

**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:** - (2002)

**Rubrik:** Umwelt

### **Nutzungsbedingungen**

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. 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. [Siehe Rechtliche Hinweise.](#)

### **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. [Voir Informations légales.](#)

### **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. [See Legal notice.](#)

**Download PDF:** 26.04.2025

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

## 4. Umwelt

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

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

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

#### Résumé

*Durant l'année 2002, seules des traces de radioactivité artificielle ont été détectées dans l'air et dans les précipitations, à l'exception du tritium, observé en plus grande quantité dans les pluies au voisinage des entreprises utilisatrices de tritium ainsi que dans les eaux de lavage des fumées des usines d'incinération.*

#### 4.1.1 Air

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

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

- Collecteur d'aérosols à moyen débit, pour le radionucléide <sup>137</sup>Cs, échantillon mensuel : 2 micro-Bq/m<sup>3</sup>
- Collecteur d'aérosols à haut débit, pour le radionucléide <sup>137</sup>Cs, échantillon hebdomadaire : 0.5 micro-Bq/m<sup>3</sup>
- RADAIR
  - activité bêta nette, pour des durées de collection et de mesure de 30 min : 0.5 Bq/m<sup>3</sup>
  - moniteur spectroscopique émetteurs γ (<sup>137</sup>Cs) pour un temps d'accumulation de 24 h : 0.01 Bq/m<sup>3</sup>

#### Voisinage des centrales nucléaires

(voir aussi Chap. 8).

Les filtres aérosols des environs des centrales nucléaires de Mühleberg et Gösgen-Däniken n'ont pas présenté de radioactivité artificielle mesurable durant l'année 2002, l'activité des radionucléides <sup>137</sup>Cs et <sup>60</sup>Co se situant en dessous des limites de détection de 2 à 3 micro-Bq/m<sup>3</sup>. Si les activités des <sup>137</sup>Cs et <sup>60</sup>Co ont été inférieures aux limites de détection dans les filtres de la centrale de Leibstadt, des traces de <sup>65</sup>Zn (2.4 micro-Bq/m<sup>3</sup>) et de <sup>110m</sup>Ag (1.2 micro-Bq/m<sup>3</sup>)<sup>1)</sup> ont été mesurées au mois de février ainsi que des traces de <sup>131</sup>I (2.1 micro-Bq/m<sup>3</sup>) au mois de juillet. Le <sup>65</sup>Zn et l'<sup>110m</sup>Ag observés en février sur les filtres de la centrale de Leibstadt proviennent certainement de l'usine d'incinération des déchets de l'Institut Paul Scherrer (PSI). En effet, des valeurs de l'ordre de 6 micro-Bq/m<sup>3</sup> de <sup>65</sup>Zn et de l'ordre de 7 micro-Bq/m<sup>3</sup> d'<sup>110m</sup>Ag ont été mesurées à Klingnau/AG au cours de deux premières semaines de ce mois (voir plus bas)<sup>1)</sup>.

Seuls les radionucléides naturels <sup>7</sup>Be et <sup>210</sup>Pb ont pu être mis en évidence (valeurs comprises entre 0.7 et 2.4 et entre 0.5 et 4.8 mBq/m<sup>3</sup> respectivement).

#### Collecteurs d'aérosols à haut débit

La station de collection à haut débit d'Oberschrot/FR n'a pas fonctionné durant l'année 2002 en raison de transformations. Les filtres du collecteur d'aérosols à moyen débit de Fribourg ont donc été mesurés chaque semaine en remplacement (limite de détection pour le <sup>137</sup>Cs: 5 à 10 micro-Bq/m<sup>3</sup>).

Au cours des mois de juin et juillet, les filtres des collecteurs d'aérosols à haut débit du CERN ont présenté à 4 reprises des traces de <sup>24</sup>Na (T<sub>1/2</sub> = 15 h) allant de 9 à 42 micro-Bq/m<sup>3</sup> provenant des

<sup>1)</sup> Les limites pour l'air du domaine publique selon l'ORaP sont respectivement: 10, 3 et 100 Bq/m<sup>3</sup> pour le <sup>65</sup>Zn, l'<sup>110m</sup>Ag et le <sup>24</sup>Na.

accélérateurs de cet institut<sup>1)</sup>. A Klingnau (5.4 km au nord du PSI), des traces de  $^{65}\text{Zn}$ , d' $^{110\text{m}}\text{Ag}$  ont été détectées simultanément à 4 reprises en février et 1 fois en octobre. Les valeurs mesurées sont comprises entre 0.3 et 6.5  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$  pour le  $^{65}\text{Zn}$  et entre 0.5 et 8.6  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$  pour l' $^{110\text{m}}\text{Ag}$  et sont nettement inférieures aux limites d'immission (limites d'immission, CA/300, de 10  $\text{Bq}/\text{m}^3$  pour le  $^{65}\text{Zn}$  et de 3.3  $\text{Bq}/\text{m}^3$  pour l' $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ). Au cours des deux premières semaines de février où les valeurs de  $^{65}\text{Zn}$  et d' $^{110\text{m}}\text{Ag}$  sont les plus élevées, des traces de  $^{125}\text{Sb}$  de l'ordre de 1 à 2  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$  ainsi qu'une augmentation de la valeur du  $^{137}\text{Cs}$  ont également été détectées. L'ensemble de ces nucléides proviennent de la combustion de déchets dans l'usine d'incinération du PSI.

Durant le reste de l'année, ainsi que dans les autres stations, aucune radioactivité d'origine artificielle n'a été détectée, à l'exception de traces isolées de  $^{137}\text{Cs}$  atteignant au maximum 7  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ . Hormis la hausse observée à Klingnau en février, les autres augmentations des valeurs de  $^{137}\text{Cs}$  sont probablement dues à une remise en suspension de la déposition de Tchernobyl durant une plus longue période sèche.

Des valeurs comprises entre 0.8 et 6.2 et entre 0.1 et 2.8  $\text{mBq}/\text{m}^3$  ont été mesurées respectivement pour les nucléides naturels  $^7\text{Be}$  et  $^{210}\text{Pb}$ . Les valeurs mesurées dans les 4 stations de collection à haut débit en service sont représentées graphiquement sur les figures 1 à 4.

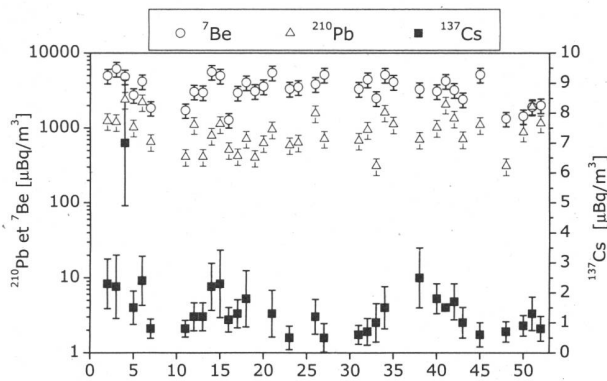


Fig. 1: HV2 Monte Ceneri / Ti

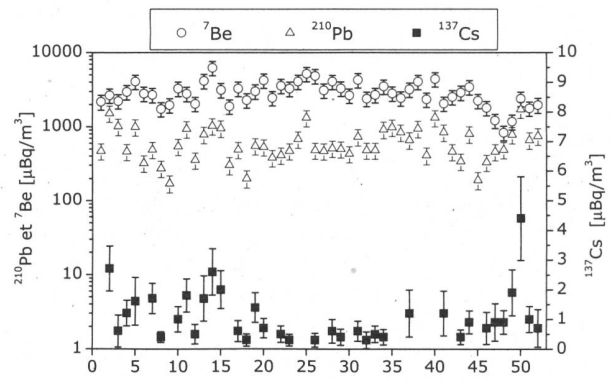


Fig. 2: HV3 Güttingen / TG

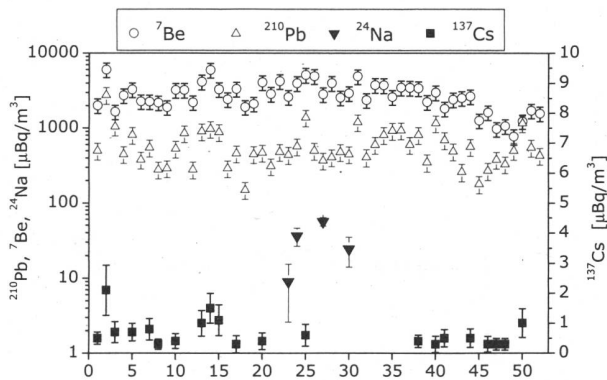


Fig. 3: HV4 CERN / GE

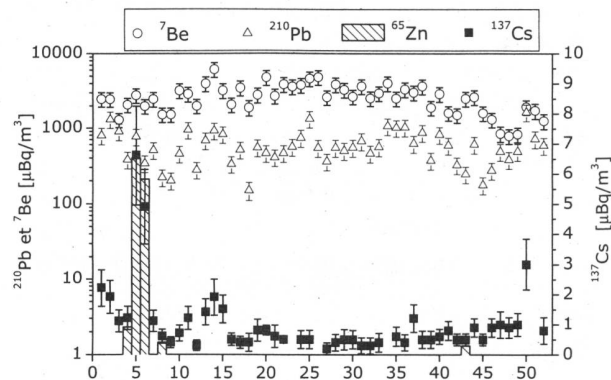


Fig. 4: HV5 Klingnau / AG

**Figures 1 à 4:** Collecteurs d'aérosols à haut débit (HVS):

- échelle logarithmique de gauche 1 - 10'000  $\text{mBq}/\text{m}^3$  radionucléides  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{24}\text{Na}$
- échelle linéaire de droite 1 - 10  $\text{mBq}/\text{m}^3$  radionucléides  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{65}\text{Zn}$

<sup>1)</sup> Les limites pour l'air du domaine public selon l'ORaP sont respectivement: 10, 3 et 100  $\text{Bq}/\text{m}^3$  pour le  $^{65}\text{Zn}$ , l' $^{110\text{m}}\text{Ag}$  et le  $^{24}\text{Na}$

## RADAIR: Réseau automatique de surveillance de l'air

Durant cette année, la partie informatique du réseau RADAIR a été complétée par l'intégration du traitement automatique des données des trois moniteurs pour la surveillance de l' $^{131}\text{I}$  gazeux. Ces moniteurs, situés à Fribourg, au PSI et à Lugano, étaient déjà en fonction depuis 1998, mais étaient raccordés seulement à une petite centrale provisoire.

Des nouveaux menus ont été implémentés dans l'application client déjà existante (Fig. 5). Avec le menu « Consultation des données » il est désormais possible de traiter, de valider et d'exporter ces données comme celles des moniteurs  $\alpha/\beta$ . En cas de défaillance, il est aussi possible d'effectuer un premier dépannage à distance à l'aide d'une fenêtre de télémaintenance.

Une carte permettant de distinguer en un clin d'œil les activités et les concentrations en  $^{131}\text{I}$  a également été implémentée (Fig. 6).

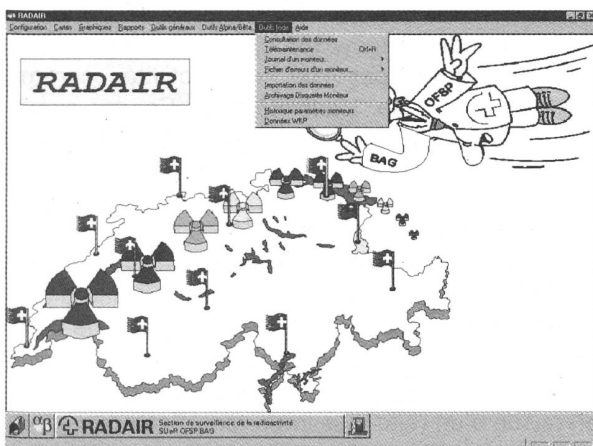


Fig. 5: Application client RADAIR (page d'accueil)

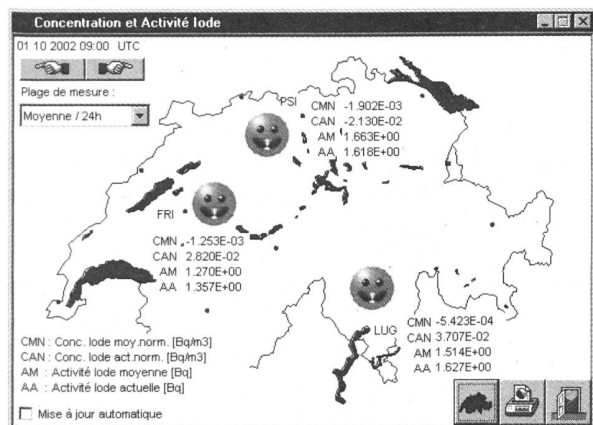


Fig. 6: Carte résumant la concentration et l'activité du  $^{131}\text{I}$ .

Les « sourires » et la couleur de ces « smilies » expriment que les concentrations en  $^{131}\text{I}$  ont été plus petites que le premier seuil d'alarme, fixé à 5 Bq/m<sup>3</sup>. Les opérateurs qui visualisent et valident ces données s'assurent que les concentrations moyennes en  $^{131}\text{I}$  ont été plus petites que la limite de détection, soit < 0.2 Bq/m<sup>3</sup>.

La partie aérosols a également été complétée, notamment pour l'exportation des graphiques. Il existe une fonction permettant d'exporter les données d'un graphique vers un fichier ASCII, lequel peut être repris dans n'importe quel tableur (Excel, Origin, etc.).

Depuis sa mise en fonction, le réseau de mesure RADAIR n'a pas décelé de radioactivité artificielle dans l'air plus grande que 0.6 Bq/m<sup>3</sup>. Le mécanisme de compensation  $\alpha/\beta$  a permis de s'assurer que les concentrations artificielles sont restées en dessous de la limite de détection de 0.5 Bq/m<sup>3</sup>, nonobstant les fortes fluctuations diurnes - nocturnes de radioactivité naturelle. Cette dernière, émanant du sol, est principalement influencée par les conditions météorologiques : le sol sec, humide ou gelé, la présence ou non du vent ou de précipitations ainsi que par la durée de l'inversion thermique au niveau du sol. La concentration maximale de radioactivité naturelle  $\alpha$  a été observée le 4 octobre à la station de la Chaux de Fonds avec 52 Bq/m<sup>3</sup>.

Le moniteur spectroscopique de la station de Fribourg a confirmé que les concentrations des principaux isotopes artificiels sont restées inférieures à la limite de détection de 0.01 Bq / m<sup>3</sup> pour un temps d'accumulation de 24 h.

Côté pannes et réparations, l'année a été très bonne puisque le taux de bon fonctionnement se situe entre 96 et 99 % suivant les stations, à l'exception du moniteur de Vaduz, qui a connu quelques défaillances dans le mécanisme d'avance du filtre déroulant.

