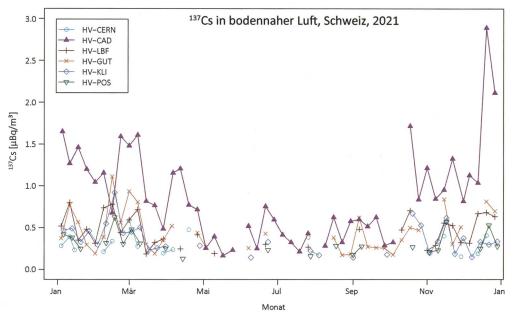
Luft

Probenahme und Messung

Das BAG sammelt Aerosolpartikel mit Hochvolumen-Luftfilter (High-Volume-Sampler, HVS) an 6 Stationen in der Schweiz (Tabelle 1). Bei den HVS Stationen werden fortlaufend, je nach Station, 80'000 m³/Woche bis 150'000 m³/Woche Aussenluft gefiltert. 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 zeitnah veröffentlicht: www. radenviro.ch, www.bag.admin.ch/hvs und neu auch map. geo.admin.ch (Karte «Radioaktivität in der Atmosphäre» suchen). 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 können. Die Erfahrung, etwa im Jahr 2011 nach dem Reaktorunfall in Fukushima oder beim Ereignis mit 106Ru im Herbst 2017, hat gezeigt, dass für eine glaubwürdige Information der Bevölkerung und als Grundlage für die Behörden 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.

Künstliche Radioisotope in der Luft

Das einzige regelmässig nachgewiesene künstliche Radioisotop in der Luft war wie in den Vorjahren Cäsium-137 (137Cs). 137Cs hat eine Halbwertszeit von 30 Jahren und



Figur 1 : 137Cs Konzentrationen in der Luft für das Jahr 2021.

stammt zur Hauptsache immer noch vom Reaktorunfall in Tschernobyl im Jahr 1986. Die gemessenen Konzentrationen sind insgesamt sehr gering (fast immer kleiner als 1 µBg/m³). Etwas höhere Werte (bis knapp 3 μBq/m³) wurden 2021 wie jedes Jahr in den Wintermonaten bei der Station Cadenazzo gemessen (siehe Figur 1). Zu den erhöhten 137Cs Konzentrationen im Winterhalbjahr tragen das Aufwirbeln von Bodenpartikel in der vegetationsarmen Zeit sowie das Verbrennen von leicht mit ¹³⁷Cs kontaminiertem Holz zum Heizen bei. Die stärkere Kontamination der Böden im Kanton Tessin nach Tschernobyl erklärt die meist etwas höheren Werte der Station Cadenazzo. Geringfügig höhere ¹³⁷Cs Konzentrationen (bis 1.5 μBq/m³) wurden zudem in den relativ trockenen Monaten Februar-April (Alpensüdseite besonders März; Klimabulletin Jahr 2021 – Meteoschweiz) gemessen. Auch die höchsten gemessenen Werte sind mehr als eine Million Mal tiefer als der Immissionsgrenzwert für ¹³⁷Cs von 8.5 Bg/m³.

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 den Stationen HVS Klingnau (in rund 6 km Entfernung vom PSI) und HVS CERN konnten im Berichtsjahr insgesamt 11 Mal Spuren von 24 Na nachgewiesen werden (41 und 159 μ Bq/m³). Aufgrund der kurzen Halbwertszeit von 24 Na kann die Nachweisgrenze variieren und lag 2021 bei rund 4%

*Tabelle 1:*HVS-Stationen des BAG

The stationer des site							
Station	H.ü.M.	Gemeinde	Umgebung	Bemerkung			
CAD	203 m	Cadenazzo TI	Landwirtschaft	Referenzstation für die Alpensüdseite (Agroscope Forschungsstation)			
CERN	428 m	Meyrin GE	Landwirtschaft, Stadtnähe, 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	Referenzstation für das westliche Mittelland (Agroscope Forschungsstation)			

der Messungen bei > 1'000 μBq/m³. Die gemessenen ²⁴Na Werte und die Nachweisgrenzen insgesamt liegen allerdings stets deutlich unterhalb des Immissionsgrenzwertes von 100 Bq/m³. Geringste Spuren von Jod-131 (131) tauchten 2021 in 12 HVS Filtern der Station beim CERN auf (Maximum 6.5 μBq/m³). Ursache ist das Auswechseln von bestrahlten Targets bei der Installation ISOLDE am CERN. Bei diesen Arbeiten können kleinste Mengen von Radioisotopen (wie z.B. ¹³¹I) in die Umwelt gelangen. Gesundheitlich sind diese Konzentrationen – eine Million Mal tiefer als der Immissionsgrenzwert – irrelevant. Plutonium-Isotope wurden 2021 an zwei Sammelproben von HVS-Filtern der Station Liebefeld bestimmt - eine Probe mit Filtern vom Winter (Nov. 2020 - April 2021) und eine Probe mit Filtern vom Sommer (April – Sept. 2021). Die Summe der Plutoniumisotope ²³⁹Pu und ²⁴⁰Pu ergab 0.6 ± 15% nano-Becquerel pro m³ Luft (nBq/ m³) im Winter und 1.4 ± 10 % nBq/m³ im Sommer. Zusätzliche Proben von den Stationen CERN, Klingnau und Posieux ergaben für November 2020 bis September 2021 zwischen 0.7 und

1.1 nBq/m³. HVS-Filter vom von starkem Saharastaubeintrag geprägten Februar 2021, ergaben einen etwas höheren Wert (2.3 nBq/m³). Diese Erhöhung ist verursacht durch die grössere Staubmenge auf den Filtern (siehe auch Jahresbericht 2020, Kapitel 7.2, Figur 1). Die gemessenen Konzentrationen der künstlichen Alphastrahler sind sehr tief und liegen wie beim ¹³7Cs eine Million Mal unter dem Immissionsgrenzwert. Die Resultate der MV-Filter in der Umgebung der Kernkraftwerke werden im Kapitel 8.5 näher besprochen.

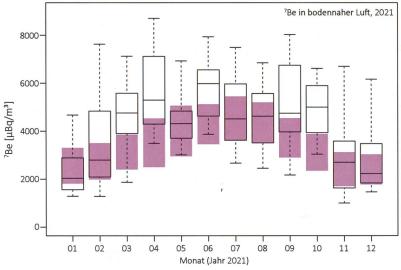
Natürliche Radioisotope in der Luft

Die 2021 auf den HVS Filtern gemessenen Radioisotope waren fast ausschliesslich natürlicher Herkunft. Vorherrschend waren das Radonfolgeprodukt Blei-210 (210Pb; Halbwertszeit 21 Jahre) und Beryllium-7 (7Be; Halbwertszeit 50 Tage), welches durch die kosmische Strahlung in hohen Schichten der Atmosphäre gebildet und deshalb auch kosmogen genannt wird. Neunzig Prozent der 2021 gemessenen ²¹⁰Pb-Konzentrationen lagen zwischen 0.15 und 1.18 mBq/m³ (Mittelwert = 0.56 mBq/m³, Median = 0.5 mBg/m³). Diese Werte liegen im Rahmen der Werte der Referenzperiode 2013 - 2018 (Tabelle 2). Auffallend ist (wie in den Vorjahren) dass die Werte der Station Cadenazzo deutlich höher sind, als die Werte der Stationen nördlich der Alpen: im Durchschnitt 0.84 mBq/ m³ für Cadenazzo gegenüber 0.50 mBq/m³ für die anderen 5 Stationen.

Bei ⁷Be-Werte lagen 2021 neunzig Prozent der Werte zwischen 1.55 und 7.09 mBq/m³ (Mittelwert = 4.5 mBq/

*Tabelle 2:*Verteilung der 2013-2018 (Referenz) sowie 2021 in der Schweiz gemessenen ²¹⁰Pb und ⁷Be Aktivitäten in bodennaher Luft. Aktivitätsangaben in mBq/m³

Kenngrösse	²¹⁰ Pb (Referenz)	⁷ Be (2021)	⁷ Be (Referenz)	⁷ Be (2021)	
5% - 95%-Perzentil	0.18 - 1.18	0.15 - 1.18	1.48 - 6.40	1.55 - 7.09	
Min - Max	0.07 - 2.76	0.09 - 2.12	0.15 - 8.74	1.00 - 8.71	
Mittelwert / Median	0.57 / 0.49	0.56 / 0.50	3.66 / 3.50	4.28 / 4.30	
Anzahl Messwerte	1'864	307	1'864	307	



Figur 2:
Boxplot der monatlichen ⁷Be Konzentrationen bei allen HVS Stationen im Jahr 2021. 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).

m³; Median = 4.4 mBq/m³). Dies entspricht den erwarteten Werten für ein Jahr mit starker kosmischer Strahlung und ist etwas über dem langjährigen Mittelwert (siehe Tabelle 2). Die Figur 2 zeigt für jeden Monat die Verteilung der ⁷Be Konzentrationen aller Stationen im Vergleich mit dem langjährigen Jahresverlauf. Der Jahresverlauf der ⁷Be Konzentrationen widerspiegelt das Wettergeschehen, insbesondere die konvektive vertikale Durchmischung der Troposphäre an warmen Sommertagen, wobei ⁷Be reiche Luft aus der obersten Troposphäre an den Boden gelangt. Weitere Einflüsse für die ⁷Be Konzentration in der Luft sind Niederschlag (Auswaschen von ⁷Be) und die kosmische Strahlung. Die kosmische Strahlung war 2021 geringfügig tiefer (-0.7%) als 2020 (IGY Neutron Monitor Junfraujoch, cosray.unibe.ch) aber immer noch hoch. Im zweiten Jahr des Sonnenzyklus 25 war die Sonnenaktivität also noch relativ schwach (die Sonnenaktivität ist mit der kosmischen Strahlung negativ korreliert). Der Jahresmittelwert der in der Bodenluft gemessenen ⁷Be Konzentrationen ging mit 5.5% stärker zurück als die kosmische Strahlung (4.28 mBq/m³ gegenüber 4.53 mBq/m³ im Vorjahr). Während das Jahr 2020 von der ausserordentlichen, warmen Trockenperiode im April dominiert war, zeichnete sich das Jahr 2021 durch hohe Niederschläge und durchschnittliche Temperaturen aus. Die vergleichsweise hohen ⁷Be Werte in den Monaten März, April, September und Oktober (Figur 2) hängen sicher damit zusammen, dass diese Monate trocken waren. Demgegenüber ergaben die Messungen für den sehr feuchten Monat Juli, wo normalerweise die höchsten ⁷Be Konzentrationen erwartet werden, eher tiefe Werte. Neben ⁷Be war in kleinsten Spuren von meist weniger als einem Mikrobecquerel pro Kubikmeter das ebenfalls kosmogene Natrium-22 (22Na) nachweisbar.

Als weiteres natürliches Radioisotop findet sich in den HVS Filtern oft auch $^{40}\text{K}.$ Die Konzentrationen lagen 2021 meist im typischen Bereich von 5 - 15 $\mu\text{Bq/m}^3.$ Im trockenen März durch Staubaufwirbelung Etwas höhere Werte (15 - 30 $\mu\text{Bq/m}^3)$ konnten im trockenen März (Staubaufwirbelung) und in der stadtnahen Station Liebefeld in der Woche mit dem 1. August (Feuerwerk) beobachtet werden.

Niederschlag

Messungen von Gammastrahlern

Im Berichtsjahr 2021 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, Cer-

nier NE und Davos GR. Für die natürlichen Radioisotope ⁷Be und ²¹⁰Pb waren die Messresultate ähnlich wie im Vorjahr (7Be: 0.2 - 3.9 Bq/l, Mittelwert 1.0 Bq/l; ²¹⁰Pb: 0.01 - 1.24 Bq/l, Mittelwert 0.09 Bq/l). In 2 von 94 Regen- und Schneeproben lag ¹³⁷Cs knapp über der Erkennungsgrenze von rund 1 mBq/l. Ein gesundheitliches Risiko ist bei diesen sehr tiefen Werten nicht gegeben; als Referenzpunkt kann hier der Immissionsgrenzwert aus der Strahlenschutzverordnung von 36 Bq/l 137Cs in öffentlich zugänglichen Gewässern herangezogen werden, da bei starken Niederschlägen ein öffentlich zugängliches Gewässer im Wesentlichen durch Regenwasser gespeist sein könnte. Andere künstliche Gammaemitter konnten nicht nachgewiesen werden. 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 die Tritiumkonzentrationen nur zweimal knapp über der Nachweisgrenze von 2 Bq/l (Maximum 2.2 \pm 0.6 Bq/l). Tritium-Messungen an Regenproben aus der Umgebung der Kernkraftwerke KKG, KKL und KKM ergaben ebenfalls Messwerte unterhalb oder knapp über der Nachweisgrenze von 2 Bq/l. Bei diesen Stationen war der höchste gemessene Wert 3.1 ± 0.9 Bq/l. Bei den Sammelstationen PSI, KKB und Zwilag ergaben sich 2021 mit Mittelwerten von 5.5, 7.4 und 2.4 Bq/l zum Teil leicht höhere Werte- wie auch in früheren Jahren beobachtet. Das höchste Monatsmittel trat bei der Station PSI auf (28.5 Bq/l). Alle gemessenen Konzentrationen liegen sehr deutlich unterhalb der gesetzlichen Grenzwerte (siehe Kapitel 8.5). Höhere Tritiumwerte - aber auch hier unterhalb der Grenzwerte- zeigten sich bei der Überwachung von Tritium-verarbeitenden Industrien. Nahe bei den betroffenen Standorten in Niederwangen BE, Root LU und Teufen AR enthielt das Regenwasser zwischen 5 und 776 Bq/l Tritium mit einem Mittelwert von 104 Bq/l. Die Höchstkonzentration entspricht rund 3.9%, der Mittelwert 0.5% des Immissionsgrenzwertes für öffentlich zugängliche Gewässer, der in der StSV festgehalten ist (20'000 Bq/l). Ausführlicher werden diese Tritium-Resultate in Kapitel 9.3 besprochen.

Referenzen

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

URAnet aero

D. Lienhard, P. Beuret, S. Estier, M. Müller, P. Steinmann Sektion Umweltradioaktivität, URA / BAG, Bern

Zusammenfassung

Die 15 Aerosolmonitore und 5 ¹³¹I Monitore des Messnetzes URAnet aero haben im Jahr 2021 keine erhöhte künstliche Radioaktivität in der Umgebungsluft festgestellt. In den Spektren konnten keine Peaks nachgewiesen werden, die eindeutig einem künstlichen Radionuklid zugeordnet werden können. Auch die Konzentration von gasförmigem ¹³¹I blieb unterhalb der Nachweisgrenze von ca. 90 mBq/m³. Somit blieben alle Aktivitätskonzentrationen unter den in der StSV festgelegten Immissionsgrenzwerten. Auf allen Stationen wurden die natürlich vorkommenden Radontöchter aus der Uran-Radium- und der Thorium-Zerfallskette täglich nachgewiesen, was die Funktionsfähigkeit der Aerosolmonitore bestätigt. Ein Vergleich der Tagesmittelwerte von ²¹⁴Pb aus der Uran-Radium-Zerfallskette und ²¹²Pb aus der Thorium-Zerfallskette zeigt, dass die Verläufe der Aktivitätskonzentrationen dieser beiden Radionuklide im Sommer ähnlich sind, jedoch zwischen November und Februar vergleichsweise wenig ²¹²Pb in der Luft vorhanden ist, was wahrscheinlich mit der Inversionshöhe und der unterschiedlichen Halbwertszeiten der Radon-Isotope der beiden Zerfallsreihen zusammenhängt.

Einführung

Das im Jahr 2018 offiziell in Betrieb genommene Messnetz URAnet aero überwacht die Radioaktivität in der Umgebungsluft. Das Messnetz besteht aus 15 über die ganze Schweiz verteilten Messstationen, auf denen Aerosolmonitore kontinuierlich die Aktivitätskonzentrationen der auf Luftpartikeln gebundenen Radionuklide messen und die Messwerte per Mobilfunknetz übertragen. Fünf Mess-standorte verfügen zusätzlich über einen aus dem Vorgängermessnetz RADAIR übernommenen Iod-Monitor. Diese Iod-Monitore messen die ¹³¹I Konzentrationen in der Gasphase der Umgebungsluft.

Das Ziel von URAnet aero ist einerseits die Überwachung der Immissionen in der Luft zur Abschätzung der Dosis für die gesamte Bevölkerung, andererseits eine rasche und zuverlässige Alarmübertragung und Alarmvalidierung im Falle einer erhöhten Aktivitätskonzentration eines künstlichen Radionuklids. Die eingesetzte Messtechnik erlaubt die Identifizierung und Quantifizierung von Radionukliden mit den von internationalen Empfehlungen geforderten Nachweisgrenzen. Da der Luftdurchsatz von URAnet aero Monitoren mit 16 bis 18 m³/h viel tiefer liegt als derjenige von Hochvolumensammlern (ca. 500 m³/h bei 1 Woche Sammelzeit, siehe Kapitel 4.1), liegen die Nachweisgrenzen der Aerosolmonitore höher, aber immer noch weit unter dem gesetzlichen Immissionsgrenzwert.

Von den 15 Messstationen befinden sich eine Station nördlich des Juras (Basel), eine Station südlich der Alpen (Bellinzona) und die restlichen Stationen im Mittelland zwischen Genf und dem Bodensee, mit einer besonderen Verdichtung des Messnetzes in der Umgebung der Kernkraftwerke. In der zweiten Jahreshälfte 2021 wurde die Messstation auf dem Bözberg nach Aarau verschoben. Für die erste Jahreshälfte 2022 ist zudem der Umzug des Iod-Monitors der Station Fribourg in die gleiche Lokalität in Aarau geplant. Abbildung 1 zeigt die Messstationen von URAnet aero auf der Schweizer Karte.

Die Messgeräte sind eingebunden in das SwissMetNet der MeteoSchweiz. Innerhalb des SwissMetNet werden Messwerte verarbeitet, im Data Warehouse von MeteoSchweiz gespeichert und gleichzeitig an die Sektion Umweltradioaktivität transferiert, wo sie für die Analyse, Visualisierung und gegebenenfalls eine Alarmvalidierung zur Verfügung stehen

Die 12-Stunden-Mittelwerte der Radionuklide ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, ⁷Be, ⁶⁰Co, ¹³¹I, ²¹⁴Bi und ²¹⁴Pb sind auf der Internet-Plattform Radenviro für die Öffentlichkeit einsehbar (www.radenviro.ch).

Messtechnik

Aerosolsammler:

Die Bandfilter-Messgeräte des Herstellers Thermo Fisher sind ausgestattet mit einem Reinstgermanium-Detektor mit 15% relativer Effizienz gegenüber einem 3x3" Nal-Detektor, über welchem sich in ca. 1cm Abstand die Bestaubungsstelle mit 5cm Durchmesser befindet. Zur Abschirmung vor Umgebungsstrahlung ist dieser Detektor in einem zweiteiligen Bleigehäuse eingebaut. Die beiden Teile werden durch einen metallenen Messstellenring getrennt, über welchen das Filterband bewegt werden kann. Der Messstellenring wird im Messbetrieb von vier Schraubenfedern luftdicht an das obere und von einem O-Ring luftdicht an das untere Bleigehäuse gedrückt. Via einen Ansaugkopf mit einem grobmaschigen 1mm-Gitter - um dem Ansaugen von Insekten oder Schneeflocken vorzubeugen – passiert die Umgebungsluft während einer Bestaubungszeit von 12 Stunden das Glasfaser-Filterband mit einer Durchflussrate von 16 bis 18 m³/h. Nach Ablauf der Bestaubungszeit wird der Messstellenring durch die Druckluft eines Kompressors gegen den O-Ring nach unten gepresst, wodurch das Filterband frei bewegt und soweit vorgeschoben werden kann, dass sich die bereits bestaubte Stelle ausserhalb des Bleigehäuses befindet und eine frische Filterfläche bestaubt werden kann. Der Teil des Bleigehäuses oberhalb des Messstellenrings verfügt über einen Einlass für die Luftansauglinie, während der untere Teil einen Ausgang für den Luftabzug hat.

Die Gamma-Spektrometrie mit Germanium-Kristallen erlaubt die Aufnahme von hochaufgelösten Spektren im Energie-Bereich zwischen 30 und 2'000 keV mit Peak-Halbwertsbreiten zwischen 0.8 keV im niedrigen Energiebereich und 2.5 keV im hohen Energiebereich. Durch die hohe Auflösung gibt es wenige Überlappungen der einzelnen Peaks, was die eindeutige Zuordnung zu den verschiedenen Radionukliden vereinfacht. Anhand der Peak-Fläche und des gefilterten Luftvolumens kann dann die Aktivitätskonzentration der Radionuklide in der Umgebungsluft berechnet werden.

Nach einem Filterbandvorschub beginnt die Pumpe sofort mit dem Ansaugen von Aussenluft und der Detektor mit der kontinuierlichen Akquisition des Spektrums. Alle 5 Minuten wird das Spektrum neu ausgewertet und auf Grenzwertüberschreitungen geprüft, womit die Information der zeitlichen Entwicklung der Fläche des Peaks in der Auswertung abgespeichert ist.

Die Temperaturschwankungen der angesogenen Umgebungsluft während einer 12h-Bestaubungszeit führen auch beim Vorverstärker des Germaniumdetektors zu geringen Temperaturschwankungen. Dadurch kann sich die Energiekalibration während der Bestaubungszeit geringfügig verändern. Das Messsystem regelt die Energiekalibration anhand der Peaks der Radontöchter ²¹⁴Bi und ²¹⁴Pb und einer eingebauten schwachen ⁴⁰K Quelle automatisch nach. Auf die Halbwertsbreiten haben diese Modulationen keinen signifikanten Einfluss.



Abbildung 1:

Standorte der 15 Aerosol- und fünf Iod-Monitore von URAnet aero. Die Stationen sind jeweils mit einem Kürzel für die Gemeinde/Region bezeichnet und bedeuten: BAN: Basel/BS, BEL: Bellinzona/Tl, AAN: Aarau/AG, BUL: Bülach/ZH, GUT: Güttingen/TG, GVE: Genf/GE, KAI: Kaisten/AG, LBF: Liebefeld/BE, MEI: Meikirch/BE, MUL: Mühleberg/BE, NEU: Neuenhof/AG, OEN: Oensingen/SO, PSI: Villigen/AG, TRA: Trasadingen/SH, WAL: Schmiedrued-Walde/AG. Der Umzug des Iod-Monitors von Fribourg nach Aarau ist für die erste Jahreshälfte 2022 vorgesehen.