### 4.1.2 Précipitations

Les échantillons de pluie ont été collectés aux environs des centrales nucléaires de Mühleberg, Leibstadt et Gösgen-Däniken ainsi que dans divers endroits de Suisse (Davos/GR, Cernier/NE, Fribourg, Locarno-Monti/TI et La Valsainte/FR) et mesurés chaque mois. Les résultats ne montrent aucune radioactivité artificielle, l'activité en  $^{137}\text{Cs}$ , p.ex., est inférieure à la limite de détection de 3 à 7 mBq/l. Des valeurs comprises entre 0.1 et 1.5 Bq/l ont été mesurées pour le  $^7\text{Be}$  naturel. Les activités en tritium des échantillons de pluie récoltés aux environs des centrales nucléaires de

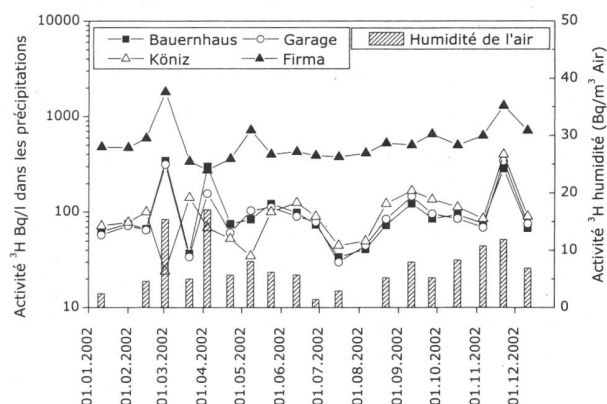
**Tableau 1:** Tritium dans les précipitations au voisinage des entreprises

| Lieu                           | Emplacement                        | Valeur min - max (Bq/l) | Moyenne (Bq/l) |
|--------------------------------|------------------------------------|-------------------------|----------------|
| La Chaux-de-Fonds<br>Teufen/AR | Ancien Moulins<br>65 m E Firma TCT | 10 – 150<br>300 – 815   | 32<br>560      |
| Niederwangen/BE                | Emplacement                        | Valeur min - max (Bq/l) | Médiane (Bq/l) |
| Bauernhaus                     | 300 m SE de l'entreprise           | 34 – 343                | 75             |
| Garage                         | 200 m SW de l'entreprise           | 30 – 340                | 82             |
| Gemeinde Köniz                 | 180 m NNW de l'entreprise          | 24 – 401                | 90             |
| Firma Schär                    | 320 m NE de l'entreprise           | 275 – 1800              | 490            |

Mühleberg, Gösgen-Däniken et Leibstadt sont inférieures à 5 Bq/l (Voir également Chap. 8). Les valeurs de tritium mesurées dans les pluies de Fribourg sont inférieures à 3 Bq/l à l'exception du mois de décembre où une activité de 12 Bq/l a été enregistrée. Bien que cette valeur soit très faible par rapport à la valeur limite de tolérance de 1'000 Bq/l pour l'eau potable, elle est 4 à 5 fois supérieure aux activités mesurées habituellement à cet endroit. Malgré les recherches, il n'a pas été possible de déterminer l'origine de cette augmentation.

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

A La Chaux-de-Fonds, Teufen/AR (Firma RCT) et près de Niederwangen/BE (Firma mb microtec) où sont situées des entreprises utilisatrices de tritium, des échantillons de pluie sont collectés chaque semaine et un mélange des semaines est mesuré chaque mois (tous les 14 jours, pour Niederwangen) afin de déterminer l'activité du tritium dans les précipitations. Les résultats sont résumés dans le tableau 1.



**Fig. 7:** Activité en tritium dans les échantillons de pluies (Bq/l) et dans l'humidité de l'air (Bq/m<sup>3</sup> d'air) de Niederwangen / BE.

A Niederwangen, l'activité du tritium dans l'humidité de l'air est également mesurée tous les 14 jours (Fig. 7). Les valeurs mesurées se situent entre 1.4 et 17 Bq/m<sup>3</sup> avec une valeur médiane de 6 Bq/m<sup>3</sup>.

#### 4.1.3 Cours d'eau

Les échantillons des eaux du Ticino (près de Contone) ainsi que du Rhône (près de Porte-du-Scex/VS et de Chancy/GE), mesurés chaque mois, ne présentent pas de radioactivité gamma d'origine artificielle. L'activité du <sup>137</sup>Cs, par exemple, est située en dessous de la limite de détection de 3 à 7 mBq/l. Les valeurs moyennes obtenues lors de la mesure du tritium pour ces échantillons, ainsi que pour ceux collectés dans l'Aar en amont de la centrale nucléaire de Mühleberg, sont inférieures à 2 Bq/l. La valeur moyenne du tritium mesurée dans le Rhin près de Weil/D, en aval de Bâle, est de  $2.7 \pm 1.8$ . Notons qu'une valeur de 8 Bq/l a été enregistrée dans cette station au mois d'avril, en raison d'un rejet plus important d'eau contenant peu de tritium par la centrale nucléaire de Gösgen (voir aussi Chap. B.8.0.1). Les activités des divers émetteurs gamma artificiels dans les eaux de l'Aar et du Rhin sont étudiées au Chap. 4.2. On trouvera un résumé des valeurs de Tritium mesurées dans les précipitations et les fleuves au Chap. 7.1.

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

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

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

Les valeurs élevées parfois observées dans les eaux de lavage de l'usine d'incinération de Bâle sont probablement dues à la combustion de montres contenant du tritium sur les index du cadran ou les aiguilles et qui ont été jetées dans les ordures ménagères. Notons que des valeurs supérieures à 10'000 Bq/l, valeur limite selon l'OSEC pour les denrées liquides, n'ont été observées que durant une très courte période (3 jours au mois de

mai) et que durant le reste de l'année les valeurs n'ont pas dépassé 2'000 Bq/l. La combustion de montres contenant du tritium explique également les valeurs observées à l'UI de Bienne.

Les valeurs de tritium observées à la STEP de la région de La Chaux-de-Fonds s'expliquent par le fait que l'eau de lavage des fumées de l'usine d'incinération arrive également dans la STEP. Pour l'année 2002, on estime ainsi à 1.9 TBq, la charge en tritium à la sortie de la STEP de la Chaux-de-Fonds. Cette valeur est deux fois inférieure à celle mesurée en 2001.

**Tableau 2:** Tritium et iode dans les eaux de rejet des usines d'incinération (UI) et des stations d'épuration (STEP)  
Limites de l'ORaP pour l'eau du domaine publique:  $^3\text{H}$ : 12'000 Bq/l,  $^{131}\text{I}$ : 10 Bq/l

| Installations          | Laboratoire de mesure | Isotope          | Nombre | Valeur min-max (Bq/l) | Médiane (Bq/l) | Moyenne (Bq/l) |
|------------------------|-----------------------|------------------|--------|-----------------------|----------------|----------------|
| STEP Bâle              | KL-BS                 | <sup>131</sup> I | 54     | < 0.1-0.7             | —              | —              |
|                        |                       | <sup>3</sup> H   | 54     | 0.4 – 5.4             | 2.8            | 2.7            |
| UI Bâle                |                       | <sup>131</sup> I | 51     | < 0.1 – 4.4           | —              | —              |
|                        |                       | <sup>3</sup> H   | 61     | 200 – 37'000          | 590            | 1580           |
| STEP Berne             | Labor Spiez           | <sup>131</sup> I | 52     | < 0.1 – 0.6           | —              | —              |
|                        | SUER                  | <sup>3</sup> H   | 12     | < 20                  | —              | —              |
| UI Bienne              | SUER                  | <sup>3</sup> H   | 52     | 11 - 501              | 28             | 78             |
| STEP La Chaux-de-Fonds | SUER                  | <sup>3</sup> H   | 12     | 73 - 510              | —              | 260            |
| STEP Lausanne          | IRA                   | <sup>131</sup> I | 43     | < 0.2 – 0.8           | —              | —              |
|                        |                       | <sup>3</sup> H   | 12     | < 3 – 6               | —              | —              |
| STEP Zürich            | EAWAG                 | <sup>131</sup> I | 52     | < 1.5                 | —              | —              |
|                        | SUER                  | <sup>3</sup> H   | 13     | 2.3 - 3.2             | —              | 2.3            |

## 4.2. Radioaktivität in aquatischen Systemen

J. Beer, E. Grieder, I. Brunner

EAWAG, Abteilung SURF/RT, 8600 DÜBENDORF

### Zusammenfassung

*In den monatlichen Wasserproben von Aare und Rhein wurden hauptsächlich  $^{60}\text{Co}$  von Mühleberg,  $^{58}\text{Co}$  von Beznau und  $^{137}\text{Cs}$  vom Tschernobylunfall nachgewiesen. In den Sedimentfallenproben von Hagneck, Klingnau und Pratteln wurden zusätzlich noch  $^{54}\text{Mn}$  und vereinzelt  $^{65}\text{Zn}$  gefunden, vor allem zu Zeiten der Revisionen. Die bereits letztes Jahr beobachteten erhöhten  $^{60}\text{Co}$  und  $^{54}\text{Mn}$  Werte bei Hagneck sind bis Mitte Jahr abgeklungen. Im Rhein oberhalb der Aaremündung konnten keine künstlichen Radionuklide festgestellt werden. In Fischen und Wasserpflanzen waren nur  $^{40}\text{K}$  und geringe Spuren von  $^{137}\text{Cs}$  nachweisbar. Messungen am Grundwasser der Pumpstationen Aarberg, Döttingen und Pratteln ergaben keine Hinweise auf infiltrierte künstliche Radionuklide. Auch im Abwasser der ARA Werdhölzli in Zürich konnten keine künstlichen Radionuklide gefunden werden. In der Rauchwasserwaschanlage der Kerichtverbrennungsanlage Hagenholz dagegen zeigten zwei Kontrollmessungen im einen Fall Spuren von  $^{137}\text{Cs}$  und im andern Fall von  $^{131}\text{I}$  ( $21 \pm 2$  Bq/L)*

*Insgesamt führen die gefundenen Aktivitäten in aquatischen Systemen zu keiner messbaren Erhöhung der Strahlenbelastung.*

### 4.2.1 Ziele

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

### 4.2.2 Methoden

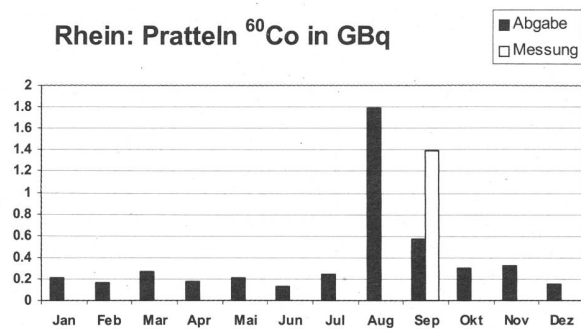
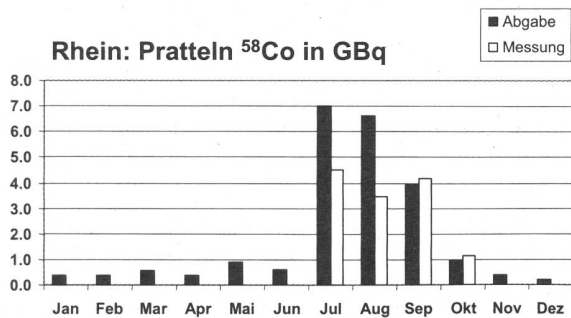
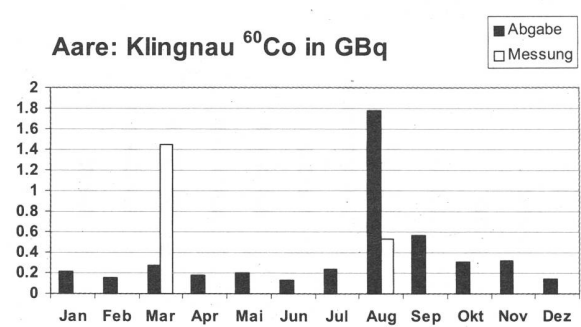
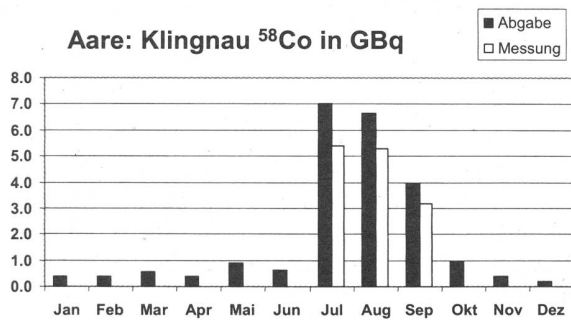
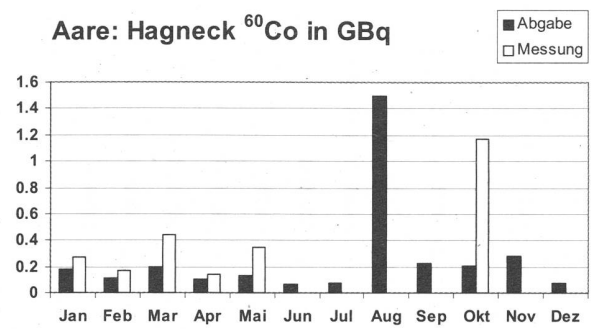
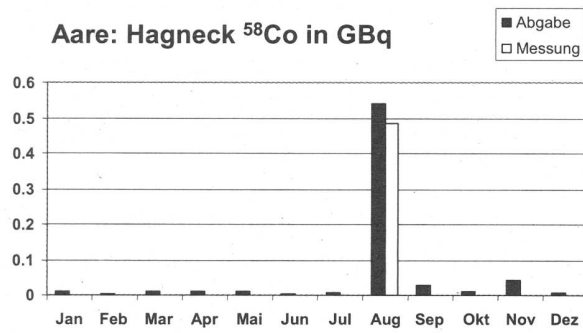
Die Aktivitäten aller in unserem Labor gemessenen Radionuklide werden mittels Gammaskopie bestimmt. Sedimente, Fisch- und Pflanzenproben werden gefriergetrocknet und die Aktivität pro Trockengewicht erhoben. In den grossvolumigen monatlichen Sammelproben von Hagneck, Klingnau und Pratteln werden die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

### 4.2.3 Zusammenfassung der Ergebnisse

#### Kernanlagen

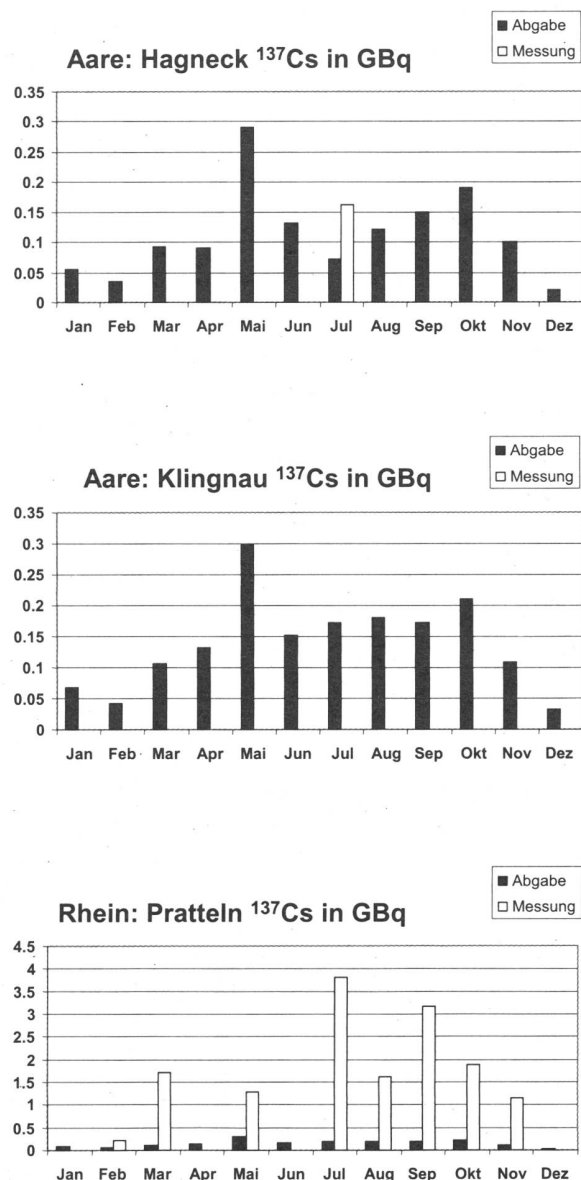
##### Wasserproben

Monatliche Wasserproben werden entlang von Aare und Rhein an drei Standorten gesammelt. Die Station Hagneck liegt unterhalb des Kernkraftwerks Mühleberg am Einfluss der Aare in den Bielersee, die Station Klingnau überwacht die Abgaben von Mühleberg, Beznau und Gösgen und die Station Pratteln schliesslich umfasst zusätzlich noch die Abgaben von Leibstadt in den Rhein. Entsprechend dem jeweiligen Abfluss werden pro Tag automatisch zwischen 20 und 40 Proben genommen, was über einen Monat eine Gesamtprobe von 50 bis 100 L ergibt. Die Zuverlässigkeit dieser Probenahmestationen konnte weiter verbessert werden. Trotzdem gibt es immer noch vereinzelt Probleme, wie zum Beispiel Verstopfungen während Hochwasserperioden.