131 I-Monitor:

Eine Pumpe saugt Umgebungsluft mit einer Durchflussrate von ca. 10 m³/h an. Diese Luft passiert dabei eine zylindrische Kartusche mit AgNO₃-Granulaten, auf welchen gasförmiges 131 adsorbiert, falls dieses in der Umgebungsluft (gasförmig oder partikelgebunden) vorhanden sein sollte. In der Mitte der zylindrischen Kartusche ist ein Nal-Detektor installiert, der die Gammaquanten von ¹³¹I bei 364.49 keV registriert. Aus der Zählrate und dem gefilterten Luftvolumen kann dann die Aktivitätskonzentration des ¹³¹I in der Umgebungsluft berechnet werden.

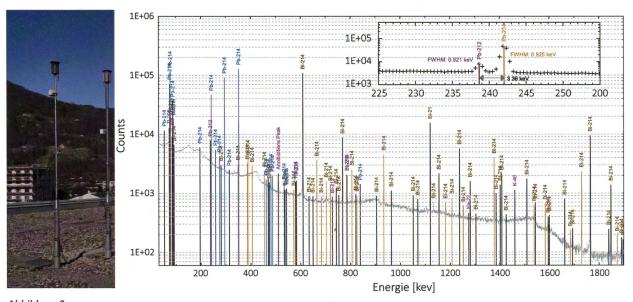
Messresultate

Abbildung 2 zeigt das aufgenommene Spektrum der Messstation Bellinzona am Ende der 12h-Bestaubungszeit am Mittag des 28. Dezembers 2021. Die aus den Hauptlinien von ²¹⁴Pb und ²¹⁴Bi (351.9 und 609.3 keV) abgeleiteten Aktivitätskonzentrationen betragen über 40 Bq/m³ und entsprechen den Jahreshöchstwerten. Bei diesen hohen Konzentrationen identifizierte die Auswertungs-Software 20 Linien von ²¹⁴Pb und 63 Linien von ²¹⁴Bi im Spektrum. Darunter befinden sich auch Summations-Peaks und Double-escape Peaks, welche die Auswertung erschweren. Viele Peaks sind zudem den Compton-Kontinuen überlagert, welche die Abschätzung des Peak-Untergrunds weiter verkomplizieren. Der Double-escape Peak der starken Linie von ²¹⁴Bi bei 1'764.5 keV ergibt eine Linie bei 742.5 keV, nur 0.8 keV unterhalb der Hauptlinie von ⁹⁷Zr. Selbst bei einem gut justierten Detektor ist es deshalb möglich, dass dieser Double-escape Peak fälschlicherweise dem ⁹⁷Zr zugeordnet wird. Eine Intereferenz-Korrektur kann

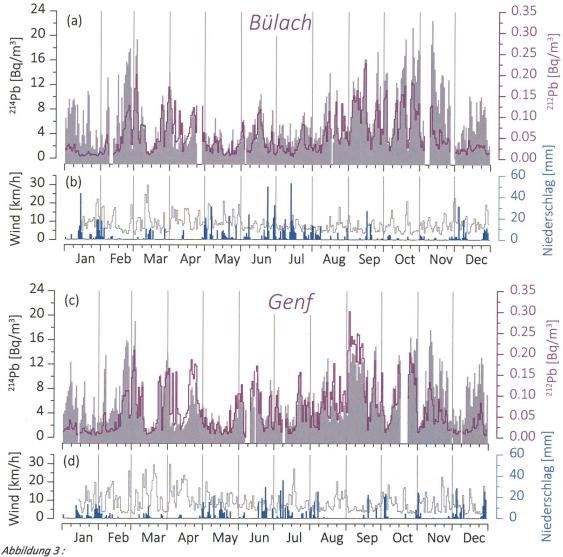
leider auch nicht vorgenommen werden, da dieser Double-escape Linie keine Emissionswahrscheinlichkeit zugeordnet werden kann. Eine verlässlichere Methode, dieses Problem zu lösen, ist die Anwesenheit der Nebenlinie von ⁹⁷Zr bei 507.6 keV zur eindeutigen Identifizierung von ⁹⁷Zr zu fordern, auch wenn sich dadurch die Nachweisgrenze von ⁹⁷Zr verschlechtert.

Gelegentlich taucht auch der ²¹⁴Bi Summationspeak der 609.3 keV Linie mit der 806.2 keV Linie (1'415.5 keV) oder der 665.5 keV Linie (1'274.8 keV) im Spektrum auf. Letztere könnte zur falschen Identifizierung von ²²Na führen, welches nur eine Gamma-Linie bei 1'274.5 keV besitzt. ²⁰⁸Tl hat ebenfalls eine starke Linie bei 2614.5 keV, welche einen Double-escape Peak bei 1'592.5 keV verursacht. Da dieser Double-escape Peak eine etwas höhere Halbwertsbreite aufweist, überlagert er sich teilweise mit der 1'594.7 keV Linie von ²¹⁴Bi. Dieses Multiplet wird teilweise von der Auswertungs-Software als einzelner Peak bei 1'593.5 keV interpretiert, der keinem Nuklid zugewiesen werden kann. Ebenfalls im Spektrum in Abbildung 2 identifiziert wurden einige Linien von ²¹²Pb, ²¹²Bi und ²⁰⁸Tl aus der Thorium-Zerfallsreihe, sowie der ⁴⁰K Peak und der Annihilationspeak (rot). Trotz der schwierigen Analyse durch die Vielzahl von ²¹⁴Pb und ²¹⁴Bi Linien verblieb kein nichtzugewiesener Peak in diesem Spektrum.

Der vergrösserte Ausschnitt in Abbildung 2 zeigt den Bereich um die Hauptlinie von ²¹²Pb bei 238.6 keV. Ein korrekt justierter Germanium-Detektor mit hoher Auflösung kann diese Hauptlinie gut von der ²¹⁴Pb Nebenlinie bei 242 keV unterscheiden und die Aktivitätskonzentration von ²¹²Pb in der Umgebungsluft bestimmen. Der Verlauf der



Spektrum der Messstation Bellinzona vom 28. Dezember 2021 um 12:00 Uhr. Die Linien von 214 Pb und 214 Bi aus der Uran-Radium-Zerfallskette sind gelb und blau markiert, alle anderen rot. Der Bereich um die Hauptlinie von 212 Pb aus der Thorium-Zerfallskette mit der angrenzenden Nebenlinie von 214 Pb bei 242 keV ist vergrössert dargestellt. Durch die hohe Auflösung können die Peaks von 212 Pb und ²¹⁴Pb aut voneinander unterschieden werden.



Zeitreihe der Tagesmittelwerte der ²¹⁴Pb und ²¹²Pb Aktivitätskonzentrationen der Stationen Bülach und Genf für das Jahr 2021, zusammen mit den Tagesmittelwerten der Windgeschwindigkeiten und der 24h-Niederschlagssumme.

Tagesmittelwerte der Aktivitätskonzentrationen von ²¹²Pb und ²¹⁴Pb der Stationen Bülach und Genf sind in Abbildung 3 aufgetragen. Diese Tagesmittelwerte von ²¹²Pb liegen im Normalfall unter 0.25 Bq/m³ und folgen in den wärmeren Sommermonaten in etwa dem gleichen Trend wie ²¹⁴Pb. Wie beim ²¹⁴Pb führen windigere Verhältnisse und die Auswaschung aus der Atmosphäre durch Niederschlag zu niedrigeren ²¹²Pb Tagesmittelwerten. Sehr hohe ²¹²Pb und ²¹⁴Pb Tagesmittelwerte auf beiden Stationen resultieren aus windstillen Verhältnissen ohne Niederschlag, wie beispielsweise während der zweiten Hälfte im Februar oder der letzten Woche im Oktober. Während regnerischen Tagen wie etwa Mitte Mai wurden hingegen sehr tiefe Konzentrationen gemessen.

Auffallend bei beiden Stationen ist die Entkopplung der beiden Verläufe von ²¹²Pb und ²¹⁴Pb in den kälteren Monaten zwischen November und Februar. Die Wind- oder Niederschlagsverhältnisse scheinen keinen Einfluss auf diese Entkopplung zu haben. Die unterschiedlichen Trends in den Wintermonaten werden deutlich, wenn die ²¹²Pb Tagesmittelwerte gegen die ²¹⁴Pb Tagesmittelwerte aufgetragen werden. Abbildung 4 zeigt diese Werte als Kreuze für die Wintermonate und Kreise für die restlichen Monate auf den beiden Stationen Bülach und Genf sowie die vier weiteren Stationen Oensingen, Meikirch, Trasadingen und Bellinzona. In Oensingen treten die höchsten ²¹²Pb Tagesmittelwerte mit bis zu 0.35 Bq/m³ auf, in Bellinzona hingegen bleiben die Werte

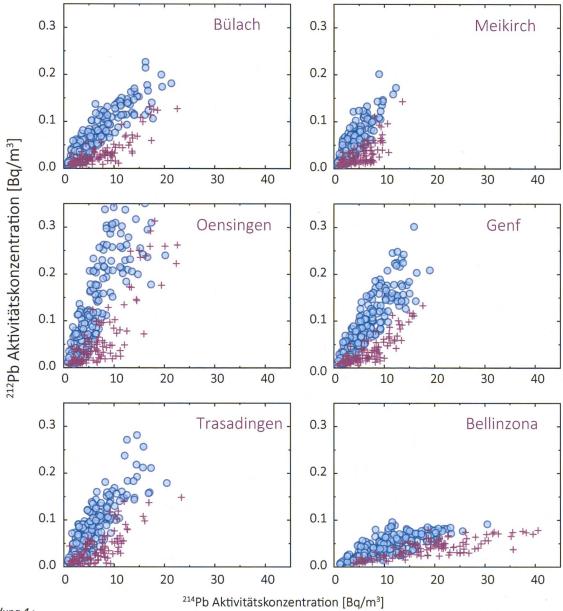


Abbildung 4:

Tagesmittelwerte der Aktivitätskonzentration von ²¹²Pb als Funktion der Werte von ²¹⁴Pb auf den Stationen Bülach, Meikirch, Oensingen, Genf, Trasadingen und Bellinzona. Die Kreuze stehen für die Wintermonate Januar, Februar und Dezember 2021, die Kreise für die übrigen Monate im Jahr 2021.

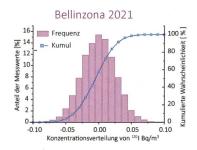
unter 0.1 Bq/m³. Die Station Bellinzona misst jedoch wie schon in den Vorjahren die höchsten ²¹⁴Pb und ²¹⁴Bi Konzentrationen.

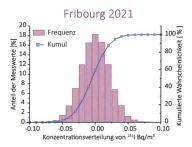
Auf allen sechs abgebildeten Stationen liegen die ²¹²Pb-Tagesmittelwerte in den kälteren Monaten für gleichhohe Werte von ²¹⁴Pb tendenziell tiefer als in den wärmeren Monaten. Für diesen Trend vermuten wir einen Zusammenhang mit dem unterschiedlichen Verhalten der verschiedenen Radon-Isotope und deren Töchter. Die Thorium-Zerfallskette verläuft über das gasförmige ²²⁰Rn mit einer sehr kurzen Halbwertszeit von weniger als einer Minute zum ²¹²Pb mit einer Halbwertszeit von über 10 Stunden, welches sich auf den Luftpartikeln anlagert.