**Fig. 1**  $^{58}\text{Co}$ -Aktivitäten an den drei Probenahmestationen Hagneck, Klingnau und Pratteln. Die Abgaben der Kernkraftwerke (schwarz) stimmen gut mit den Messungen (weiss) überein. Die grössten Abgaben stammen von Beznau während der Revisionen in den Sommermonaten. Fehlende Messwerte bedeuten, dass die Aktivitäten unter der Nachweisgrenze liegen.

**Fig. 2**  $^{60}\text{Co}$ -Aktivitäten an den drei Probenahmestationen Hagneck, Klingnau und Pratteln. Die Abgaben stammen vor allem von Mühleberg und sind im allgemeinen zu klein, um nachgewiesen werden zu können. Die grösste Abgabe erfolgte im August während der jährlichen Revision.



**Fig. 3**  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten an den drei Probenahmestationen Hagneck, Klingnau und Pratteln. Die Messwerte in Pratteln sind generell deutlich höher als die entsprechenden Abgaben. Dies ist auf  $^{137}\text{Cs}$  zurückzuführen, das vom Tschernobylunfall stammt.

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

$^{58}\text{Co}$  stammt vor allem aus den Kernkraftwerken in Beznau. Die höchsten Aktivitäten wurden in den Sommermonaten gemessen zu den Zeiten der

Revisionen (Mühleberg: 11.8.-4.9., Beznau 1: 28.6.-28.7., Beznau 2: 3.8.-21.8.). Die gemessenen Aktivitäten sind generell etwas tiefer als die Abgaben, was zu erwarten ist, da ein Teil des Kobalts sich an Partikel anlagert und sedimentiert. Aufgrund unserer Messungen haben ca. 13 GBq  $^{58}\text{Co}$  im Rhein die Schweiz verlassen, was rund 60% der Abgaben entspricht.

Im Gegensatz zu  $^{58}\text{Co}$  stammt das meiste  $^{60}\text{Co}$  aus dem Kernkraftwerk Mühleberg. Die grösste Abgabe erfolgte im August während der Revision. Interessanterweise lagen die Messungen im August unter der Nachweisgrenze ( $0,4 \text{ Bq/m}^3$ ), was beim relativ grossen Abfluss von  $275 \text{ m}^3/\text{s}$  etwa  $0,3 \text{ GBq}$  entspricht. Überraschender jedoch ist der gemessene Wert von fast  $1,2 \text{ MBq}$  im Oktober, der bei einer vergleichsweise niedrigen Wasserführung von  $164 \text{ m}^3/\text{s}$  klar über der entsprechenden Abgabe liegt.

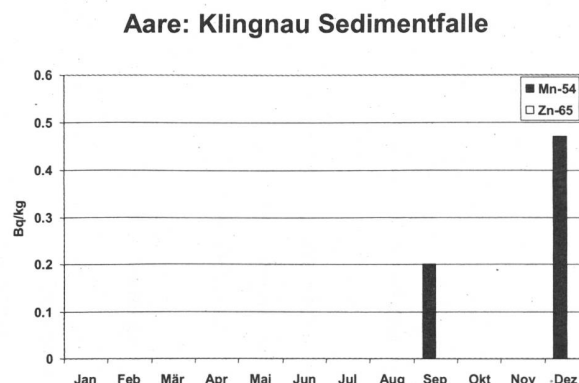
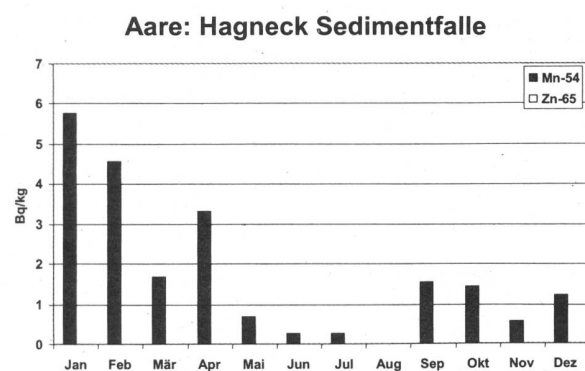
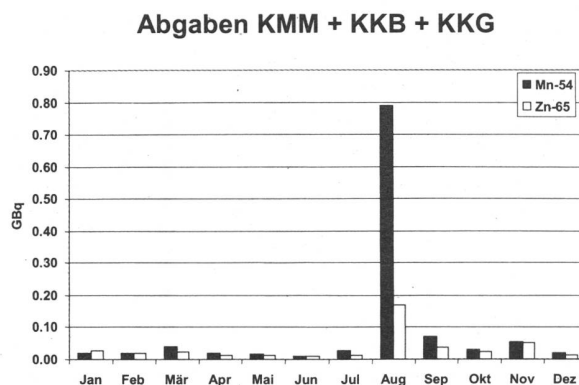
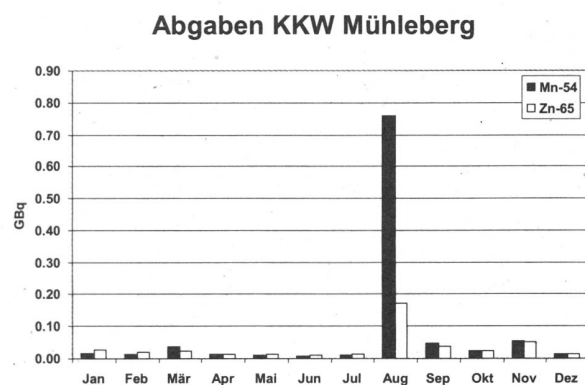
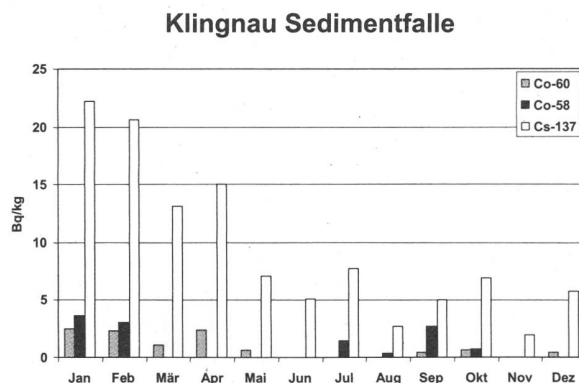
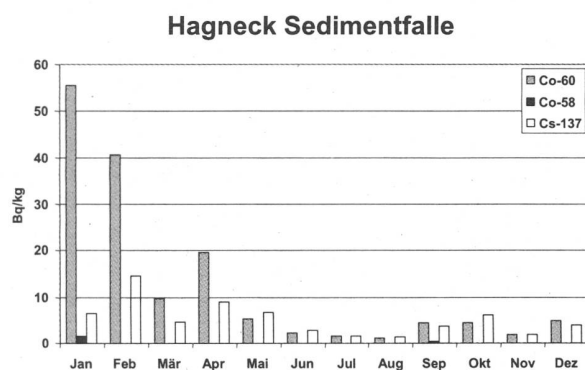
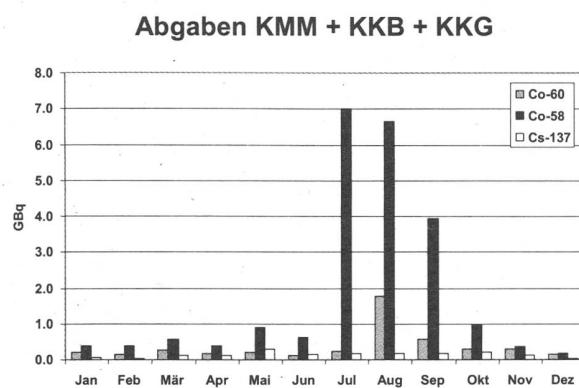
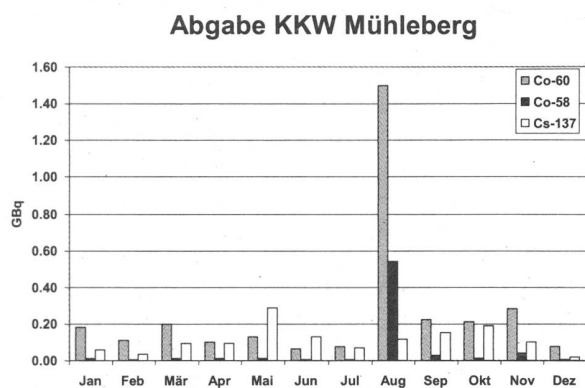
Eine ebenfalls verglichen mit den Abgaben deutlich erhöhte  $^{60}\text{Co}$  Aktivität wurde im März bei Klingnau und im September bei Pratteln gefunden. Allerdings liegt die letztere mit  $0,5 \text{ Bq/m}^3$  nicht weit über der Nachweisgrenze.

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

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

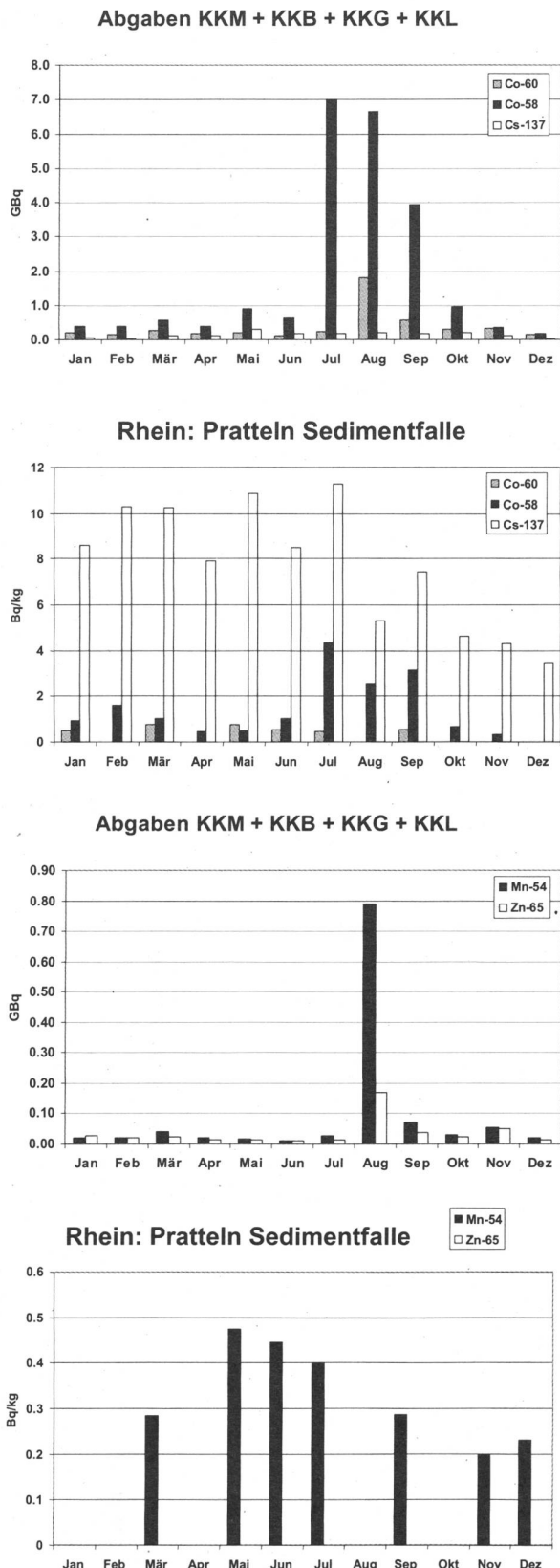
### Sedimentproben

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



**Fig. 4** Diese Figur besteht aus zwei Teilfiguren, wobei jeweils die obere die Abgaben des Kernkraftwerks Mühleberg zeigt und die untere die entsprechenden Aktivitäten in den Sedimentfallenproben von Hagneck. Die anfangs Jahr beobachteten relativ hohen Aktivitäten von  $^{60}\text{Co}$  und  $^{54}\text{Mn}$  können durch die Abgaben der Kernanlagen nicht erklärt werden (s. Text).

**Fig. 5** Die Sedimentfallenproben von Klingnau zeigen vor allem  $^{137}\text{Cs}$ , das nur zu einem geringen Teil aus den flussaufwärts liegenden Kernkraftwerken stammt. Die Aktivitäten von  $^{58}\text{Co}$  und  $^{54}\text{Mn}$  dagegen sind bis auf den Dezemberwert gleichzeitig mit den Abgaben erhöht.



**Fig. 6** Die in den Sedimentfallen von Pratteln gemessenen Aktivitäten zeigen ein ähnliches Bild wie in Klingnau.  $^{137}\text{Cs}$  stammt vermutlich zum grössten Teil vom Tschernobylunfall und  $^{58}\text{Co}$  ist erhöht während der Revisionen der 2 Reaktorblöcke in Beznau. Die  $^{54}\text{Mn}$  Werte liegen nur knapp über den jeweiligen Nachweisgrenzen und sind deshalb nicht sehr aussagekräftig.

Die in diesen Sedimentfallen gemessenen spezifischen Aktivitäten sind in den Figuren 4 bis 6 dargestellt, wobei jeweils im oberen Teil der Figuren die abgegebenen Aktivitäten in GBq angegeben sind und im unteren Teil die entsprechenden gemessenen spezifischen Aktivitäten in Bq/kg. Wie bereits erwähnt, erfolgten die grössten Abgaben von Mühleberg im August (Fig. 4). Die Sedimentfallen zeigen allerdings ein anderes Bild. Im Widerspruch zu den Abgaben wurden vom Januar bis April relativ hohe aber abfallende  $^{60}\text{Co}$ -Werte gefunden. Obwohl eine Erklärung fehlt, passen die Werte gut zu den am Ende von 2001 gemessenen  $^{60}\text{Co}$  Daten. Ein ähnliches Verhalten zeigt auch  $^{54}\text{Mn}$ .  $^{65}\text{Zn}$  dagegen konnte nicht festgestellt werden ( $\leq 1 - 6 \text{ Bq/kg}$ ).

Nach dem Durchfliessen des Bielersees und des Klingnauer Staubeckens konnten nur noch relativ geringe spezifische Aktivitäten gemessen werden, die nahe der Nachweisgrenze liegen (Fig. 5). Die Ausnahme bildet  $^{137}\text{Cs}$ , das wie bereits erwähnt auf die Erosion von Böden zurückzuführen ist, die mit dem Tschernobyl Ausfall kontaminiert worden waren.

Auch in Pratteln war  $^{137}\text{Cs}$  immer gut messbar. Das während der Revisionen der zwei Reaktorblöcke in Beznau abgegebene  $^{58}\text{Co}$  (Juli bis September) war ebenfalls gut nachweisbar, während die  $^{54}\text{Mn}$ -Werte wieder nur wenig über der Nachweisgrenze lagen.  $^{65}\text{Zn}$  konnte in keiner der Sedimentproben gefunden werden ( $\leq 0,4 - 6 \text{ Bq/kg}$ ).

### Fische und Wasserpflanzen

Im Jahr 2002 wurden 2 Fische aus der Aare untersucht, ein Barsch aus dem Bereich unterhalb des Kernkraftwerks Mühleberg und ein Alet aus der Gegend unterhalb von Beznau. Beide Fische wurden zuerst filetiert und gefriergetrocknet. In beiden wurde natürliches  $^{40}\text{K}$  (700 Bq/kg), aber ausser  $^{137}\text{Cs}$  (1 - 2 Bq/kg) keine künstlichen Radionuklide nachgewiesen. Wegen Hochwasser zwischen Oktober und Dezember konnte unterhalb von Gösigen kein Fisch gefangen werden.