Kurz nach dem Austritt aus dem Boden breitet sich das ²¹²Pb folglich zusammen mit den Aerosolpartikeln aus. In der Uran-Radium-Zerfallskette hat das gasförmige ²²²Rn eine Halbwertszeit von mehr als drei Tagen, wodurch genügend Zeit für das ²²²Rn selbst bleibt, um sich in der Gasphase bis in höhere Luftschichten auszubreiten. Während den Inversionen im Winter kann sich das Radon und seine Töchter aus der Uran-Radium-Zerfallsreihe in der gesamten Inversionsschicht ausbreiten, während die Radon-Töchter aus der Thorium-Zerfallsreihe auf den Aerosolpartikeln - besonders bei der Ausbildung von Bodeninversionen - in den tiefsten Luftschichten zurückbehalten werden. Entsprechend müsste in den Ergebnissen eine Abhängigkeit von der Probenahmehöhe über Grund

zu erkennen sein. Die bisherigen Daten stützen diese Theorie jedoch nicht (Meikirch, Oensingen und Trasadingen im 1. Stock, Bellinzona und Genf im 4. Stock und Bülach im 7. Stock).

Die fünf Iod-Monitore auf den Stationen in Bellinzona, Genf, Fribourg, Liebefeld und PSI haben zu keinem Zeitpunkt im Jahr 2021 gasförmiges ¹³¹I nachgewiesen. Die Absenz von ¹³¹I in der Luft bestätigen auch die Histogramme der durchschnittlichen ¹³¹I Konzentrationen gemessen auf den Stationen in Fribourg und Bellinzona in Figur 5, die eine Gausssche Glockenkurve mit einem Mittelwert von Null zeigen.





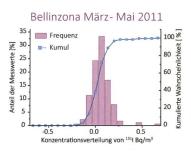


Abbildung 5:

Histogramm der Durchschnittskonzentration von ¹³¹ auf den Stationen Bellinzona und Fribourg im Jahr 2021. Zum Vergleich ist ebenfalls das Histogramm von Bellinzona aus dem Jahr 2011 (Monate März bis Mai), als der Monitor nach dem Unfall im KKW Fukushima ¹³¹ detektierte.

Schlussfolgerung

Die 15 nuklidspezifischen Aerosolmonitore des Messsnetzes URAnet aero haben im Jahr 2021 zuverlässig Gamma-Spektren mit guter Auflösung erzeugt. Weder die Aerosolsammler noch die Iod-Monitore konnten 2021 künstliche Radionuklide feststellen. Die gute Justierung und automatische Anpassung der Energiekalibration der Germanium-Detektoren erlauben die Messung der Radontöchter ²¹²Pb, ²¹²Bi und ²⁰⁸Tl aus der Thorium-Zerfallsreihe trotz der in den Spektren dominanten ²¹⁴Pb und ²¹⁴Bi aus der Uran-Radium-Zerfallsreihe mit gemeinsam teilweise über 80 Peaks. Die Zeitverläufe von 214 Pb und ²¹²Pb zeigen ein unterschiedliches Verhalten dieser beiden Radionuklide in den Wintermonaten, was wahrscheinlich mit der unterschiedlichen Halbwertszeit der Radon-Isotope aus den beiden Zerfallsreihen und den Inversionen zusammenhängt.

Überwachung der Radioaktivität der Luft mit Militärflugzeugen

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

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 bei einem Ereignis die radioaktive Wolke bis in diese Höhe aufsteigt. Im Normalfall sind 6 Sammelflüge pro Jahr vorgesehen. Die Hin- und Rückflüge erfolgen jeweils je über resp. unter der Tropopause. Die Höhe der Tropopause wird täglich mit einem Ballonflug durch Meteo-Schweiz 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.

Als Filtermaterial wird ein Zellulosefilter (KG Typ FFL 2689) von Freudenberg Filtration Technologies mit den Dimensionen 555 x 526 mm verwendet. Der Filter wird mit einer hydraulischen Presse mit 25 Tonnen zu einer Tablette von 63 mm Durchmesser und ca. 24 mm Dicke gepresst.

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.



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

Messung der Proben

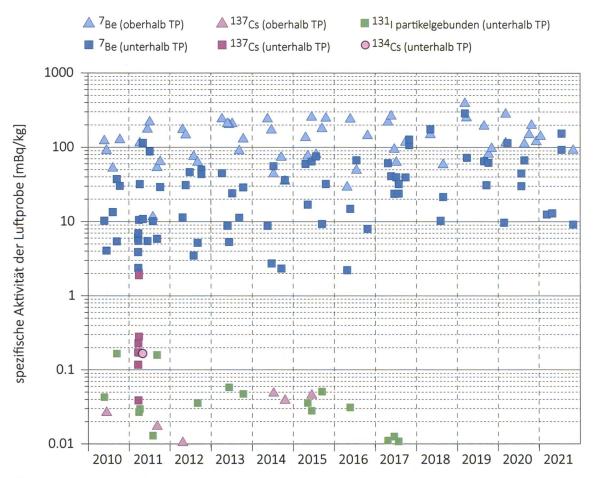
Die Messung erfolgt im Labor mittels hochauflösender Gammaspektrometrie, wobei nach 1-2 Tagen Messzeit für ¹³⁷Cs eine Nachweisgrenze von 0.01 - 0.05 mBq/kg Luft erreicht wird. Anschliessend können an den Filtern weitere Untersuchungen durchgeführt werden, z.B. mit radiochemischen oder massenspektrometrischen Verfahren.

Über die letzten zwölf Jahre liegt die durchschnittliche Konzentration des kosmogenen Radionuklids ⁷Be oberhalb der Tropopause bei 129 mBq/kg. Bei den Messungen 1 km unterhalb der Tropopause liegt der Durchschnittswert bei 24 mBq/kg. Als Vergleich seien hier die Werte von P. Winiger [1] bis [4] erwähnt, die für ⁷Be im Mittel bei 100 mBq/kg bzw. 20 mBq/kg liegen, jeweils 1'000 m über bzw. unter der Tropopause ermittelt.



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

Die ¹³⁷Cs-Werte lagen im Jahr 2021 alle unter der Nachweisgrenze von 0.01 - 0.05 mBq/kg. In Figur 3 deutlich sichtbar sind die nach dem Reaktorunfall Fukushima (Japan) gemessenen ¹³¹I-Konzentrationen, welche jedoch infolge der Halbwertszeit von 8 Tagen schon kurze Zeit später nicht mehr messbar waren. Auch das Radionuklid ¹³⁴Cs konnte in den Jahren nach 2011 nicht mehr nachgewiesen werden.



Figur 3:
⁷Be-, ¹³⁴Cs-, ¹³⁷Cs- und partikelgebundene ¹³¹l- Messwerte in mBq/kg Luft in den Jahren 2010-2021.

Quellen:

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

Radioaktivität in aquatischen Systemen

M.S. Brennwald, P. Rünzi
Eawag, Überlandstrasse 133, Dübendorf
A. Pregler
Kantonales Labor Basel-Stadt, Gruppe Radioaktivität, Basel

Zusammenfassung

In den Wasserproben von Aare und Rhein wurden 2021 weder ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co oder ⁶⁰Co aus Abgaben der Kernkraftwerke Mühleberg, Gösgen, Beznau oder Leibstadt nachgewiesen, wobei die Nachweisgrenzen bei 0.08 - 0.6 Bq/m³ lagen; diese Radionuklide wurden nur in den Schwebestoffproben von Aare und Rhein gefunden. Im Januar wurde im Wasserproben ¹³⁷Cs beobachtet, welches zum grössten Teil noch vom Unfall im KKW Tschernobyl stammt. In Stichproben von Schwebstoffen im Rhein bei Weil (D) wurden im Weiteren die kurzlebigen Radionuklide ¹³¹I, ¹⁷⁷Lu und ²²³Ra gefunden, welche in der Nuklearmedizin eingesetzt werden. In einzelnen Wasserpflanzenproben wurden geringe Mengen von ¹³⁷Cs knapp oberhalb der jeweiligen Nachweisgrenzen beobachtet. In Fischen und Grundwasserproben wurden keine künstlichen Radnionuklide nachgewiesen.

Übersicht

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, um die Radionuklid-Immissionen der entsprechenden Betriebe zu überwachen.

Die kumulierten Radionuklidabgaben der Kernkraftwerke werden von der Eawag mittels monatlicher Wasserproben an verschiedenen Standorten entlang von Aare und Rhein 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 überwacht.

Komplementär zu den Wasserproben aus Rhein und Aare werden bei Hagneck, Klingnau und Pratteln auch die spezifischen Aktivitäten von Radionukliden überwacht, welche auf Schwebestoffen angelagert sind. Zusätzlich werden einmal jährlich auch Grundwasser-, Fisch- und Wasserpflanzenproben untersucht.



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

Die Aktivitäten der Radionuklide in allen Proben werden an der Eawag mittels Gammaspektrometrie bestimmt.

Zusätzlich zu diesen monatlichen Sammelproben entnimmt das Amt für Umwelt und Energie Basel-Stadt (AUE BS) bei der Rheinüberwachungsstation Weil am Rhein (D) Stichproben von Rheinwasser und Schwebestoffen. Diese werden vom kantonalen Labor Basel-Stadt (KLBS) analysiert.

Ergebnisse

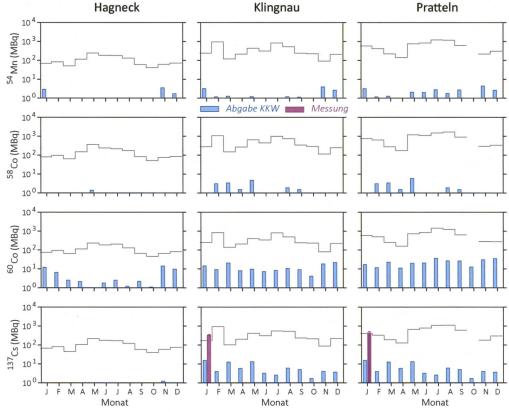
Wasserproben aus Aare und Rhein

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 80 Proben genommen, was monatliche Sammelproben zwischen 50L und 200L ergibt. Zur Bestimmung der monatlichen Fracht der Radionuklide in Aare und Rhein

werden die Radionuklide aus den Sammelproben durch eine Eisenhydroxidfällung extrahiert. Danach wird das Fällungsprodukt getrocknet und darin die Aktivitäten der betreffenden Radionuklide bestimmt. Die Radionuklidfracht ergibt sich aus dem Produkt der gemessenen Aktivität und der während der Sammelperiode abgeflossenen Wassermenge.

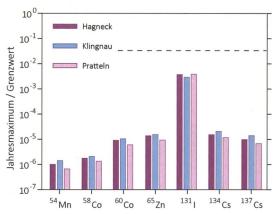
Figur 2 zeigt die monatlichen Frachten der im Wasser gelösten Radionuklide ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co, ⁶⁰Co und ¹³⁷Cs bei den Stationen Hagneck, Klingnau und Pratteln.

Die Summe der Radionuklidabgaben aus den Kernkraftwerken in die Aare bzw. in den Rhein waren für ⁵⁴Mn vorwiegend durch das KKW Mühleberg dominiert. Etwa dieselbe Menge wurde durch die KKWs Beznau und Leibstadt zusammen abgegeben. ⁵⁸Co stammt zum grössten Teil aus dem KKW Beznau und ⁶⁰Co wurde von allen drei KKWs abgeben. Im Fall von ¹³⁷Cs sind die Abgaben durch das Kernkraftwerk Beznau dominiert. Durch das KKW Gösgen wurden keine Abgaben der genannten Nuklide ausgewiesen, wohl aber andere Nuklide wie ^{99m}Tc und ¹⁴⁴Ce.