In Wasserpflanzen von Hagneck wurden Spuren von  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$  und  $^{137}\text{Cs}$  gefunden. Im Schilf und Gras aus dem Klingnauer Stausee etwas  $^{137}\text{Cs}$  ( $0,02 \pm 0,01 \text{ Bq/g}$ ).

### Grundwasser

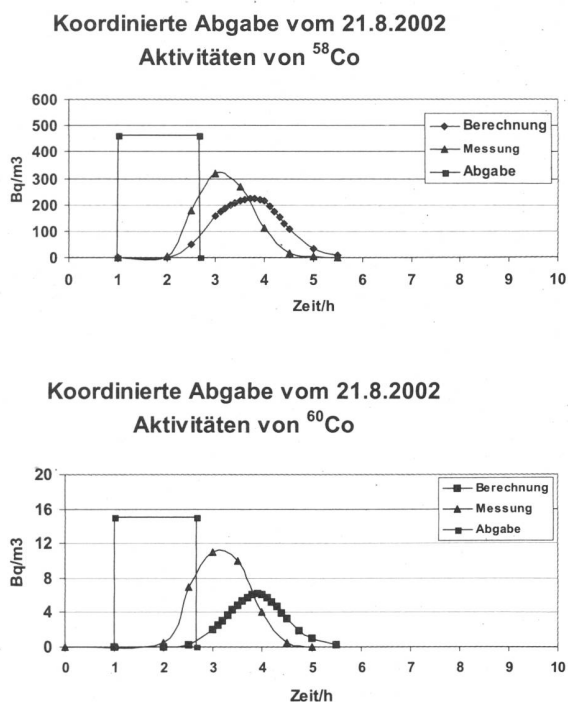
Zur Untersuchung des Grundwassers wurden in Pratteln (20.2.02), Aarberg (26.6.02) und Döttingen (13.8.02) Proben von je 100 L genommen. Ausser in Pratteln, wo die natürlichen Radionuklide  $^{40}\text{K}$  und  $^{210}\text{Pb}$  gefunden wurden, konnten keine weitere

ren der sonst untersuchten Radionuklide nachgewiesen werden.

### Koordinierte Abgabe

Wie jedes Jahr wurde auch in diesem Jahr wieder eine koordinierte Abgabe durchgeführt. Sie fand gemeinsam mit dem Kernkraftwerk Beznau am 21. August statt. Innerhalb von 1 Std. 40 Min. wurden total 1166 MBq  $^{58}\text{Co}$  und 37.8 MBq  $^{60}\text{Co}$  in 18.6 m<sup>3</sup> Abwasser in die Aare eingeleitet (Fig. 7).

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



**Fig. 7** Resultate der koordinierten Abgabe vom 21.8.2002, die gemeinsam mit dem Kernkraftwerk Beznau durchgeführt wurde. Innerhalb von 1 Stunde 40 Minuten wurden total 1166 MBq  $^{58}\text{Co}$  und 37.8 MBq  $^{60}\text{Co}$  in 18.6 m<sup>3</sup> Wasser an die Aare abgegeben (Rechtecke).

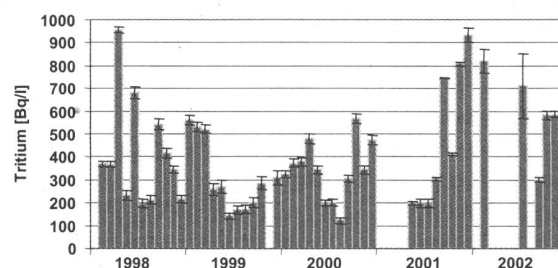
Fig. 7 zeigt den Vergleich zwischen den gemessenen und den berechneten spezifischen Aktivitäten von  $^{58}\text{Co}$  und  $^{60}\text{Co}$ . Da Abgabe- und Probenahmeort nur ca. 7 km auseinanderliegen und die Aare am 21.8. sehr viel Wasser geführt hat, erfolgte der Transport sehr schnell und bereits vor dem Ende der Abgabe wurde ein Ansteigen der Messwerte beobachtet. Für eine genauere Analyse müsste

deshalb die genaue Form der Inputkurve bekannt sein. Ebenfalls aufgrund der grossen Wasserführung und der kurzen Wegstrecke sollte die Sedimentation, die bei der Simulation vernachlässigt wird, keine grosse Rolle spielen. Die Resultate bestätigen dies. Der Vergleich zwischen Messungen und Modellrechnungen zeigt insgesamt eine befriedigende Übereinstimmung.

### Andere Betriebe

#### RC Tritec AG / Teufen

##### Niederschlag Teufen

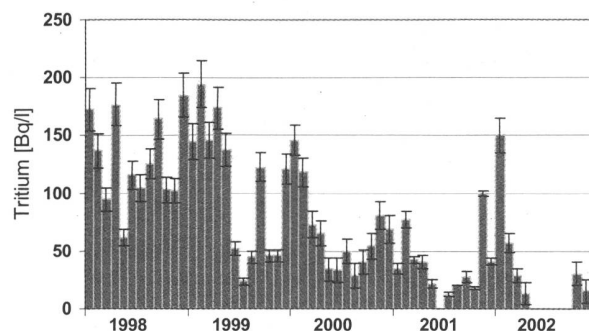


**Fig. 8** Tritiumkonzentrationen im Niederschlag auf dem Gelände der Firma Tritec in Teufen. Die meisten Werte liegen etwas höher als der langjährige Mittelwert. Die Messungen erfolgen seit 2001 durch die SUEr.

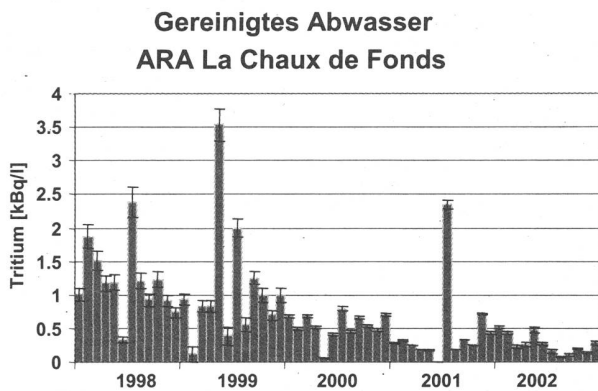
Fig. 8 zeigt die Resultate der Tritium Analysen vom Niederschlag, der im Regensammler 65m östlich des Kamins der Firma Tritec gesammelt und durch die SUEr gemessen wurde. Der sich Ende 2001 abzeichnende Anstieg gegen 1000 Bq/L hat sich nicht fortgesetzt. Die Probenahmen für die Monate Januar/Mai/April und Juni fehlen.

#### Messungen in der Umgebung von La Chaux-de-Fonds

##### Niederschlag La Chaux de Fonds



**Fig. 9a** Tritiumaktivität im Niederschlag von La Chaux-de-Fonds.



**Fig. 9b** Tritiumaktivität im gereinigten Abwasser der ARA von La Chaux-de-Fonds. Die Messungen erfolgen seit 2001 durch die Suer.

In Fig. 9 sind die Tritium Konzentrationen im gereinigten Abwasser der ARA La Chaux de Fonds sowie im Niederschlag dargestellt. Der seit längerer Zeit anhaltende Trend zu niedrigeren Werten hat sich fortgesetzt. In den Monaten Mai bis August und September liegen die Tritiumwerte im Niederschlag sogar unterhalb der Nachweisgrenze von 10 – 20 Bq/L. Infolge Ausfall des Probenahmegerätes im Sommer 2002 konnten nicht alle Proben gemessen werden.

Insgesamt wurden durch den Regen 2002 ca. 1000 kBq Tritium pro m<sup>2</sup> deponiert. Da wegen Renovationsarbeiten die Abflüsse der ARA nicht mehr gemessen werden, konnte die direkt abgeführte Fracht nicht bestimmt werden. Eine ganz grobe Schätzung basierend auf den Abflüssen von 2000 ergibt 1.9 TBq. Nach Angaben der SUVA wurden in La Chaux-de-Fonds 13.5 TBq Tritium verarbeitet.

### **Kläranlagen**

Die Proben der ARA Zürich-Werdhölzli werden vom Labor der EAWAG gemessen. Es wurden keine <sup>131</sup>I-Aktivitäten festgestellt.

### **Kehrichtverbrennung**

Eine weitere potentielle Quelle von Radionukliden stellen Kehrichtverbrennungsanlagen dar. Zwei Probenahmen aus der Rauchwasserwaschanlage der Kehrichtverbrennungsanlage Hagenholz in Zürich haben positive Resultate ergeben. Im einen Fall wurden Spuren von <sup>137</sup>Cs ( $0,15 \pm 0,09$  Bq/L) und im anderen Fall von <sup>131</sup>I ( $20,7 \pm 2$  Bq/L) gefunden. Es sollen deshalb in Zukunft mehr Proben analysiert werden.

### **Oberflächengewässer**

Von den zwei Probenahmestationen Diepoldsau und Reckingen am Rhein wurden wöchentliche Wasserproben untersucht. Ausser vereinzelt <sup>40</sup>K Aktivitäten konnten keine gammaaktiven Radionuklide nachgewiesen werden. Die Tritiumanalysen erfolgten durch die Bundesanstalt für Gewässerkunde in Koblenz. Die Resultate für das Jahr 2002 liegen noch nicht vor. 2001 betrugen die Tritiumkonzentrationen im Mittel  $1.62 \pm 0.22$  Bq/L.

## 4.3. Radioactivité du sol et de l'herbe

**P. Froidevaux, J.-J. Geering, K. Friedrich-Bénet, T. Schmittler, F. Barraud, J.-F. Valley**

Institut universitaire de radiophysique appliquée, Grand Pré 1, 1007 LAUSANNE

**H. Völkle, M. Jungck**

Section de surveillance de la radioactivité (SUER), Office fédéral de la santé publique

Ch. du Musée 3, 1700 FRIBOURG

**Dr. M. Burger, E. Schmid, F. Byrde, A. Jakob, M. Astner**

Laboratorium Spiez, Bundesamt für Bevölkerungsschutz des VBS, 3700 SPIEZ

### Résumé

*Les mesures  $\gamma$  et de  $^{90}\text{Sr}$  sont effectuées sur le sol (0-5 cm) et sur l'herbe car ils représentent les compartiments de l'environnement touchés en premier par d'éventuelles retombées de substances radioactives. A plus long terme, la contamination de l'herbe se fait par translocation des radioéléments du sol vers la plante par les racines. Seul le strontium, élément apparenté au calcium, est susceptible d'être transféré de la sorte à la plante. Les actinides comme le plutonium et l'américium, fortement adsorbés aux particules de sol, ne sont pas accumulés de manière significative par les racines des plantes. Les résultats des mesures effectuées sur l'herbe montrent une activité en  $^{90}\text{Sr}$  normalisée à la masse de calcium située entre 0.11-0.40  $^{90}\text{Sr}$  Bq/g Ca dans les sites de plaines, entre 0.2-1.0 pour le Jura et 0.4-1.32 pour les Grisons et le Tessin. Le  $^{137}\text{Cs}$  n'est mesurable au-dessus de 0.5 Bq/kg d'herbe sèche uniquement dans les régions touchées par les retombées de Tchernobyl (Tessin) avec des valeurs situées entre 0.5-26 Bq/kg MS ou sur les reliefs (Alpes, Jura) où l'activité en  $^{137}\text{Cs}$  provenant des retombées des années soixante est sensiblement égal ou supérieur à celle des retombées de Tchernobyl dans la couche 0-5 cm du sol (0.7-4.1 Bq/kg MS). Le rapport isotopique  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  ( $\sim 1.0$ ) mesuré sur quatre herbes montre que l'uranium présent dans ces échantillons est d'origine naturelle.*

### 4.3.1 Introduction

La présence de radioéléments dans le sol et l'herbe provient de deux sources : la radioactivité naturelle, représentée principalement par la série de l'uranium, la série du thorium et le  $^{40}\text{K}$ , et la contamination de l'environnement par des radioéléments dont l'origine est les essais d'armes atomiques réalisés dans l'atmosphère durant les années soixante. Dans une certaine mesure, on peut encore y ajouter l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl, notamment pour le  $^{137}\text{Cs}$ . Les radioéléments artificiels mesurables actuellement au-dessus de la limite de détection dans le sol et l'herbe en Suisse sont le  $^{137}\text{Cs}$  et le  $^{90}\text{Sr}$ . Dans le

sol, on peut encore détecter le plutonium et l'américium en trace. Ces actinides étant fortement adsorbés sur les particules de sol, ils ne transfèrent pas de manière significative et mesurable dans l'herbe [1]. L'uranium, par contre, est un actinide qui peut être transféré dans les plantes, notamment lorsqu'il est présent dans le sol sous forme de cation uranyle ( $\text{UO}_2^{2+}$ ). Le contenu en uranium des plantes est ainsi fonction de la géologie du sol [2]. En Suisse, les dépositions de  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , de plutonium et d'américium provenant des essais nucléaires sont d'importances diverses en fonction de la géomorphologie du pays. Au nord, la barrière du Jura a reçu des dépositions de l'ordre de 300 Bq/m<sup>2</sup> de plutonium, alors que la moyenne des dépositions de plutonium sur le plateau suisse est de 70 Bq/m<sup>2</sup> [3]. On mesure environ 3500 Bq/m<sup>2</sup> de  $^{90}\text{Sr}$  dans le Jura contre 700 Bq/m<sup>2</sup> sur le plateau suisse. La situation est encore plus complexe dans les Alpes due aux très fortes accumulations de précipitations (pluie et neige) et au phénomène de concentration dans les zones de rupture de pente [4]. Schuller et al. [5] ont obtenu une corrélation de 0.79 entre la contamination du sol par le  $^{137}\text{Cs}$  (Bq/m<sup>2</sup>) des essais nucléaires et le taux de précipitation (mm/a). D'autre part, la contamination du sol par le  $^{137}\text{Cs}$  de l'accident de Tchernobyl a été la plus importante dans les régions ayant subi de fortes précipitations dans les jours suivants l'accident. Pour la Suisse, ces régions sont essentiellement le Tessin et, dans une moindre mesure, le nord-est du pays. Dans ce travail, le  $^{90}\text{Sr}$  et le  $^{137}\text{Cs}$  ont été mesurés dans le sol et l'herbe. Depuis 40 ans, ces mesures sont réalisées annuellement et permettent de suivre l'évolution temporelle de ces radioéléments dans les divers compartiments de l'environnement et de la chaîne alimentaire (voir chap. B.6.2). Depuis le milieu des années soixante (traité d'interdiction d'essais d'armes atomiques dans l'atmosphère) on observe une diminution exponentielle de l'activité en  $^{90}\text{Sr}$  dans tous les compartiments de l'environnement, avec une période d'environ 9 ans pour le sol et l'herbe et de 13 ans pour le lait [6].

### 4.3.2 Méthode

#### *Herbe et sol :*

L'activité en  $^{90}\text{Sr}$  est déterminée par la mesure de son produit de filiation, l'  $^{90}\text{Y}$ . Après désorption des cendres de sol et d'herbe par micro-ondes en milieu acide, le strontium et l'yttrium sont pré-concentrés sur précipité d'oxalate de calcium. Après destruction de l'oxalate par micro-ondes en milieu nitrique et complexation de l'yttrium par l'acide dipicolinique, le complexe anionique

$[\text{Y}(\text{dipic})_3]^{3-}$  est retenu sur une colonne anionique (AG 1x4) et élué par NaCl 1M. La source d'yttrium est obtenue par précipitation de l'oxalate et comptée dans un compteur proportionnel à flux de gaz.

Le contenu en calcium des cendres et le rendement en yttrium sont déterminés par absorption atomique.

La limite de détection pour le sol est de 0.3 Bq/kg MS (MS = matière sèche). Elle est de 0.1 Bq/kg MS pour l'herbe.