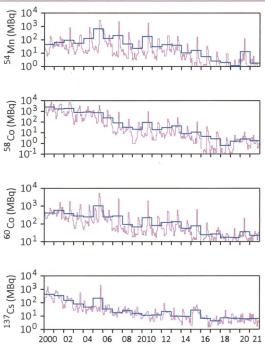
Figur 2:

Vergleich der berechneten und gemessenen Frachten von ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co, ⁶⁰Co und ¹³⁷Cs an den drei Stationen bei Hagneck, Klingnau und Pratteln. Die berechneten Frachten entsprechen den kumulierten Abgaben der flussaufwärts gelegenen Kernkraftwerke. Die Messwerte lagen mit Ausnahmen von ¹³⁷Cs immer unter der Bestimmungsgrenze (schwarze Stufenlinie, engl. «limit of quantification»/LOQ). Die Fehlerbalken zeigen den Standardmessfehler der Fracht. Aufgrund des Umbaus der Elektronik in der Hardwasser AG kam es zu einer Störung der Anlage in Pratteln, wodurch die Wasserprobe des Monats Oktober nicht gesammelt wurde.



Figur 3:

Maxima der normierten Konzentrationen von ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co, ⁶⁰Co, ⁶⁵Zn, ¹³¹I, ¹³⁴Cs und ¹³⁷Cs im Wasser bei Hagneck, Klingnau und Pratteln (Jahresmaximum der Nachweisgrenzen; vereinzelt lagen Messwerte unterhalb der Maxima der Nachweisgrenzen vor), normiert auf die Immissionsgrenzwerte für Gewässer gemäss StSV. Die gestrichelte Linie markiert die Untersuchungsschwelle (1/30 der Immissionsgrenzwerte).



Figur 4: Entwicklung der summierten Abgaben der Kernkraftwerke über Abwasser von 2000 - 2021. Die hellblaue Linie zeigt die Abgaben pro Monat, die dunkelblaue jeweils das Jahresmittel.

Bei allen drei Stationen (Hagneck, Klingnau und Pratteln) wurde in den Wasserproben aus der Aare und dem Rhein über das ganze Jahr kein ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co oder ⁶⁰Co nachgewiesen. In früheren Jahren wurden vereinzelt Spuren dieser Nuklide nahe der Nachweisgrenze gefunden, als die Abgaben aus den KKW noch systematisch höher waren. Über die letzten zwei

Jahrzehnte sind die Abgaben dieser Radionuklide aus den KKW jedoch um mehrere Grössenordnungen zurück gegangen (siehe weiter unten).

Bei allen drei Stationen Hagneck, Klingnau und Pratteln wurde sporadisch ¹³⁷Cs in Konzentrationen nahe der Bestimmungsgrenze gefunden. Diese Aktivitäten sind in der Regel grösser als die Abgaben der Betriebe, was wie in bisherigen Jahren auf die Remobilisierung von ¹³⁷Cs vom Unfall im KKW Tschernobyl zurückgeführt wird.

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

Konzentrationsmaxima im Vergleich zu den Immissionsgrenzwerten

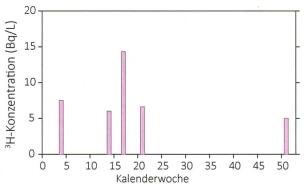
Figur 3 zeigt die jährlichen Maxima der Konzentrationen von ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co, ⁶⁰Co, ⁶⁵Zn, ¹³¹I, ¹³⁴Cs und ¹³⁷Cs im Wasser. Die Konzentrationen wurden normiert auf die Immissionsgrenzwerte für Gewässer (StSV). Die Konzentrationen bzw. Nachweisgrenzen für Nuklide, die nicht nachgewiesen werden konnten, liegen in allen Fällen um mindestens zwei Grössenordnungen unterhalb der Immissionsgrenzewerte.

Langfristige Entwicklung der Radionuklidabgaben und Frachten in Aare und Rhein

Figur 4 zeigt den zeitlichen Verlauf der Abgaben von ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co, ⁶⁰Co und ¹³⁷Cs aller Kernkraftwerke während den Jahren 2000 - 2021. Als Folge der Revisionen der Kernkraftwerke sind die Abgaben in der Regel im Sommer/Herbst am grössten. Über die Jahre betrachtet haben die Abgaben von ⁵⁸Co, ⁶⁰Co und ¹³⁷Cs bis ca. 2008 tendenziell abgenommen. Danach ist bis 2013 zunächst keine systematische Veränderung erkennbar. Von 2014 bis 2019 zeigt sich nochmals eine Reduktion der Abgaben von ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co und ⁶⁰Co. Die Abgabe dieser Nuklide stieg 2020 wieder an, lag aber 2021 wieder in der Grössenordnung von 2019.

³H-Überwachung bei der Rheinüberwachungsstation Weil am Rhein (D)

Bei der Rheinüberwachungsstation Weil am Rhein (D) werden durch das Amt für Umwelt und Energie Basel-Stadt (AUE BS) täglich Wasserproben gesammelt. Das kantonale Labor Basel-Stadt (KLBS) mischt die Tagespoben zu Wochenmischproben und bestimmt deren ³H-Aktivität. Die Bestimmungsgrenze liegt neu bei 4 Bq/l anstatt 2 Bq/l, wodurch der Anschein erweckt werden kann, es



Figur 5:

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

wäre seltener Tritium im Wasser gemessen worden. Die ³H-Aktivität des Rheinwassers ist in Figur 5 dargestellt. Die ³H-Konzentrationen betragen über das ganze Jahr < 15 Bq/L. Bei 90 % aller Proben liegen die ³H-Konzentrationen unterhalb der Messgrenze von 4 Bq/L.

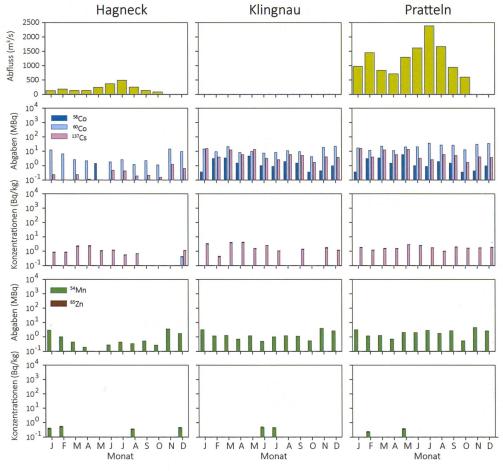
Schwebestoffe in Aare und Rhein

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.

Mit Hilfe von Sedimentfallen gewinnt die Eawag monatliche Sammelproben der Schwebestoffe bei den Stationen Hagneck, Klingnau und Pratteln. Diese Schwebstoffproben werden gefriergetrocknet, gemörsert und danach gammaspektrometrisch analysiert.

Die spezifischen ¹³⁷Cs-Aktivitäten der Partikelproben liegen bei allen drei Stationen bei maximal 15 Bq/kg, und zeigen keine generelle Korrelation mit den Abgaben aus den Kernkraftwerken (Figur 6). Die ¹³⁷Cs-Nachweise werden wie auch bei den Wasserproben auf die Remobilisierung von ¹³⁷Cs vom Unfall im KKW Tschernobyl zurückgeführt. Sporadisch wurden ⁵⁴Mn und ⁶⁰Co gefunden; ⁵⁸Co, und ⁶⁵Zn wurden nicht nachgewiesen.



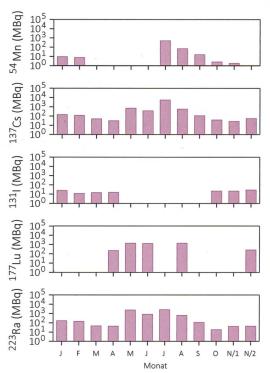
Figur 6:

Spezifische Aktivitäten von ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co, ⁶⁰Co, ⁶⁵Zn und ¹³⁷Cs 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: 0.2 - 10 Bq/kg). Die Fehlerbalken zeigen den Standardmessfehler der spezifischen Aktivitäten.

Das AUE BS sammelt bei Weil am Rhein monatlich Schwebstoff-Stichproben. Dabei wird über Zeiträume von einigen Tagen Rheinwasser aus der Querprofilmischung entnommen und davon die Schwebestoffe abzentrifugiert. 2021 wurden Anfang und Ende November Proben genommen, jedoch keine im Dezember. Die Probe von Ende November wird in diesem Bericht als Dezemberprobe betrachtet.

Die Radionuklidaktivitäten der Stichproben des AUE BS werden auf die monatlichen Radionuklidfrachten auf suspendierten Partikeln bei Weil am Rhein hochgerechnet. Dabei ist zu beachten, dass die 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.

Figur 7 zeigt die aus den Stichproben bei Weil am Rhein (D) abgeschätzten Frachten von ⁵⁴Mn und ¹³⁷Cs auf Schwebestoffen. ¹³⁷Cs wurde fast jeden Mo-



Figur 7:
Monatliche Frachten von ⁵⁴Mn, ¹³⁷Cs, ¹³¹I, ¹⁷⁷Lu und ²²³Ra 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. Da der Abfluss im Juli sehr hoch war, können die Frachten überschätzt werden, was zu dem hohen Wert von ⁵⁴Mn führt, der scheinbar grösser ist als die Abgaben der KKW. Im November wurden 2 Proben genommen (N-1: Anfang und N-2: Ende Monat), dafür keine im Dezember.

nat nachgewiesen, auch diese Ergebnisse werden wiederum primär auf die Remobilisierung von ¹³⁷Cs aus dem Unfall im KKW Tschernobyl zurückgeführt. ⁵⁴Mn wurde in 7 Proben gemessen, mit einem Maximum im Juli und darauffolgender stetiger Abnahme ⁵⁸Co und ⁶⁰Co wurden nicht nachgewiesen. Zusätzlich zu den relativ langlebigen Radionukliden konnten in den Stichproben von Weil am Rhein (D) auch die kurzlebigen Radionuklide ¹³¹I (Halbwertszeit: 8 Tage), ¹⁷⁷Lu (Halbwertszeit: 6.7 Tage) und ²²³Ra (Halbwertszeit: 11.4 Tage) nachgewiesen werden (ebenfalls Figur 7), welche in der Nuklearmedizin eingesetzt werden.

Fische und Wasserpflanzen in Aare und Rhein

Die Fisch- und Wasserpflanzenproben (ohne Wurzeln) werden unmittelbar stromabwärts der Kernkraftwerke entnommen. Die Fische werden filetiert und homogenisiert. Die Wasserpflanzenproben werden gereinigt, um eine Partikelkontamination mit Radionukliden zu vermeiden, und homogenisiert. Die Fisch- und Wasserpflanzenproben werden vor der Analyse gefriergetrocknet. Die spezifische Aktivität dieser Proben wird in Bezug auf das Trockengewicht angegeben.

Fische: Im Jahr 2021 wurden Fische aus der Aare bei Aarberg (gefangen am 10.02.2021), Schönenwerd (03.09.2021), Döttingen (09.05.2021) und aus dem Rhein bei Augst (03.11.2021) analysiert. Bei allen Fischproben wurde natürliches ⁴⁰K gefunden (431-708 Bq/kg). Es wurden keine künstlichen Radionuklide nachgewiesen.

Wasserpflanzen: Am 13.10.2021 wurden Wasserpflanzen oberhalb der Station in Hagneck, im Klingnauer Stausee, und im Rhein bei Möhlin sowie am 17.11.2021 aus der Aare bei Erlinsbach entnommen. In keiner der Proben wurden künstliche Radionuklide nachgewiesen, aber natürliches ⁴⁰K (303- 374 Bq/kg).