### 4.3.3 Résultats de la surveillance

**Tableau 1** Radioactivité du sol (0-5 cm) en 2002, en Bq/kg de matière sèche (et Bq/g Ca pour le  $^{90}\text{Sr}$ ), rapportée à la date du prélèvement. Les intervalles de valeurs indiquent plusieurs prélèvements pour un site.

| Canton/lieu                      | $^{40}\text{K}$ | $^{134}\text{Cs}$ | $^{137}\text{Cs}$ | $^{90}\text{Sr}$ | $^{90}\text{Sr}$<br>(Bq/g Ca) | $^{239/240}\text{Pu}$ | $^{241}\text{Am}$ |
|----------------------------------|-----------------|-------------------|-------------------|------------------|-------------------------------|-----------------------|-------------------|
| <b>Sites de référence</b>        |                 |                   |                   |                  |                               |                       |                   |
| VD (col de la Givrine)           | 429±12          | < 0.7             | 77±1              | 8.0±0.5          | 0.54±0.03                     | 1.50±0.06             | 0.55±0.07         |
| VD (St-Cergue)                   | 291±14          | < 1.2             | 68±2              | 7.7±1.2          | 0.13±0.02                     | 1.34±0.07             | 0.57±0.04         |
| TI (Intragna)                    | 678±17          | 0.5±0.1           | 147±2             | 14.9±0.5         | n.m.                          | 0.98±0.1              | 0.46±0.02         |
| TI (Sessa)                       | 668±16          | 3.2±0.4           | 200±3             | 9.1±0.4          | 2.3±0.1                       | 0.53±0.03             | 0.20±0.02         |
| TI (Rodi-Fiesso)                 | 471±10          | < 1.0             | 79±2              | 7.5±0.4          | 0.57±0.03                     | 0.37±0.03             | 0.16±0.03         |
| GR (Davos)                       | 248±17          | < 2.0             | 93±2              | 19.8±0.5         | 0.72±0.02                     | 1.14±0.08             | 0.43±0.03         |
| GR (Coire)                       | 662±12          | < 0.3             | 27±0.5            | 11.8±0.7         | 0.08±0.01                     | 0.48±0.08             | 0.18±0.02         |
| SZ (Ochsenboden)                 | 220-290         | —                 | 73 – 165          | 0.9 – 13.4       | —                             | 0.93 – 2.07           | 0.33 – 0.79       |
| BE (Diesse)                      | 408±20          | < 0.2             | 25±1              | 3.1±0.2          | —                             | 0.46±0.02             | 0.17±0.02         |
| BE (Fahrni)                      | 463±23          | < 0.2             | 22±1              | 5.0±0.2          | —                             | 0.52±0.06             | 0.20±0.02         |
| BE (Allmendhubel)                | 499±25          | < 0.2             | 45±2              | 13.1±1.3         | —                             | 0.90±0.04             | 0.34±0.03         |
| BE (Gimmelwald)                  | 270±14          | < 0.2             | 32±2              | 5.5±0.4          | —                             | 0.84±0.04             | 0.34±0.03         |
| BL (Sissach)                     | 458±23          | < 1               | 32±2              | —                | —                             | —                     | —                 |
| GE (CERN)                        | 450-610         | < 0.2             | 6-19              | 3.7±0.2          | 0.114±0.006                   | 0.19±0.04             | 0.09±0.02         |
| FR (Grangeneuve)                 | 480±50          | < 1.0             | 10±1              | 5.2±0.2          | 8.2±0.4                       | 0.26±0.02             | 0.10±0.01         |
| FR (Fribourg, in-situ)           | 411±50          | —                 | 8±2               | —                | —                             | —                     | —                 |
| TG (Arenenberg)                  | 415±6           | < 0.4             | 83±1              | 3.2±0.1          | 0.18±0.01                     | 0.180±0.01            | 0.075±0.01        |
| <b>Installations nucléaires:</b> |                 |                   |                   |                  |                               |                       |                   |
| BE (Mühleberg)                   | 490-880         | —                 | 11-25             | 10.4±0.6         | 0.24±0.01                     | 0.18±0.01             | 0.082±0.01        |
| AG (Beznau)                      | 440-450         | —                 | 37-45             | 3.1±0.2          | 0.12±0.01                     | 0.18±0.04             | 0.075±0.008       |
| AG (PSI)                         | 400-530         | —                 | 33-41             | 2.6±0.4          | 0.46±0.07                     | 0.31±0.04             | 0.14±0.02         |
| AG (Zwilag)                      | 400±40          | —                 | 21±2              | 2.2±0.4          | 0.40±0.07                     | 0.18±0.05             | 0.08±0.01         |
| AG (Leibstadt)                   | 370-440         | —                 | 19-28             | 3.0±0.2          | 0.99±0.07                     | 0.21±0.02             | 0.08±0.01         |
| AG (Gösgen)                      | 430-490         | —                 | 13-19             | 2.8±0.02         | 0.054±0.001                   | 0.27±0.02             | 0.13±0.02         |

**Tableau 2** Radioactivité de l'herbe en 2002, en Bq/kg de matière sèche, rapportée à la date de prélèvement. Les intervalles de valeurs indiquent plusieurs prélèvements pour un site.

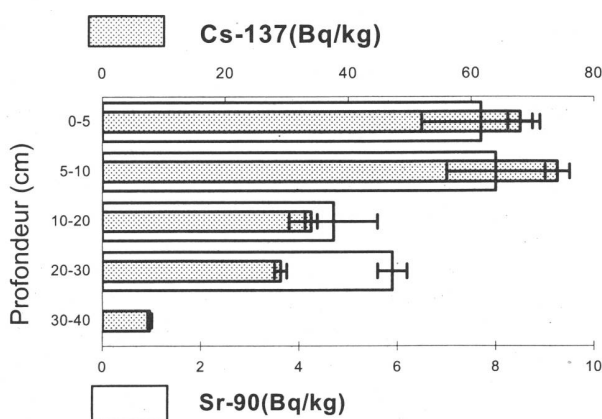
| Canton/lieu                      | <sup>40</sup> K    | <sup>134</sup> Cs | <sup>137</sup> Cs   | <sup>90</sup> Sr    | <sup>90</sup> Sr<br>(Bq/g Ca) | <sup>234</sup> U | <sup>238</sup> U |
|----------------------------------|--------------------|-------------------|---------------------|---------------------|-------------------------------|------------------|------------------|
| <b>Sites de référence</b>        |                    |                   |                     |                     |                               |                  |                  |
| VD (col de la Givrine)           | 812±31             | < 0.3             | 4.1±0.8             | 11.8±0.6            | 1.01±0.05                     | —                | —                |
| VD (St-Cergue)                   | 996±29             | < 1.3             | 1.9±0.6             | 3.31±0.15           | 0.20±0.01                     | —                | —                |
| TI (Intragna)                    | 981±26<br>901±20   | < 0.9<br>< 0.6    | 9.5±0.7<br>26±3     | 16.8±0.4<br>n.m.    | 1.12±0.02<br>n.m.             | —                | —                |
| TI (Sessa)                       | 854±21<br>901±23   | < 0.8<br>< 0.6    | 5.8±0.5<br>0.5±0.5  | 11.5±0.3<br>6.5±0.2 | 1.12±0.03<br>0.59±0.02        | —                | —                |
| TI (Rodi-Fiesso)                 | 1122±26<br>1114±28 | < 0.5<br>< 0.7    | 4.6±0.3<br>0.5±0.05 | 6.7±0.4<br>10.1±0.3 | 0.38±0.02<br>0.43±0.01        | 0.25±0.01        | 0.25±0.01        |
| GR (Davos)                       | 1090±31<br>984±29  | < 1.0<br>< 1.2    | 0.5±0.4<br>2.4±0.6  | 8.7±0.4<br>38±1.0   | 0.52±0.02<br>1.32±0.04        | 14.3±0.3         | 14.3±0.3         |
| GR (Coire)                       | 1140±26            | < 0.8             | 0.7±0.3             | 6.7±0.3             | 0.21±0.01                     | —                | —                |
| BE (Diesse)                      | 831-1165           | < 0.4             | < 0.4               | 1.3-2.1             | —                             | —                | —                |
| BE (Fahrni)                      | 741-1088           | < 0.4             | 0.6-1.0             | 3.8-4.7             | —                             | —                | —                |
| BE (Allmendhubel)                | 450±23             | < 0.3             | 4.1±0.2             | 39±3                | —                             | —                | —                |
| BE (Gimmelwald)                  | 747±37             | < 0.3             | 1.4±0.1             | 3.8±0.3             | —                             | —                | —                |
| GE (CERN)                        | 500-860            | -                 | < 5                 | 2.8±0.1             | 0.77±0.04                     | —                | —                |
| FR (Grangeneuve)                 | 980±50             | < 1               | < 2                 | 4.9±0.5             | 0.40±0.04                     | —                | —                |
| TG (Arenenberg)                  | 386±15             | < 0.8             | < 0.9               | 0.90±0.03           | 0.110±0.004                   | —                | —                |
| <b>Installations nucléaires:</b> |                    |                   |                     |                     |                               |                  |                  |
| BE (Mühleberg)                   | 500-1300           | -                 | <2-8                | 2.7±0.1             | 0.19±0.01                     | 2.71±0.08        | 3.08±0.08        |
| AG (Beznau)                      | 510-610            | -                 | 1.8-5               | 4.8±0.2             | 0.20±0.01                     | —                | —                |
| AG (PSI)                         | 480-990            | -                 | 6.2-6.5             | —                   | —                             | —                | —                |
| AG (Zwilag)                      | 380-600            | -                 | 3-4                 | 11.2±0.3            | 0.35±0.01                     | —                | —                |
| AG (Leibstadt)                   | 370-1100           | -                 | <2-9                | —                   | —                             | 1.29±0.04        | 1.33±0.04        |
| AG (Gösgen)                      | 580-1200           | -                 | <2-5                | 6.4±0.3<br>11.5±1.1 | 0.24±0.01<br>0.23±0.02        | —                | —                |

#### 4.3.4 Discussion

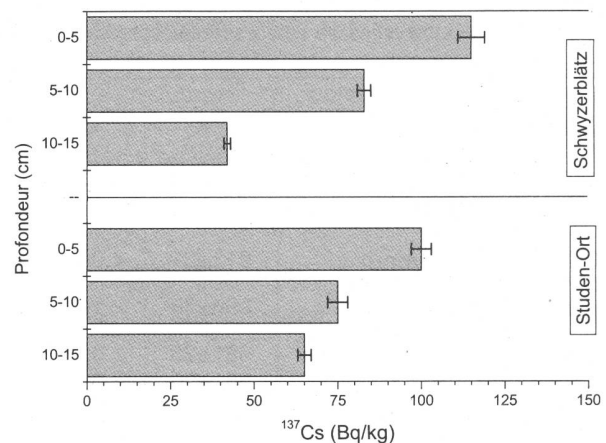
Le plutonium, l'américium et le <sup>137</sup>Cs sont des radioéléments fortement adsorbés sur les particules de sol. La migration est lente et après 40 ans de présence dans des sols non perturbés, la majorité de l'inventaire de ces radioéléments est présente dans la couche 0 - 10 cm du sol. La corrélation entre le contenu en <sup>137</sup>Cs et en plutonium est ainsi très importante dans les échantillons prélevés en Suisse et, pour des sites peu touchés par l'accident de Tchernobyl, l'activité en plutonium peut se déduire de l'activité en <sup>137</sup>Cs [7]. Le <sup>90</sup>Sr

est un radioélément beaucoup plus mobile et une telle corrélation n'est pas observée. Plusieurs facteurs influencent la distribution du <sup>90</sup>Sr dans le sol. Par exemple, la plus grande solubilité du strontium par rapport au césium et aux transuraniens va favoriser sa migration dans les couches plus profondes du sol. Toutefois, le transfert facilité du strontium aux plantes peut contrecarrer cet effet et maintenir le strontium dans l'horizon organique du sol, particulièrement dans les sols non cultivés. Dans ce cas, le <sup>90</sup>Sr qui a été transféré aux plantes, qui vont se décomposer dans l'horizon supérieur du sol, va se retrouver recyclé en surface. Cet ef-

fet, particulièrement observé dans les sols de montagne, contribue à maintenir l'activité déposée en surface. La Figure 1 montre le résultat de la mesure d'un profil d'un sol du Jura (St-Cergue, VD). On constate que dans les 30 premiers centimètres du sol, l'activité est pratiquement homogène. Lors du prélèvement de ce profil, le socle rocheux a été rapidement atteint (couche 30-40 cm) et la déposition que l'on peut calculer à partir du prélèvement est donc sous-estimée, puisqu'une partie de l'activité a déjà passé dans l'aquifère. Cette déposition est de  $1845 \pm 150 \text{ Bq/m}^2$ . Au col de la Givrine (VD), où le socle rocheux est atteint à partir de 20 centimètres, on mesure une déposition de  $1665 \pm 130 \text{ Bq/m}^2$ . L'an dernier, une déposition de  $3540 \pm 270 \text{ Bq/m}^2$  a été mesurée sur le site du Chasseron, à environ 10 km à vol d'oiseau de la Givrine [3]. Lors du prélèvement le socle rocheux n'était atteint qu'après environ 80 centimètres, ce qui fait que l'activité se trouvait exclusivement dans le sol. De ces valeurs, on peut conclure qu'après 40 ans de présence dans les sols, la moitié de l'activité peut déjà se retrouver dans l'aquifère, en fonction de l'épaisseur de la couche de sol. Le profil de sol de la Figure 1 montre encore que le  $^{137}\text{Cs}$ , bien qu'homogène dans les dix premiers centimètres du sol, n'a pas migré aussi profondément que le  $^{90}\text{Sr}$  dans les couches plus profondes. L'inventaire en  $^{137}\text{Cs}$  de ce sol est de  $14170 \pm 500 \text{ Bq/m}^2$ , une valeur proche de celle mesurée sur le site du Chasseron ( $17200 \pm 600 \text{ Bq/m}^2$ ). L'inventaire global du  $^{137}\text{Cs}$  est ainsi encore présent dans sa presque totalité dans le sol de St-Cergue et n'a pas encore atteint l'aquifère, illustrant la plus faible mobilité du césium par rapport au strontium.



**Fig. 1:** Profil d'activité en  $^{90}\text{Sr}$  du sol de St-Cergue (VD).



**Fig. 2:** Profil d'activité en  $^{137}\text{Cs}$  du sol d'Ochsenboden près de Studen/SZ

Enfin, le transfert du  $^{90}\text{Sr}$  du sol à l'herbe est un phénomène présent dans tous les sites de prélèvement. Toutefois, les facteurs influençant le transfert sont multiples et il est difficile de déduire un facteur de transfert sol-herbe générique pour tous les sites. Le type de plantes, le contenu en calcium du sol et la nature des particules du sol sont des variables essentielles dans la caractérisation d'un facteur de transfert sol-plante. L'analyse des données des tableaux 1 et 2 montre que les herbes de montagne ont une activité en  $^{90}\text{Sr}$  normalisée à la masse de calcium située entre 0.4 et 1.0 Bq/g Ca contre 0.1 à 0.4 pour les sites de plaine.

Le contenu en uranium de l'herbe varie beaucoup en fonction des sites de prélèvement. Sur le site de Davos l'herbe atteint une activité de 14 Bq/kg de masse sèche alors que sur le site de Rodi-Fiesco, elle atteint à peine 0.25 Bq/kg de masse sèche. Toutefois le rapport des isotopes d'uranium  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ , très proche de 1.0, indique que la présence d'uranium dans l'herbe est d'origine naturelle. L'uranium appauvri a en effet un rapport isotopique  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  inférieur à 0.2.