Grundwasser bei Aarberg, Schönenwerd, Böttstein und Muttenz

Am 18.10.2021 wurden wurden die Grundwasserströme bei Aarberg (Pumpwerk Römerstrasse II, in der Nähe der Überwachungsstation Hagneck), bei Böttstein (Pumpwerk Schulhaus, unterhalb des KKW Beznau), im Hardwald bei Muttenz (Grundwasserbrunnen 16 der Hardwasser AG) und am 17.11.2021 bei Schönenwerd (Pumpwerk Aarefeld in Gretzenbach) beprobt. Dabei werden die Radionuklide aus 150L Grundwasser analog zu den Flusswasserproben vor der Analyse angereichert und analysiert. Es wurden keine künstlichen Radionuklide nachgewiesen (Bestimmungsgrenzen 0.05 - 1 mBq/L).

URAnet aqua:

Automatisches Messnetz Flusswasser

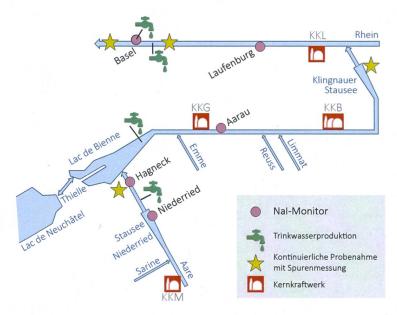
P. Steinmann, M. Müller, D. Lienhard, S. Estier Sektion Umweltradioaktivität, URA / BAG, Bern

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 im Flusswasser nicht nachgewiesen werden. Die Verfügbarkeit der Messsonden war 2021 hoch.

Das Messnetz und seine Aufgaben

Das Messnetz URAnet aqua überwacht kontinuierlich und automatisch das Flusswasser 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 (Aarau und Laufenburg).



Figur 1:
Standorte der Nal-Monitore, EAWAG-Stationen für Spurenmessungen (Hagneck, Klingnau und Pratteln), Rheinüberwachungsstation
RüS Weil a.Rh., Entnahmestellen von Trinkwasser aus Bielersee und Rhein (Pratteln und Basel) sowie aus Uferfiltrat (Aare vor Bielersee).

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. Die Aufgabe der neuen automatischen Messsonden ist es starke Erhöhungen von Radioaktivität im Flusswasser rasch zu erkennen. Die tiefe Nachweisgrenze erlaubt es eine untere Meldeschwelle in Grössenordnung der Immissionsgrenzwerte für Gewässer aus der revidierten Strahlenschutzverordnung zu setzen. Für 137Cs, 60Co und 131I ist die untere Meldeschwelle auf 10 Bq/l gesetzt. Eine zweite Schwelle mit Alarmauslösung basiert auf dem Dosisgrenzwert für Personen aus der Bevölkerung von 1 mSv/Jahr. Die Überlegung dabei ist, dass bei der Nutzung des Flusswassers als Trinkwasser der Dosisgrenzwert eingehalten ist, wenn getroffene Massnahmen spätestens nach einem Monat greifen. Für ¹³⁷Cs und ⁶⁰Co liegt die obere Radioaktivitätsschwelle bei 500 Bq/l; für 131 etwas tiefer bei 250 Bq/l. Bei Überschreitung der unteren Meldeschwelle wird die zuständige Stelle Bundesamt für Gesundheit (BAG) am sowie die Nationale Alarmzentrale (NAZ) benachrichtigt. Das BAG verifiziert die Messwerte, eruiert die Ursache einer allfälligen Kontamination. Die NAZ informiert die betroffenen Kantone. Bei Überschreitung der zweiten Schwelle ordnet die NAZ nach Rücksprache mit dem BAG die nötigen Massnahmen an. Die automatischen Messsonden sind komplementär zu den monatlichen Messungen der EAWAG (siehe Figur 1), welche mit einer mehr als tausendmal tieferen Nachweisgrenze auch geringste Abgaben der Kernkraftwerke erfassen können (Kap. 4.4).

Messtechnik

Die eingesetzten Sonden enthalten 3" Nal-Detektoren, welche im Wasser eine «Sichtweite» von rund einem Meter haben. Die Nal-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 (1 Bg/l für ¹³⁷Cs). Bei der Detektion von kleinsten Konzentrationen von 131 (< 10 Bq/l) ist eine genauere Analyse nötig, da die stärkste Gammalinie von 131 (Energie 364 keV) nahe bei der stärksten Linie des natürlichen 214Pb (352 keV) liegt. Da die Energiekalibrierung bei NaI Kristallen abhängig von der Temperatur schwanken kann, ist es daher möglich, dass die 352 keV-Linie der Radontochter ²¹⁴Pb fälschlicherweise dem künstlichen ¹³¹I zugerechnet wird.

Verfügbarkeit der Messsonden und Messergebnisse 2021

Die Verfügbarkeit der Sonden, d.h. das Vorhandensein von 10-Minuten-Spektren, ist in Tabelle 1 zusammengefasst. Generell sind diese Werte hoch. Die «Uptime» entspricht der Zeit, in der die Alarmfunktion des Messnetzes gewährleistet war. Werte von 99.9% in Tabelle 1 bedeuten, dass die Sonden nur wenige Stunden im Jahr nicht einsatzbereit waren und zwar während den jährlichen Messungen zur Konstanzprüfung oder bei der Reinigung. Zwei Sonden hatten etwas längere Ausfälle: Die Sonde bei Aarau vom 19. bis zum 27. Januar 2021 für acht Tage durch eine Panne bei der Datenübertragung und die Sonde in Hagneck vom 1. bis am 8. November 2021 für sieben Tage aufgrund eines gerissenen Kabels. Bei den auf radenviro.ch publizierten Tagesmittelwerten ist der Anteil fehlender Werte etwas höher, als die in der Tabelle genannten Uptime-Angaben. Der Grund dafür ist, dass die Sonde beim Fehlen eines einzigen 10-Minuten Wertes kein Tagesmittelwert rechnet. Die Nal-Detektoren des URAnet aqua Messnetzes konnten 2021 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. Das ist teilweise auch in den Kurven der Tagesmittelwerte auf radenviro.ch sichtbar.

Tabelle 1: Verfügbarkeit (Uptime) der Nal-Wassersonden 2021

Station	Uptime	Inbetriebnahme
Niederried	99.9%	Juni 2014
Hagneck	98.1%	Juni 2015
Aarau	97.8%	Juni 2014
Laufenburg	99.9%	Januar 2015
Basel	99.9%	Juli 2013

Tritium-Monitoring

(Kanton Bern und Raum Leibstadt)

Th. Stocker, R. Purtschert, T. Wagner

Abt. Klima- und Umweltphysik, Physikalisches Institut Universität Bern, Sidlerstrasse 5, BERN

Zusammenfassung

Im Jahr 2021 setzte die Abteilung für Klima- und Umweltphysik (KUP) der Universität Bern das Monitoring von Tritium (³H) in Fliessgewässern und im Niederschlag an ausgewählten Standorten im Kanton Bern fort. Das Monitoring wurde 2017 im Auftrag der BKW Energie AG (BKW) und des Kantons Bern sowie mit Unterstützung des Bundesamtes für Gesundheit (BAG) begonnen und in dieser Partnerschaft bis zum 31.12.2019 durchgeführt. Seit dem 1.1.2020 wird das Tritium-Monitoring vom BAG und der KUP in reduzierter Form weitergeführt. Die höchsten Tritiumwerte wurden auch im Jahr 2021 im Niederschlag aus dem Raum Niederwangen gemessen.

Hintergrund

Tritium (³H) ist eines der Radionuklide, die in der Schweiz durch das BAG überwacht werden. Im Hinblick auf die Stilllegung des Kernkraftwerks Mühleberg (KKM), welche am 20.12.2019 erfolgte, besteht u.a. aufgrund der Richtlinien des Eidgenössischen Nuklearsicherheitsinspektorats (ENSI) zur Stilllegung von Kernanlagen (ENSI, 2014, Art. 4.5 und 5.4.4) der Bedarf, Tritium im Wasser der Aare in hoher zeitlicher Auflösung zu messen. Um den Zustand vor der Stilllegung des KKM bezüglich Tritium in den Fliessgewässern zu charakterisieren, führte die KUP von Anfang 2017 bis Ende 2019 Tritium-Messungen durch, die eine Detektion von allfälligen späteren Veränderungen ermöglichen. Tritium wurde dabei jährlich in mehr als 900 Wasserproben gemessen.

Tabelle 1:
Tritium-Messungen Januar bis Dezember 2021 nach Art oder Entnahmeort der Probe

Art oder Entnahmeort der Probe	Anzahl
Aare Mühleberg Rewag	328
Niederschlag Niederwangen	25
Stadtbach Niederwangen	26
Niederschlag Physikalisches Institut	12
Rhein flussabwärts vom KKL	143
Standards/Nulleffekt/Vergleichsmessungen	104
The state of the s	Total, C20

Probenahmen

Im Jahr 2021 wurden im Rahmen dieses Monitorings die folgenden Standorte beprobt:

- Aare flussabwärts vom KKM (Tagesmischproben vom Standort Mühleberg-Rewag)
- Niederschlag Niederwangen (Sammelproben, Standort 240 m östlich der Firma mb-microtec)
- Stadtbach Niederwangen (Stichproben alle zwei Wochen)
- Niederschlag vom Dach des Physikalischen Instituts der Universität Bern (Sammelproben)

Während der Jahresrevision des Kernkraftwerks Leibstadt (KKL) wurden ausserdem Tagesmischproben aus dem Rhein entnommen und auf ihren Tritiumgehalt hin untersucht.

Die in den Vorjahren beprobten Aare-Standorte Eymatt, Wynau und Thun werden seit 2020 nicht mehr beprobt.

Tabelle 1 (links) zeigt die im Jahr 2021 gemessenen Proben im Einzelnen.

Die täglichen Probenahmen aus der Aare am Standort Mühleberg sowie aus dem Rhein flussabwärts vom KKL erfolgten mit Hilfe von automatischen Probenehmern vom Typ ISCO 6712, welche in regelmässigen Abständen einige Milliliter Flusswasser in Probeflaschen abfüllen, sodass jede Probeflasche eine Mischprobe eines 24-Stunden-Intervalls enthält.

Im Raum Niederwangen wurde alle zwei Wochen eine Stichprobe aus dem Stadtbach entnommen und gemessen. Seit Herbst 2020 erfolgen diese Probenahmen wieder regelmässig alle zwei Wochen. Der Niederschlag (Regen bzw. Schnee), der unweit der Firma MB Microtec in Niederwangen in einem Regensammler erfasst wird, wurde alle zwei Wochen gemessen, sofern eine ausreichende Menge Niederschlag vorlag.

Nachweis und Messung des Tritiumgehalts

Der Tritiumgehalt der Wasserproben wurde indirekt über den radioaktiven Zerfall des in den Proben enthaltenen Tritiums bestimmt. Tritiumkerne sind instabil und zerfallen mit einer Halbwertszeit von $4'500 \pm 8$ Tagen (12.32 Jahren) unter Emission eines Elektrons und eines Antineutrinos in das Heliumisotop 3 He (Beta-Minus-Zerfall):

$$^{3}_{1}H \rightarrow ^{3}_{2}He^{+} + e^{-} + \overline{\nu}_{e}$$

Zum Nachweis und zur Ladungsmessung der in den Wasserproben emittierten Elektronen kam wie in den Vorjahren ein Liquid-Szintillationsmessgerät vom Typ Aloka LSC-LBIII zum Einsatz, welches im Tieflabor des Physikalischen Instituts der Universität Bern installiert ist. Die Nachweisgrenze liegt bei 4 Tritium Units (TU, entsprechend 0.5 Bq/L); womit auch die natürliche Hintergrundaktivität von ³H im Niederschlag bestimmt werden kann

Messergebnisse Januar bis Dezember 2021

Standort Mühleberg Rewag (Aare)

Die Tritium - Messwerte des Wassers vom Standort Mühleberg Rewag bewegten sich grösstenteils relativ stabil in einem Band zwischen 5 und 15 TU (entsprechend 0.6 - 2 Bq/L). Leider stand der Autosampler während des Hochwassers im Juli 2021 vollständig unter Wasser und war nicht zugänglich, sodass die Messreihe im Juli 2021 eine Lücke aufweist. Ein paar Tage nach der erneuten Inbetriebnahme trat ein technischer Defekt auf, was zu einer zweiten, etwas kleineren Messlücke führte.

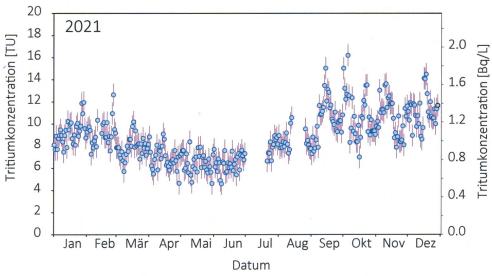
Standorte Niederwangen

Im Raum Niederwangen wurden 25 Messungen am lokalen Niederschlag durchgeführt (Figur 2). Die Messwerte der Schnee- oder Regenwasserproben lagen bei maximal ca. 1'200 TU.

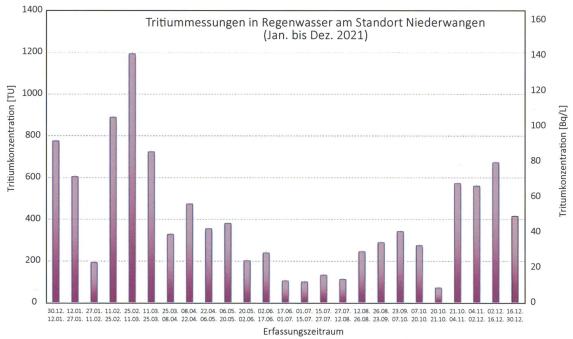
Seit Herbst 2020 wird in Niederwangen auch der Stadtbach wieder regelmässig alle zwei Wochen beprobt. Die Messwerte lagen im langjährigen Mittel, welches 110 TU beträgt (Figur 3).

Standort Physikalisches Institut, Stadt Bern (Regenwasser)

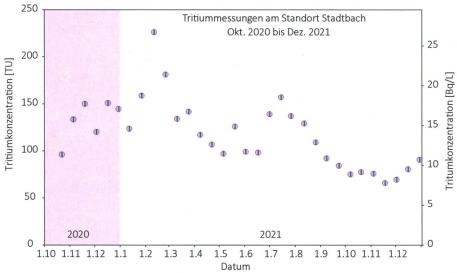
Die Tritiumkonzentration im Niederschlag im Raum Bern ist generell höher als in der Aare und auch höher als in Niederschlägen andernorts in der Schweiz. Dies ist auf lokale gasförmige Emissionen zurückzuführen. Die im Jahr 2021 gemessenen Monatsproben wurden auf dem Dach des Physikalischen Instituts der Universität Bern gesammelt und liegen im Bereich 13 - 44 TU.



Figur 1:
Tritium-Messwerte Mühleberg Rewag. Die fehlenden Messwerte im Sommer 2021 sind auf das Hochwasser bzw. einen technischen Defekt des Probenehmers zurückzuführen.



Figur 2: Tritium-Messwerte im Niederschlag von Niederwangen (Probenahmen in der Regel alle 2 Wochen).



Figur 3: Tritium-Messwerte am Stadtbach Niederwangen (Stichproben alle 2 Wochen).

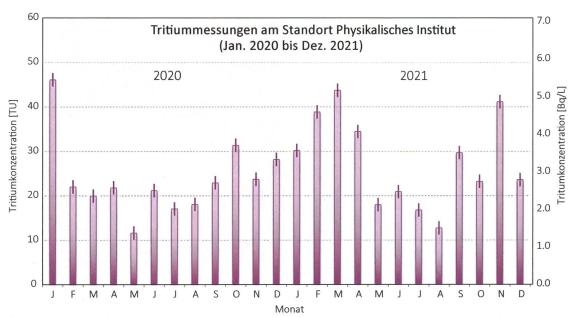
Standort Leibstadt (Rhein)

Von Mitte Mai bis Anfang Dezember 2021 wurde stromabwärts vom Kernkraftwerk Leibstadt (KKL) vorübergehend ein automatischer Probenehmer betrieben, um den Tritiumgehalt des Rheins vor, während und nach dem Revisionsstillstand zu ermitteln, welcher ursprünglich vom 24.06.2021 bis 26.10.2021 terminiert war, aber bis Anfang Dezember 2021 dauerte. Es wurden Tagesproben mit einem Sampling-Intervall von je 60 Minuten entnommen. Kurz nach Revisionsbeginn zeichnete sich ein deutlicher Anstieg von ca. 10 TU auf ca. 80 TU ab (Figur 5). In den darauffolgenden Wochen gingen die Messwerte wieder auf Werte um 10 TU zurück.

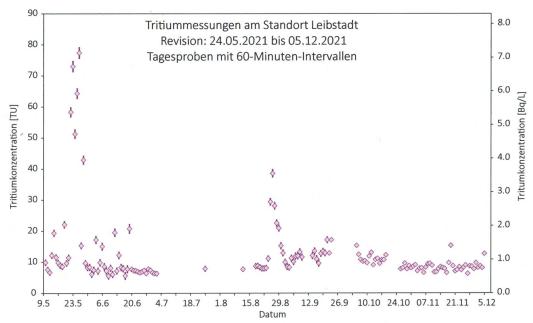
Leider wurde jedoch im Juli 2021 die gesamte am Rhein-Ufer aufgestellte temporäre Messstation vom Hochwasser fortgespült. Trotz intensiven Nachforschungen konnte sie nicht wieder aufgefunden werden, sodass die Messreihe im Sommer 2021 eine grosse Lücke aufweist. Im Juli und August konnten lediglich zwei Stichproben im Rahmen eines Augenscheins entnommen werden. Am 20. August 2021 wurde jedoch ein neuer Probenehmer in Betrieb genommen, der in einem Betonschacht untergebracht ist und im Oktober mit einem verlängerten Ansaugrohr ausgestattet wurde. Auf diese Weise soll gewährleistet werden, dass in den

nächsten Jahren auch bei Hoch- und Niedrigwasser regelmässige Proben entnommen werden können.

In Figur 5 ist Ende August 2021 deutlich ein zweiter Peak erkennbar. Dieser ist wahrscheinlich auf die Revision des KKL Beznau zurückzuführen, welche am 6. August 2021 begonnen hatte.



Figur 4 :
Tritium-Messwerte des Regenwassers vom Dach des Physikalischen Instituts der Universität Bern (Monatsproben).



Figur 5:
Tritium-Messwerte im Rhein stromabwärts vom Kernkraftwerk Leibstadt vor und während dem Revisionsstillstand. Die Messlücken sind auf das Hochwasser im Juli 2021 sowie den ab Ende September sehr tiefen Wasserstand des Rheins zurückzuführen.

Radioactivité du sol et de l'herbe

P.-A. Pittet, C. Pilloud, P. Froidevaux, F. Barraud, A. Bonnin, M. Straub Institut de radiophysique, CHUV, Grand Pré 1, Lausanne

S. Estier, P. Steinmann, A. Gurtner

Section de surveillance de la radioactivité, URA / OFSP, Berne

A. Pregler

Laboratoire Cantonal de Bâle, Kannenfeldstr. 2, Basel

M. Burger, S. Röllin, R. Holzer, H. Sahli, M. Astner Labor Spiez, Office fédéral de la protection de la population, 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.

Introduction

Le 90Sr et le 137Cs ont été largement dispersés dans l'environnement suite aux essais nucléaires des années 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 90Sr est facilement transféré du sol aux plantes, puis tout au long de la chaine alimentaire, et pourra finalement se trouver dans les tissus osseux [1] et les dents [2]. La mesure du 90Sr dans des échantillons de sol, d'herbe, de céréale, de lait, de vertèbre et de dents de lait est effectuée en Suisse depuis les années soixante. La

figure 3 du chapitre 1.1 illustre l'évolution des moyennes annuelles obtenues depuis plus de soixante ans pour chaque type d'échantillon correspondant à un compartiment de l'environnement. Après avoir atteint des valeurs maximales au milieu des années soixante, une décroissance continue de l'activité en 90Sr est observée depuis l'arrêt des essais nucléaires atmosphériques. L'utilisation de ces données expérimentales a permis de montrer que les demi-vies biologiques de ce radioélément dans chacun des compartiments étaient très similaires avec une valeur moyenne de 13.1 \pm 2 ans [3]. Le 137 Cs va aussi passer du sol aux végétaux et rejoindre la chaine alimentaire. Au contraire du 90Sr, il se retrouvera principalement dans les tissus musculaires des vertébrés et sera éliminé plus rapidement que le strontium.

Résultats et discussion

Les résultats des mesures pour les sols sont présentés dans le Tableau 1. La présence du 90Sr et des actinides Pu et Am est principalement due aux retombées des essais nucléaires atmosphériques des années 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 90Sr sont dans une gamme de 0.2 à 0.6 Bq/kg sur le plateau suisse tandis que des valeurs supérieures à 1 Bq/kg peuvent être observées au Tessin ou sur les sites alpins. La même tendance est observée pour les actinides, avec des activités inférieures à 0.3 Bg/kg pour le plutonium et à 0.12 Bq/kg pour l'américium sur le plateau suisse, des valeurs plus élevées pour les sites en altitude, et une activité maximale relevée à Stabio au sud des Alpes. Les rapports ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu proches de 0.41 (voir le chapitre 7.2, mesures de plutonium et d'américium) confirment que cette contamination est due aux essais nucléaires des années soixante.

La situation est plus complexe dans le cas du ¹³⁷Cs, car le passage du nuage radioactif émis lors de l'accident de Tchernobyl en 1986 a provoqué une déposition supplémentaire dont la répartition géographique n'est pas uniforme. De fortes précipitations s'étant produites au Tessin lors du passage du nuage, c'est dans cette région que les dépôts les plus importants ont eu lieu et où sont mesurées actuellement les plus fortes activités (19 à 172 Bq/kg). Le passage du nuage de Tchernobyl a également touché le nordest de la Suisse, les valeurs relevées à Arenenberg (20.1 Bq/kg) et Güttingen (14.5 Bq/kg) étant supérieures à celle obtenues sur les autres sites du plateau suisse (5 à 13 Bq/kg). Toutes les activités mesurées sont toutefois restées dans les valeurs usuellement observées et en constante décroissance depuis l'accident de Tchernobyl ainsi qu'illustré par la figure 2 du chapitre 1.1 . Pour le 60Co et le 134Cs, deux radioéléments produits artificiellement dans les réacteurs nucléaires, aucune activité supérieure à la limite de détection n'a été décelée. Enfin, c'est pour le 40K, un des trois isotopes constituant le potassium naturel, que l'activité mesurée 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 ⁴⁰K, suivi du ⁷Be, qui est formé par l'action du rayonnement solaire sur les couches supérieures de l'atmosphère. Les activités en ⁶⁰Co et ¹³⁴Cs sont restées inférieures à la limite de détection. L'activité en ⁹⁰Sr de l'herbe peut varier fortement selon la période de coupe pour un même site de prélèvement, l'incorporation de certains

éléments (Ca, K) et radioéléments (¹³⁷Cs et ⁹⁰Sr) étant dépendante de la croissance végétale [4]. Toutefois, l'activité en ⁹⁰Sr de l'herbe est principalement fonction de celle du sol, les valeurs les plus importantes étant observées en altitude et surtout au Tessin (21.5 Bq/kg), tandis que pour les échantillons collectés sur le plateau, les activités en ⁹⁰Sr ne dépassent pas 1.5 Bq/kg. La même tendance est observée pour le ¹³⁷Cs, dont les activités les plus élevées sont mesurées au Tessin.