### 4.3.5 Conclusions

Les mesures dans le sol et l'herbe en Suisse n'ont pas montré de contamination de l'environnement autre que celles liées aux dépositions des retombées des essais d'armes atomiques réalisées dans l'atmosphère durant les années soixante et de l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl. La mesure de profils de sol permet de déterminer la déposition surfacique ( $\text{Bq/m}^2$ ) et d'observer la migration des radioéléments dans le sol. Sur un sol à forte perméabilité et de faible épaisseur, les résultats montrent que près de la moitié de

l'inventaire en  $^{90}\text{Sr}$  a atteint le socle rocheux alors que le  $^{137}\text{Cs}$ , beaucoup plus fortement adsorbé sur les particules de sol, reste en surface. Normalisée à la masse de calcium, l'activité en  $^{90}\text{Sr}$  des herbes est plus importante dans les sites de montagne que dans les sites de plaine.

## Remerciements

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

## Bibliographie

- [1] Denys, S., Echevarria, G., Leclerc-Cessac, E., Masoura, S., Morel, J.-L. (2002). Assessment of plant uptake of radioactive nickel from soil. *Journal of Environmental Radioactivity* 62, 195-205.
- [2] Ebbs, S., Brady, D., Norvell, W., & Kochian, L. (2001). Uranium speciation, plant uptake, and phytoremediation. *Practice Periodical of Hazardous, Toxic, and Radioactive Waste Management*, 5(3), 130-135.
- [3] Froidevaux, P., Geering, J.-J., Schmittler, T., Barraud, F., & Valley, J.-F. Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement. *Environmental radioactivity and radiation exposure in Switzerland*, chap. 7.1, Federal Office of Public Health, Division of Radiation Protection, Chemin du Musée 3, 1700 Fribourg, Switzerland, 2001. ISBN 3-905235-40-4.
- [4] Poucelot, L., Métivier, J.-M. Modélisation spatiale des activités surfaciques des sols du Mercantour. Rapport DPRE/SERNAT/2001-25, Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, Cadarache, 2001.
- [5] Schuller, P., Voigt, G., Handl, J., Ellies, A., & Olivia, L. (2002). Global weapon's fallout  $^{137}\text{Cs}$  in soils and transfer to vegetation in south-central Chile. *Journal of Environmental Radioactivity* 62, 181-193.
- [6] Friedli, C., Geering, J.-J., & Lerch, P. (1991). Some aspects of behaviour of  $^{90}\text{Sr}$  in the environment. *Radiochimica Acta*, 52, 237-240.
- [7] Froidevaux, P., Geering, J.-J., Schmittler, T., Barraud, F., & Valley, J.-F. Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement. *Environmental radioactivity and radiation exposure in Switzerland*, chap. 7.2, Federal Office of Public Health, Division of Radiation Protection, Chemin du Musée 3, 1700 Fribourg, Switzerland, 2000. ISBN 3-905235-36-6.

## 4.4. Quell-, Grund- und Sickerwässer

Heinz Surbeck

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

### 4.4.1 Zusammenfassung

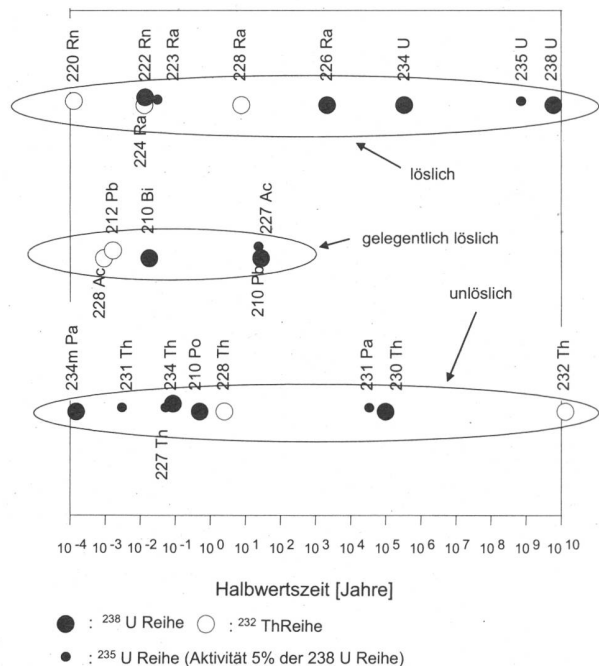
Seit dem 1.1.2002 werden vom Centre d'Hydrogéologie de l'Université de Neuchâtel (CHYN) im Auftrag des BAG Quell-, Grund- und Sickerwässer beprobt und auf ihren Gehalt an Radionukliden untersucht. Da die natürlichen Radionuklide der Uran- und Thoriumreihen den grössten Dosisbeitrag beim Konsum von Trinkwasser liefern, liegt der Schwerpunkt der Analysen bei diesen Nukliden. Es wird gezeigt, welche Nuklide vor allem im Trinkwasser vorkommen, wie sie am CHYN analysiert werden und wozu die Daten gebraucht werden können.

### 4.4.2 Einleitung

Dank einem langfristigen Vertrag zwischen dem BAG und dem CHYN konnte ab dem 1.1.2002 ein Labor für die Bestimmung von Radionukliden im (Grund-) Wasser am CHYN aufgebaut werden. Die Alpha-, Beta- und Gamma-Messplätze sind seit Februar 2002 in Betrieb. Zusätzlich werden seit Mai 2002 auch Radon-Messungen im Gelände durchgeführt (Einzelprouben und kontinuierlich). Neben Routinemessungen an Wasserproben zum Aufbau einer Datenbank über Radionuklide in Schweizer Trinkwässern ist das Labor an Forschung und Unterricht des CHYN beteiligt. Durch diese Beteiligung ist es möglich, gezielt repräsentative Proben zu erheben, die zum Verständnis der Herkunft erhöhter Radionuklidgehalte beitragen können. Das grösste Projekt in dieser Richtung ist eine Dissertation beim CHYN über den Gehalt natürlicher Radionuklide in den Grund- und Quellwässern des Kantons Graubünden. Das Labor kann auch von der grossen Erfahrung des CHYN mit der Gefährdung des Grundwassers durch Deponie-Abwässer und ungenügende Filtrierung in Karstsystemen profitieren. Dadurch ist es möglich, gezielt Proben besonders gefährdeter Wasserversorgungen zu nehmen, insbesondere im Falle eines Unfalls in der Art von Tschernobyl oder eines Transportunfalls. Als "Gegenleistung" kann das Labor dem CHYN helfen, in der Umwelt vorhandene Radionuklide als Tracer und als "Fingerprints" zu nützen. Durch die Beteiligung des Labors am Unterricht werden die zukünftigen Hydrogeologen für mögliche Probleme mit Radionukliden im Trinkwasser sensibilisiert.

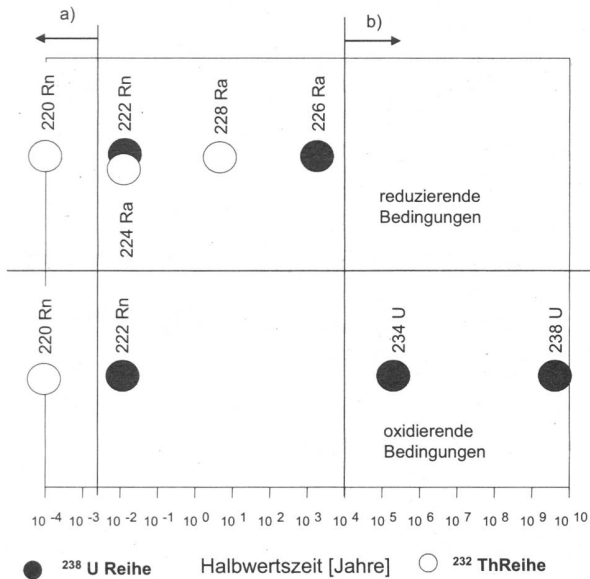
### 4.4.3 Radionuklide der Uran- und Thorium-Reihen im Grundwasser

Die  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  und  $^{235}\text{U}$  Reihen umfassen zusammen etwa 20 Nuklide mit einer Halbwertszeit  $> 1$  min (Fig.1).



**Fig. 1:** Übersicht über die Isotopen der Uran- und Thorium Reihen, geordnet nach Halbwertszeiten und Löslichkeiten [6].

Gut löslich sind in Wässern von Trinkwasser-Qualität aber nur Uran, Radium und Radon. Unter reduzierenden Bedingungen (Sauerstoffmangel) ist Uran allerdings schlecht löslich. Bei genügend Sauerstoff ist Uran gut löslich, aber es können sich Fe-Hydroxide bilden an denen das Radium adsorbiert wird. Die  $^{235}\text{U}$ -Reihe wird hier vernachlässigt, da bei Natururan das  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  Aktivitäts-Verhältnis nur 0.05 beträgt.  $^{220}\text{Rn}$  wird ebenfalls vernachlässigt. Mit einer Halbwertszeit von 56 s, zerfällt es noch während der Probenahme. Zu analysieren bleiben noch  $^{234}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{222}\text{Rn}$  (Fig.2)



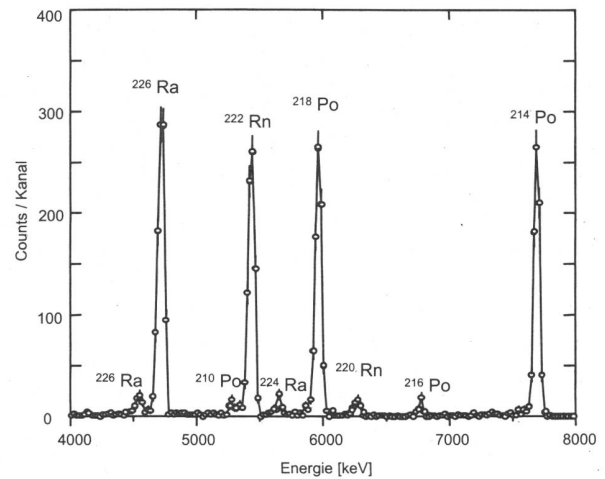
**Fig. 2:** die im Grundwasser bei unterschiedlichen Redox-Bedingungen hauptsächlich zu erwartenden Radionuklide der Uran- und Thorium-Reihen.

- a) Nuklide mit Halbwertszeiten unter dieser Limite zerfallen oder werden aufgebaut während des Transports oder der Lagerung der Proben.
- b) Nuklide mit Halbwertszeiten über dieser Limite können auch mit Massenspektrometrie bestimmt werden.

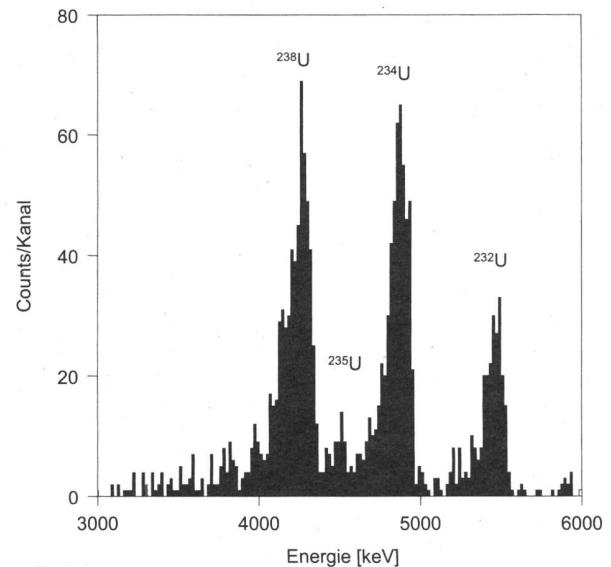
#### 4.4.4 Analysen-Methoden

##### 4.4.4.1. $^{234}\text{U}$ , $^{238}\text{U}$ und $^{226}\text{Ra}$

$^{234}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  und  $^{226}\text{Ra}$  werden alphaspektrometrisch bestimmt. Dank der Präparations-Methode mit selektiver Adsorption an einer dünnen Schicht [1] ist der Arbeitsaufwand wesentlich kleiner als bei klassischen radiochemischen Methoden. Für die Radium-Adsorption wird eine  $\text{MnO}_2$ -Schicht verwendet, für das Uran eine dünne Schicht eines Ionentauscher-Harzes (Diphonix, Eichrom). Die Eindringtiefe der Nuklide in die Schichten ist beim  $\text{MnO}_2 < 1 \mu\text{m}$ , beim Ionentauscher max. einige  $\mu\text{m}$ . Dadurch ergibt sich eine sehr gute Energieauflösung (Fig. 3, 4). Für 100 ml Proben und eine Messzeit von 80'000 s lässt sich eine Nachweisgrenze für  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{234}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  von je 5 mBq/l erreichen.



**Fig. 3:** Alphaspektrum einer Mineralwasser-Probe nach Adsorption an eine  $\text{MnO}_2$ -Schicht.

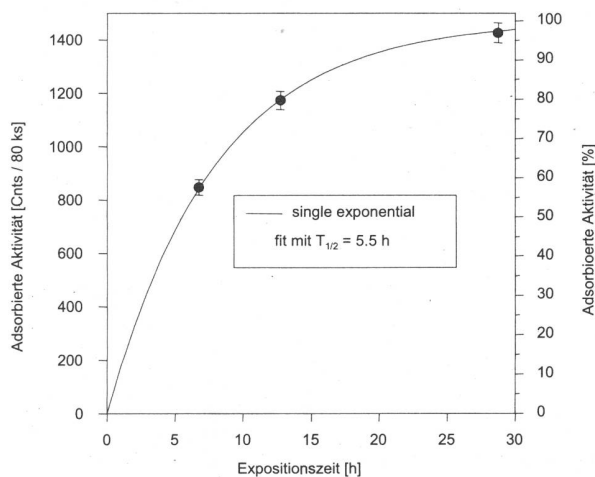


**Fig. 4:** Alphaspektrum einer Mineralwasserprobe nach Adsorption an eine Diphonix-Schicht.  $^{232}\text{U}$  Tracer: ca. 200 mBq/l.

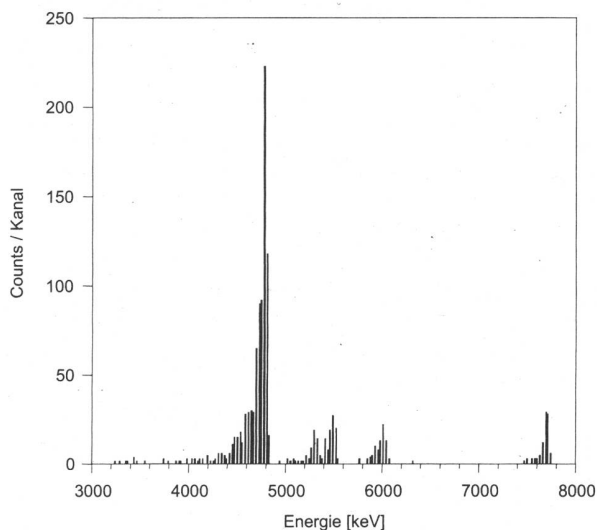
Die Ra-adsorbierenden  $\text{MnO}_2$ -Schichten haben sich für die Präparation der Proben für die Alpha-Spektrometrie bewährt. Sie werden nun auch von 2 Firmen kommerziell hergestellt und vertrieben. Sie wurden auch für die Messkampagne im Kanton Graubünden vom KL-GR hergestellt und eingesetzt (ca. 360 Proben).

Für einige Anwendungen wäre es aber nützlich, eine Ra-adsorbierende Schicht zu haben, die auch bei tiefem pH eingesetzt werden kann. Bei Wässern mit hohem Eisen-Gehalt (mg/l) besteht die Gefahr, dass Fe-Hydroxid ausfällt und ein Teil der Radionuklide daran adsorbiert wird. Das könnte durch Absenken des pH verhindert werden.

Die  $\text{MnO}_2$ -Schichten sind aber nur bei einem  $\text{pH} > 4$  brauchbar. Deshalb wird gegenwärtig ein von Prof. S. Komarneni an der Pennsylvania State University entwickeltes Material, ein modifiziertes Tonmineral, getestet [4]. Es adsorbiert Ra sehr selektiv. Als dünne Schicht auf einem Substrat fixiert kann es wie die  $\text{MnO}_2$ -Schichten zur Probenpräparation benützt werden. Die bis jetzt erst bei  $\text{pH} 6$  durchgeführten Experimente zeigen, dass die Ra-Adsorption etwas langsamer als beim  $\text{MnO}_2$  ist (Fig. 5). Die Energieauflösung ist aber trotz der gegenüber dem  $\text{MnO}_2$  wesentlich dickeren Schicht sehr gut (Fig. 6).



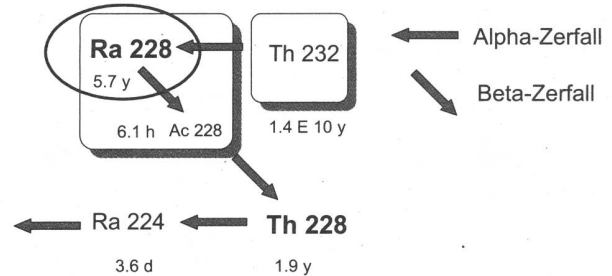
**Fig. 5:** Isotherme bei 25 C für die Adsorption von  $^{226}\text{Ra}$  an einer Schicht von  $\text{Na}_4\text{-mica}$ . Schichtfläche  $2.6 \text{ cm}^2$ , Probenmenge 80 ml,  $^{226}\text{Ra}$  Konzentration 1 Bq/l, Messung mit  $900 \text{ mm}^2$  Si-Detektor. Abstand Probe-Detektor 10 mm



**Fig. 6:** Alphaspektrum für eine  $\text{Na}_4\text{-mica}$ -Schicht ( $2.6 \text{ cm}^2$ ) nach 29h Exposition in 80 ml einer 1 Bq/l  $^{226}\text{Ra}$  Lösung. Gemessen mit einem  $900 \text{ mm}^2$  Si-Detektor im Abstand von 10 mm. Messzeit 80'000 s.

#### 4.4.4.2 $^{228}\text{Ra}$

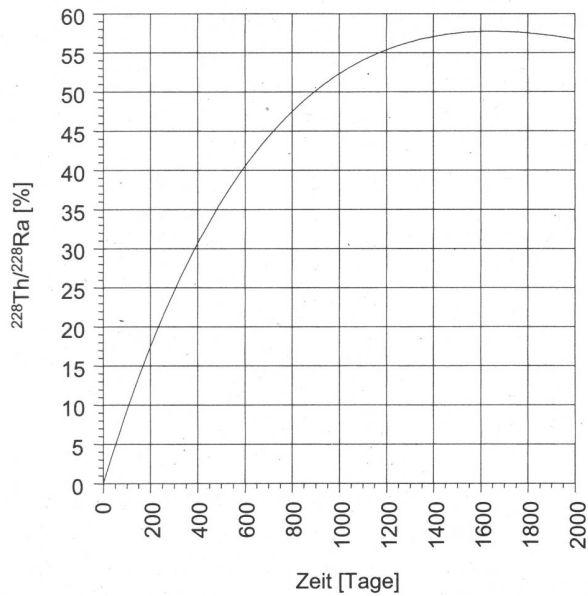
$^{228}\text{Ra}$  kann entweder mit Gammaskpektrometrie über das kurzlebige Tochterprodukt  $^{228}\text{Ac}$  oder mit Alphaspektrometrie nach Aufbau des  $^{228}\text{Th}$  bestimmt werden (Fig. 7).



**Fig. 7:** Zerfallsreihe des  $^{232}\text{Th}$ .

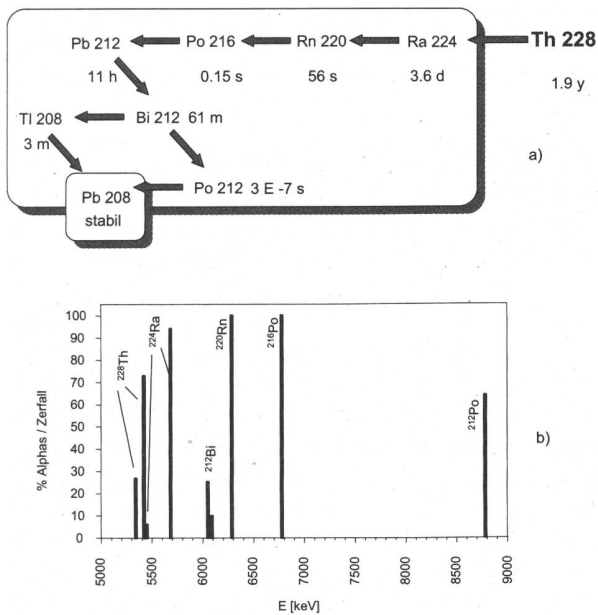
Die Probenvorbereitung für die Gammaskpektrometrie erfolgt entweder durch Eindampfen oder durch Adsorption an einem Kationentauscher. Die anschliessende Messung mit einem low-level Bohrlochdetektor liefert bei 1 Liter Ausgangsmaterial eine Nachweisgrenze von 50 bis 80 mBq/l, bei einer Messzeit von 2 Tagen. Diese Nachweisgrenze liegt bei ca. 10% der schweizerischen Limite, genügt aber nicht um die Einhaltung der strengen deutschen Limite (20 mBq/l) für Säuglingsanfangsnahrung zu überprüfen. Eine tiefere Nachweisgrenze lässt sich mit wesentlich grösseren Probenvolumina oder durch Alphaspektroskopie, allerdings erst nach einer Wartezeit von einigen Monaten, erreichen. Bei stark mineralisierten Wässern ist aber die Probenmenge dadurch beschränkt, dass nur wenige Gramm Eindampfrückstand im Bohrloch des Detektors Platz finden. Bei der Adsorption an Ionentauschern kann aus dem gleichen Grund nur wenig Harz (max. 2 ml) verwendet werden. Bei 0.5 "bed-volumes"/min ergibt das bei mehreren Litern Probe sehr lange Präparationszeiten.

Im Labor des CHYN wird daher nur noch die Alphaspektrometrie-Methode benutzt [2]. Die für die  $^{226}\text{Ra}$  Bestimmung benützten  $\text{MnO}_2$ -beschichteten Plättchen werden nach einer Lagerzeit von einigen Monaten noch einmal gemessen. Das  $^{228}\text{Th}$  baut sich aus dem  $^{228}\text{Ra}$  anfänglich mit einer Rate von etwa 3% pro Monat auf (Fig. 8).



**Fig. 8:** Aufbau des  $^{228}\text{Th}$  aus dem  $^{228}\text{Ra}$

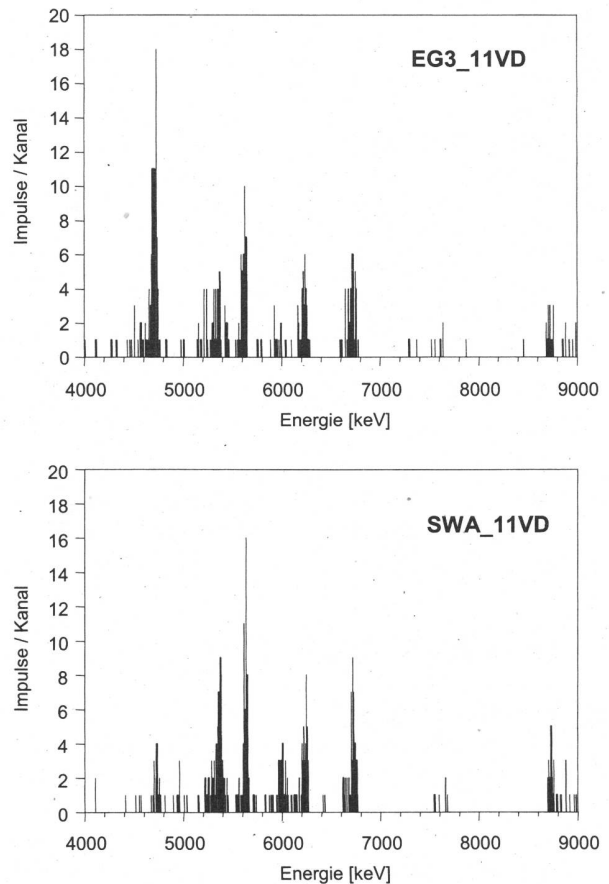
Da neben dem  $^{228}\text{Th}$  auch seine kurzlebigen Tochterprodukte aufgebaut sind (Fig. 9, total 4.64 Alpha-Teilchen) ergibt sich bereits nach 2 Monaten eine tiefere Nachweisgrenze als bei der Gamaspektrometrie.



**Fig. 9:** a) Zerfallsreihe des  $^{228}\text{Th}$ ,  
b) theoretisches Alpha-Spektrum einer > 10 Tage alten  $^{228}\text{Th}$ -Probe

Ausserdem braucht es für die Alphaspektrometrie-Methode nur 100 ml Proben. Fig.10 zeigt die Spektren zweier Proben, die nach einer Wartezeit von ca. 2 Jahren gemessen wurden. Die Tochterprodukte des  $^{226}\text{Ra}$  sind kaum aufgebaut, da das  $^{222}\text{Rn}$  innerhalb seiner Halbwertszeit von 4 Tagen

die  $\text{MnO}_2$  Schicht verlassen kann. Das  $^{222}\text{Rn}$  und seine Tochterprodukte sind dagegen voll aufgebaut, da seine Halbwertszeit von 56 s dem  $^{220}\text{Rn}$  offenbar nicht genügend Zeit lässt die Schicht zu verlassen. Da die  $^{226}\text{Ra}$ -Tochterprodukte im wesentlichen fehlen und alle Tochterprodukte des  $^{228}\text{Th}$  aufgebaut sind und alle Energien der Alpha-Teilchen des  $^{228}\text{Th}$  und seiner Töchter deutlich oberhalb des  $^{226}\text{Ra}$  peaks liegen wird die Auswertung der Spektren einfach.



**Fig. 10:** Alphaspektren von  $\text{MnO}_2$ -Schichten, die vor ca. 2 Jahren in Radium-haltigen Mineralwässern exponiert wurden.

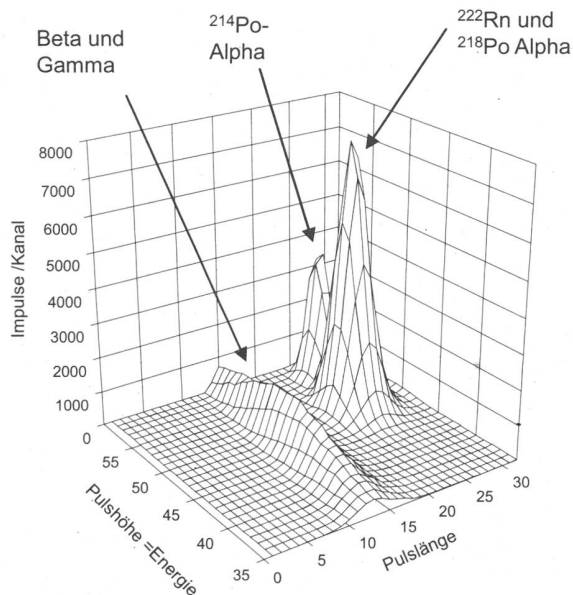
EG3\_11VD:  $^{226}\text{Ra}$ :  $(90 \pm 10)$  mBq/l,  
 $^{228}\text{Ra}$ :  $(100 \pm 10)$  mBq/l  
SWA\_11VD:  $^{226}\text{Ra}$ :  $(30 \pm 10)$  mBq/l,  
 $^{228}\text{Ra}$ :  $(160 \pm 20)$  mBq/l

#### 4.4.3 $^{222}\text{Rn}$

##### 4.4.3.1 Labormessungen

Das LSC-Gerät der Marke Hidex (Triathler) wird routinemässig für die Bestimmung der  $^{222}\text{Rn}$  Konzentration in Wasserproben im Labor eingesetzt. 10 ml der Probe werden mit 10 ml Szintillator (Maxilight) versetzt und nach der Separation von Wasser und Szintillator 7 ml des Szintillators abgezogen und gemessen. Da nur der Szintillator gemessen

wird ist das Quenching vernachlässigbar, was zu einer guten Energieauflösung und einer guten Alpha/Beta Separation führt (Fig. 11). Das ergibt eine tiefe Nachweisgrenze von ca. 0.5 Bq/l für eine 10 ml Probe bei einer Messzeit von 1000 s.



**Fig.11:** 2-D Spektrum einer Radonprobe, gemessen mit dem Triathler von Hidex. 7 ml Maxilight-Szintillator, 7 ml- frosted glass vial.

#### 4.4.3.2 Feldmessungen

##### a) Batchmessungen

Für Radonbestimmungen im Wasser werden 250 ml Proben entgast und die Radonkonzentration wird in der Gasphase mit einem RAD7-Radon-Detektor (Niton) gemessen. Die Nachweisgrenze liegt bei etwa 0.5 Bq/l. Die Kalibrierung erfolgt mit Parallelproben, die im Labor mit LSC gemessen werden.

##### b) Kontinuierliche Messungen

Bei den kontinuierlichen Messungen wird ein geschlossener Luftkreislauf über einen semipermeablen Schlauch (Accurel) an das zu messende Wasser gekoppelt. Die Radonkonzentration in der Gasphase wird mit einem Lukaszellen-Detektor (Eigenbau) bestimmt [3]. Bei einer Zeitauflösung von 15 min sind Änderungen der Radonkonzentration im Wasser ab etwa 0.5 Bq/l feststellbar. Die Kalibrierung erfolgt wie für die Batch-Messungen über Parallelproben, die im Labor gemessen werden.

#### 4.4.4 Gammaspektrometrie

Zur Analyse von festen Proben (Gesteine, Böden) und Schlämmen stehen 2 Gamma-Detektoren zur Verfügung:

- Dünner (10mm) HPGe Detektor mit Carbon/Expoxy-Fenster für Messungen bei tiefen Energien (10 keV - 300 keV), in einer Cu-Abschirmung
- HPGe-Bohrloch-Detektor in einer Pb-Abschirmung, für low-level Messungen von Proben bis etwa 3 cm<sup>3</sup>

#### 4.4.5 Resultate und Verwendung der Daten

##### 4.4.5.1 Datenbank

Die bisher verstreut, z.T. nicht einmal in elektronischer Form, vorhandenen Daten wurden nun in einer einzigen Datenbank zusammengefasst. Sie enthält im Moment Angaben zu etwa 1200 Proben, davon sind etwa 1/3 Proben die von der SUER bis und mit 2001 und seit Anfang 2002 vom CHYN gemessen wurden. 1/3 sind Proben, die im Rahmen einer Dissertation 2002 im Kanton Graubünden erhoben und gemessen wurden. Die Angaben zu den restlichen Proben stammen aus Publikationen der NAGRA und aus diversen anderen Quellen.

Die Anzahl der pro Probe bestimmten Nuklide ist sehr unterschiedlich, mit folgender Häufigkeit der Angabe eines Wertes: <sup>238</sup>U >> <sup>234</sup>U > <sup>226</sup>Ra >> <sup>228</sup>Ra > <sup>210</sup>Po > <sup>210</sup>Pb > künstl. Radionukl.

Sehr unterschiedlich sind auch Qualität, Nachweisgrenzen und Vollständigkeit (Ort, Datum, Koordinaten, Probennehmer etc.). Dies macht eine statistische Verarbeitung der Daten (Karten, Häufigkeitsverteilung) schwierig. Zugriff zur vollständigen Datenbank haben deshalb vorläufig nur die Mitarbeiter des CHYN-Labors. An Interessenten ausserhalb des Labors können Auszüge entsprechend den gewünschten Such-Kriterien geliefert werden. Aus Datenschutzgründen müssen gewisse Angaben anonymisiert werden. Die Datenbank ist im Rohbau fertiggestellt. Die Daten von vor 2002 müssen aber noch überarbeitet und auf ihre Qualität überprüft werden. Es soll auch versucht werden weitere Daten anderer Labors und Organisationen zu integrieren.