Conclusions

Les mesures de la radioactivité dans les sols et les herbes en Suisse en 2021 présentent des valeurs 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 du plateau, 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.

Références

- [1] Froidevaux, P. et al., Retention half times in the skeleton of plutonium and ⁹⁰Sr from aboveground nuclear tests: A retrospective study of the Swiss population. Chemosphere 2010, 80, 519
- [2] Froidevaux, P.; Geering, J.-J.; Valley, J.-F. ⁹⁰Sr in deciduous teeth from 1950 to 2002: The Swiss experience. Sci. Total Environ. 2006, 367, 596
- [3] Froidevaux, P. et al., Radionuclides in the Environment in Switzerland: A Retrospective Study of Transfer from Soil to the Human Body. Chimia 2020, 74, 984-988.
- [4] Froidevaux, P. et al., chap. 4.6 de Radioactivité de l'environnement et doses de rayonnement en Suisse, 2005, OFSP.

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 2021 (Bq/kg matière sèche, fraction < 2 mm).

Canton / Lieu	n	⁴⁰ K	⁶⁰ Co	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	90Sr	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am
AG (Voisinage KKB)	2	444 ± 33	< 0.5	< 0.5	12.7 ± 1	0.28 ± 0.10	0.185 ± 0.018 0.175 ± 0.014	0.077 ± 0.006 0.069 ± 0.006
AG (KKB in-situ)	2	310 ± 23			8.1 ± 0.7			
AG (PSI)	1	347 ± 38	< 0.7	< 0.7	8.8 ± 1.1	0.19 ± 0.07	0.142 ± 0.015 0.140 ± 0.012	0.049 ± 0.006 0.055 ± 0.005
AG (PSI in-situ)	1	258 ± 27			5.1 ± 0.7			
AG (ZWILAG)	1	426 ± 45	< 0.6	< 0.6	9.0 ± 1.1	0.35 ± 0.10	0.160 ± 0.010	0.074 ± 0.006
AG (ZWILAG in-situ)	1	308 ± 32			6.3 ± 0.8			
AG (Vois. KKL)	4	398 ± 21	< 0.8	< 0.7	12.7 ± 0.7	0.59 ± 0.14	0.201 ± 0.017 0.197 ± 0.014	0.078 ± 0.007 0.080 ± 0.010
AG (KKL in-situ)	4	299 ± 15			7.5 ± 0.5			
AG/SO (Vois. KKG)	4	402 ± 21	< 0.8	< 0.7	11.5 ± 0.7	0.51 ± 0.12	0.233 ± 0.023 0.260 ± 0.016	0.106 ± 0.007 0.115 ± 0.012
AG/SO (KKG in-situ)	4	283 ± 15			6.4 ± 0.4			
BE (Voisinage KKM)	7	668 ± 26	< 0.7	< 0.6	7.2 ± 0.3	0.33 ± 0.10	0.151 ± 0.016 0.150 ± 0.013	0.060 ± 0.006 0.051 ± 0.007
BE (KKM in-situ)	7	538 ± 21			5.6 ± 0.3			
BE (Mürren) 1)	1	495 ± 21	< 0.3	< 0.4	11.8 ± 0.8	1.8 ± 0.4	0.38 ± 0.01	0.40 ± 0.05^{3}
BE (Gimmelwald)	1	313 ± 14	< 0.3	< 0.3	11.0 ± 0.7	2.7 ± 0.6	0.61 ± 0.03	0.37 ± 0.03^{3}
BE (Fahrni) ²⁾	1	446 ± 19	< 0.3	< 0.3	12.4 ± 0.8	2.5 ± 0.7	0.56 ± 0.02	0.35 ± 0.03^{3}
BE (Diesse/Jura)	1	455 ± 20	< 0.3	< 0.3	12.7 ± 0.8	0.9 ± 0.2	0.45 ± 0.02	$0.23 \pm 0.03^{3)}$
BL (Sissach)	1	546 ± 26	< 0.2	< 0.2	16.5 ± 0.9	4.79 ± 0.96	Name of the Control o	
FR (Posieux)	1	381 ± 41	< 0.7	< 0.6	5.4 ± 0.8	0.37 ± 0.10	0.204 ± 0.022 0.194 ± 0.015	0.080 ± 0.008 0.068 ± 0.010
FR (Posieux in-situ)	1	315 ± 33			3.5 ± 0.5		and the control of th	
GE (Vois. CERN)	5	437 ± 21	< 0.9	< 0.7	5.8 ± 0.3	0.20 ± 0.06	0.108 ± 0.011	0.039 ± 0.006
GE (CERN in-situ)	5	393 ± 18			4.0 ± 0.3			
TG (Arenenberg)	1	396 ± 42	< 0.5	< 0.5	20.1 ± 2.1	0.59 ± 0.15	0.174 ± 0.010	0.072 ± 0.006
TG (Arenenberg in-situ)	1	316 ± 33		1010-1020-00-00	13.9 ± 2.0			
TG (Güttingen)	1	369 ± 39	< 0.5	< 0.5	14.5 ± 1.5	0.34 ± 0.08	0.155 ± 0.009	0.058 ± 0.005
TG (Güttingen in-situ)	1	259 ± 27			11.0 ± 1.1			Em substitution and the fall of the second
TI (Centovalli)	1	417 ± 22	< 0.2	< 0.2	66.7 ± 3.4	6.45 ± 1.29		
TI (Prato Leventina)	1	502 ± 27	< 0.2	< 0.2	18.8 ± 1.1	2.51 ± 0.50		BOLL III. MAY AND WOOD THOO YAS POLITIC
TI (Sessa)	1	670 ± 36	< 0.2	< 0.2	63.7 ± 3.4	4.72 ± 0.94		
TI (Cadenazzo)	1	675 ± 72	< 1.0	< 0.9	75.8 ± 7.8	0.79 ± 0.18	0.120 ± 0.009	0.052 ± 0.005
TI (Cadenazzo in-situ)	1	525 ± 54			42.9 ± 4.5	THE STATE OF		
Ti (Caslano)	1	612 ± 64	< 0.6	< 0.6	69.5 ± 7.1			
Ti (Caslano in-situ)	1	525 ± 54	200		48.8 ± 5.0			
TI (Stabio)	1	646 ± 67	< 0.6	< 0.6	172 ± 17.3	0.64 ± 0.16	0.567 ± 0.026	0.323 ± 0.015
TI (Stabio in-situ)	1	584 ± 60			135 ± 19.2			

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.

n = nombre d'échantillons; ¹⁾ alpage (Allmendhubel, 1'900 m); ²⁾ bord des Alpes (850 m); ³⁾ méthode non accréditée

Tableau 2: Activité en ⁷Be, ⁴⁰K, ⁶⁰Co, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs et ⁹⁰Sr dans des échantillons d'herbe prélevés en Suisse en 2021 lors de deux saisons (printemps et automne) de coupe (Bq/kg de matière sèche).

Canton/Lieu	n	⁷ Be	⁴⁰ K	⁶⁰ Co	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	90Sr
AG (Voisinage KKB)	4	162 ± 11	691 ± 39	< 1.1	< 1.1	< 1.1	0.35 ± 0.08 ³⁾ 0.63 ± 0.14 ⁴⁾
AG (PSI)	2	307 ± 27	413 ± 34	< 1.1	< 1.1	0.9 ± 0.5	$\begin{array}{c} 0.34 \pm 0.08^{3)} \\ 0.85 \pm 0.19^{4)} \end{array}$
AG (ZWILAG)	2	207 ± 18	741 ± 58	< 1.1	< 1.1	< 1.1	0.55 ± 0.12 ³ 0.79 ± 0.19 ⁴
AG (Voisinage KKL)	8	175 ± 7	660 ± 27	< 1.1	< 1.1	1.4 ± 0.2	$\begin{array}{c} 0.61 \pm 0.13^{3)} \\ 0.80 \pm 0.17^{4)} \end{array}$
AG/SO (Voisinage KKG)	8	163 ± 8	799 ± 32	< 1.1	< 1.1	0.7 ± 0.4	0.38 ± 0.10 ³ 0.78 ± 0.18 ⁴
BE (Voisinage KKM)	8	134 ± 7	845 ± 33	< 1.1	< 1.1	0.7 ± 0.5	0.42 ± 0.12^{3} 0.40 ± 0.09^{3} 1.02 ± 0.21^{4}
BE (Lauterbrunnen)	1	12 ± 2.3	516 ± 46	< 0.4	< 0.3	1.1 ± 0.2	1.10 ± 0.10
BE (Mürren) 1)	1	341 ± 54	891 ± 77	< 0.4	< 0.3	< 0.2	2.90 ± 0.30
BE (Gimmelwald)	1	186 ± 29	637 ± 55	< 0.3	< 0.2	0.2 ± 0.1	1.90 ± 0.20
BE (Fahrni) 2)	2	215 ± 29	747 ± 46	< 0.5	< 0.3	< 0.3	0.61 ± 0.06
BE (Diesse/Jura)	2	333 ± 37	1'415 ± 86	< 0.5	< 0.4	0.4 ± 0.1	0.91 ± 0.07
BL (Sissach)	1	259 ± 19	675 ± 26	< 0.3	< 0.2	0.5 ± 0.3	0.24 ± 0.05
FR (Posieux)	2	108 ± 10	944 ± 75	< 1.1	< 1.1	< 1.1	0.39 ± 0.09^{3}
GE (Voisinage CERN)	4	163 ± 10	784 ± 46	< 1.1	< 1.1	< 1.1	0.84 ± 0.17 ⁴⁾
TG (Güttingen)	_2	167 ± 14	1'009 ± 77	< 1.1	< 1.1	< 1.1	0.46 ± 0.10 ³⁾
Ti (Centovalli)	1	377 ± 23	1'084 ± 53	< 0.3	< 0.3	13.9 ± 1.0	21.5 ± 4.30
TI (Prato Leventina)	1	292 ± 18	1'148 ± 56	< 0.3	< 0.2	2.8 ± 0.4	5.90 ± 1.20
TI (Sessa)	1	222 ± 15	854 ± 47	< 0.4	< 0.2	3.8 ± 0.5	4.70 ± 0.90
TI (Cadenazzo)	2	388 ± 30	1'068 ± 81	< 1.1	< 1.1	3.0 ± 0.5	2.94 ± 0.58 ³⁾
Ti (Stabio)	1	292 ± 31	555 ± 61	< 0.9	< 0.8	10.6 ± 1.3	

n = nombre d'échantillons; ¹⁾ alpage (Allmendhubel); ²⁾ bord des Alpes, 850 m;

³⁾ coupe de printemps; 4) coupe d'automne.