Die bisher in der Datenbank erfassten Werte ergeben folgendes Bild für die Belastung der Trinkwässer mit Radionukliden:

- Alle untersuchten Trinkwässer, einschliesslich der Flaschenwässer (auch Import) erfüllen die Schweizer Vorschriften für "flüssige Lebensmittel" (Fremd- und Inhaltsstoffverordnung).
- Erhöhte  $^{226}\text{Ra}$  Konzentrationen sind vor allem in importierten Mineralwässern zu finden.
- Erhöhte Uran-Konzentrationen sind "geologisch bedingt" und zeigen sich insbesondere in Wässern des Wallis.
- Einige Schweizer Mineralwässer weisen  $^{228}\text{Ra}$  Konzentrationen auf, die zu Problemen mit dem Export in EU-Länder führen könnten.
- Die künstliche Radioaktivität der Trinkwässer ist vernachlässigbar.

#### 4.4.5.2 Mineralwässer

Erneut gemessen wurden Uran und Radium in den einheimischen Wässern "Heidiland" (Mels) und "Arkina" (Yverdon). Während die (tiefen) Werte bei "Heidiland" seit der letzten Messung (2000) konstant blieben, lag der  $^{226}\text{Ra}$  Gehalt im "Arkina" mit  $(120 \pm 10)$  mBq/l tiefer als bei der Messung vor 2 Jahren ( $(220 \pm 50)$  mBq/l). Das "Heidiland"-Wasser wird inzwischen nicht mehr produziert.

Die seit kurzem auf dem Schweizer Markt erhältlichen Mineralwässer "Ulmata", "Uliveto" und "Fonti del Castello" (alle aus Italien) weisen nur Spuren von Radium und Uran auf. Während das auf dem Schweizer Markt nach dem Verbot von 1996 letztes Jahr wieder aufgetauchte "Pedras Salgadas" (Portugal) nur noch etwa 30% des  $^{226}\text{Ra}$  Gehaltes von 1996 aufweist, zeigt eine in Portugal gekaufte Pedras-Probe die alten 1996er Werte ( $> 1$  Bq/l an  $^{226}\text{Ra}$ ).

Die EU-Trinkwasser-Richtlinie 98/83/EC vom 3.11.1998 legt fest, dass die Dosisbelastung durch den Konsum von Trinkwasser 0.1 mSv/a nicht überschreiten soll. Obwohl Art. 3 a) natürliche Mineralwässer ausdrücklich von dieser Richtlinie ausschliesst hat Deutschland bei der Umsetzung in nationales Recht 0.1 mSv/a als Limite für natürliche Mineralwässer festgelegt. Im Gegensatz zur schweizerischen Gesetzgebung werden dabei zur Dosisberechnung altersabhängige Dosisfaktoren benützt. Es wird auch angenommen, dass der gesamte Trinkwasserbedarf durch Mineralwasser gedeckt wird. Eine breit angelegte Untersuchung des Deutschen Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) hat gezeigt, dass unter diesen Annahmen der Konsum zahlreicher in Deutschland verkaufter Mineralwässer in einzelnen Altersgruppen zu Dosen  $> 0.1$  mSv/a führt. Wesentliche Ursache ist der Gehalt an  $^{226}\text{Ra}$  und insbesondere  $^{228}\text{Ra}$ . Die verwendeten Dosisfaktoren sind für das  $^{228}\text{Ra}$  bis zu

einem Faktor 6 höher als für das  $^{226}\text{Ra}$ . Bei Mineralwasser für die Zubereitung von Säuglingsnahrung, bei Säuglingen die nie gestillt werden, führt das zu Limiten von 120 mBq/l für das  $^{226}\text{Ra}$  und zu 20 mBq/l für das  $^{228}\text{Ra}$ .

In Schweizer Mineralwässern werden die 120 mBq/l für das  $^{226}\text{Ra}$  in einem Fall gerade erreicht. Die wenigen bisher vorhandenen  $^{228}\text{Ra}$  Bestimmungen haben aber Aktivitätskonzentrationen in anderen Mineralwässern bis 180 mBq/l gezeigt. Das ist zwar bei weitem keine Überschreitung der gegenwärtig gültigen schweizerischen Limiten.

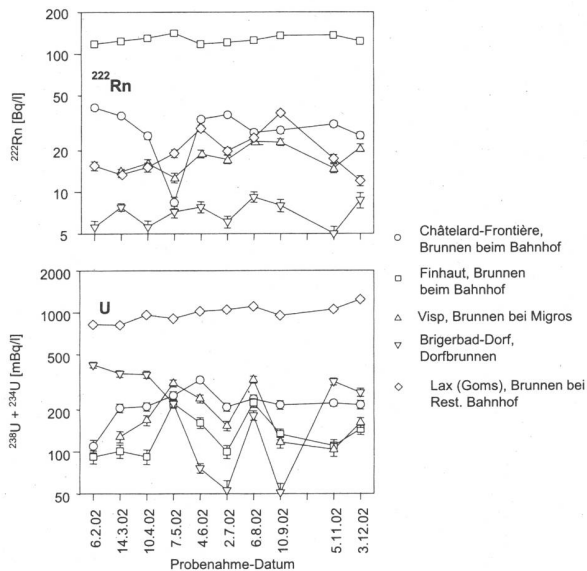
Es ist daher sicher sinnvoll in Zukunft routinemässig neben dem leichter zu messenden  $^{226}\text{Ra}$  auch das  $^{228}\text{Ra}$  zu bestimmen. Als einziges gut lösliches langlebiges Nuklid in der  $^{232}\text{Th}$ -Reihe liefert das  $^{228}\text{Ra}$  auch wertvolle Information für die Hydrogeologie.

Zur Messung des  $^{228}\text{Ra}$  siehe Abschnitt 4.4.4.2

#### 4.4.5.3 Zeitreihen

Fünf öffentlich zugängliche Brunnen im Wallis werden seit Februar 2002 monatlich beprobt.  $^{222}\text{Rn}$  und Uran werden monatlich gemessen, das  $^{226}\text{Ra}$ , das für diese Wässer nahe bei der Nachweigrenze liegt, nur etwa alle 6 Monate. Die Auswahl der Brunnen erfolgte aufgrund früherer Messungen, die entweder hohe Uran- oder hohe Radon-Konzentrationen zeigten. Wie in Fig.12 zu sehen ist, treten nicht nur beim Radon, sondern auch beim Uran beträchtliche zeitliche Schwankungen auf. Die Zeitreihe soll mindestens zwei Jahre lang durchgezogen werden um eventuelle saisonale Trends erkennen zu können. Zur Beantwortung hydrogeologischer Fragen sind diese Proben nicht geeignet. Die Brunnen hängen mit Ausnahme des Brunnens in Finhaut am Trinkwassernetz und können daher Wasser von ganz unterschiedlichen Quellen enthalten. Das zeigt sich besonders beim Brunnen in Brigerbad-Dorf. Bei erhöhtem Wasserverbrauch oder Unterhaltsarbeiten wird Wasser (mit deutlich tieferem Uran-Gehalt) von Brig zugeführt.

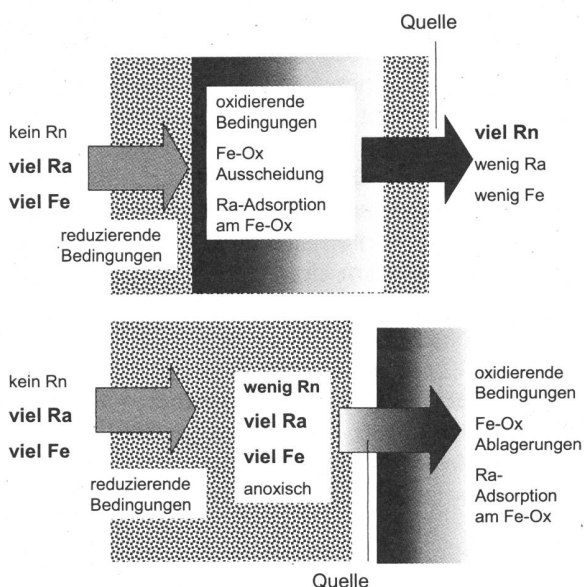
Die Beutung dieser Proben liegt beim Strahlenschutz. Sie zeigen, mit welchen zeitlichen Schwankungen der Radionuklid-Konzentration in einem Trinkwassernetz zu rechnen ist.



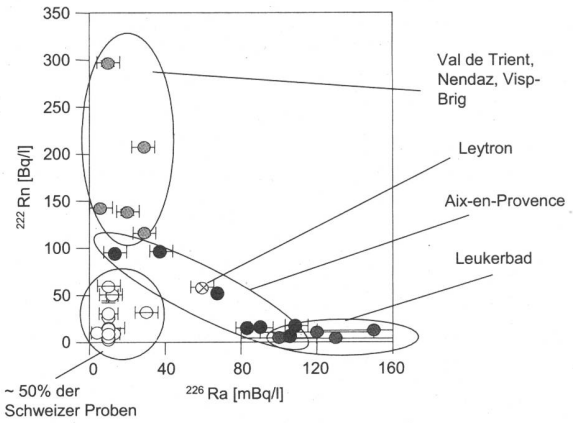
**Fig. 12:** Zeitreihen für Radon und Uran für 5 öffentliche Brunnen im Wallis

#### 4.4.5.4 Zusammenhang zwischen Radon- und Radium-Konzentration (Diplomarbeit Yanick Lettry)

Radium wird von Fe-Hydroxiden sehr gut absorbiert und produziert so nahe der Oberfläche Radon das leicht ins Wasser austritt und damit transportiert wird. Erhöhte Radonkonzentrationen im Wasser sollten daher von tiefen Radium-Konzentrationen begleitet sein (Fig.13). Das zeigte sich im Laufe einer Diplomarbeit in Aix-en-Provence deutlich bei mehreren Thermal-Quellen und bestätigte damit frühere Messungen in der Schweiz (Fig.14)



**Fig. 13:** Modellvorstellung über den Zusammenhang zwischen Radium- und Radon-Konzentration



**Fig. 14:**  $^{222}\text{Rn}$  vs.  $^{226}\text{Ra}$

#### 4.4.5.5 Natürliche Radionuklide im Trinkwasser des Kantons Graubünden (Dissertation Otmar Deflorin und Diplomarbeit François Gainon)

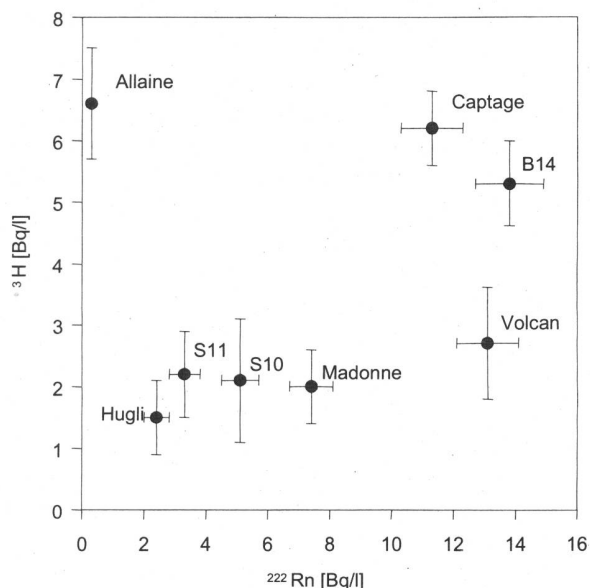
Im Kanton Graubünden wurden in der ersten Jahreshälfte 2002 die Trinkwässer sämtlicher Gemeinden durch das Kantonale Labor beprobt. Neben den üblichen Parametern wurden zusätzlich auch Uran,  $^{222}\text{Rn}$  und  $^{226}\text{Ra}$  an den 360 Proben bestimmt. Die Bestimmung des Urans erfolgte mittels ICP-MS am KL-ZH.  $^{222}\text{Rn}$  wurde durch Ausgasen und anschließende Messung der Radonkonzentration im Luftkreislauf bestimmt (Niton RAD7).  $^{226}\text{Ra}$  wurde durch Adsorption des Radiums an einer  $\text{MnO}_2$ -Schicht und anschließende Alpha-spektrometrie gemessen. Diese Probenahmen und Messungen sind Teil einer Dissertation beim CHYN und erfolgen in enger Zusammenarbeit mit dem Radionuklidlabor des CHYN, das das know-how zur Verfügung stellt und sich um die Kalibrierung für das  $^{222}\text{Rn}$  und das  $^{226}\text{Ra}$  kümmert. Die Resultate wurden inzwischen publiziert [5].

In einer weiteren Kampagne werden gegenwärtig die Mineralwasser-Quellen des Kantons Graubünden beprobt und die  $\text{MnO}_2$  Plättchen ein zweites Mal gemessen um das  $^{228}\text{Ra}$  zu bestimmen.

Mit der Diplomarbeit eines Hydrogeologie-Studenten des CHYN, die im Herbst 2002 begann, soll der Ursache für die extrem hohe Radonkonzentration in der Quelle St. Placi bei Disentis nachgegangen werden. Die Quelle, deren Wasser früher im "Disentiserhof" als Badekur-Wasser genutzt wurde, weist mit 650 Bq/l die höchste bisher in der Schweiz gemessene Radon-Konzentration auf.

#### 4.4.5.6 Kombinierte Radon- und Tritium-Messungen (Feldkurs 2002)

In der Nähe von Buix, an der Allaine, NE von Porrentruy liegt ein Übungsfeld für die Hydrogeologie-Studenten des CHYN. 2002 wurden erstmals Radionuklide mit in den Feldkurs einbezogen. Das Übungsfeld, eine Alluvial-Ebene, grenzt im NE an den Fluss Allaine und im SW an steil ansteigende stark verkarstete Juraformationen mit Quellaustritten. Das Grundwasser in dieser Ebene wird von der Gemeinde Buix aus einer untiefen Bohrung ("Captage") als Trinkwasser genutzt. Herkunft und Verweilzeit des Grundwassers sind nicht ganz klar. Es gibt Vermutungen, dass neben der Infiltration aus der Allaine Tiefenwässer einen wesentlichen Anteil ausmachen. Die dieses Jahr erstmals durchgeführten Radon-, Radium, Uran- und Tritium-Bestimmungen sprechen gegen diese Vermutung (Fig.15). Proben aus dem Grundwasser ("Captage", B14) haben praktisch die gleich grosse Tritium-Konzentration wie die Allaine (ca. 6 Bq/l). So hohe Werte sind bei Tiefenwässern nicht zu erwarten. Sie sind auch deutlich höher als die Tritium-Konzentrationen in den Karstquellen ("Hugli", S11, S10, "Madonne" und "Volcan") die nahe an den 2 Bq/l liegen, die für frisches Regenwasser zu erwarten sind. Ausserdem ist im Wasser aus der "Captage" kein  $^{226}\text{Ra}$  nachweisbar ( $< 5 \text{ mBq/l}$ ), im Gegensatz zu den  $(160 \pm 30) \text{ mBq/l}$  die im "Dogger-Wasser" in einer Tiefbohrung im benachbarten Courtemaîche gefunden wurden.



**Fig. 15:** Tritium- und Radonmessungen an Proben aus dem Versuchsfeld von Buix. Probenahme vom 19.3.02. Tritium-Messungen durch die SUER in Fribourg.

Die  $^{222}\text{Rn}$ -Konzentration ist ein Mass für die Verweilzeit des Wassers im Boden. Aus der Allaine

infiltrierendes, radonfreies Wasser nimmt mit der Zeit Radon aus dem Aquifermaterial auf. Nach 10 bis 20 Tagen Verweilzeit ist ein Gleichgewicht zwischen Aufnahme und Zerfall erreicht. Die Bohrung B14 (Piezometer) liegt weit genug von der Allaine weg so dass der Wert von ca. 14 Bq/l als Gleichgewichtswert angesehen werden kann. Der Wert in der "Captage" ist nicht weit davon entfernt und steigt beim Abpumpen auf gut 14 Bq/l an. Das Wasser ist also zwischen der Allaine und der "Captage" mindestens 10 Tage unterwegs, eine gute Voraussetzung dafür, dass sich Verschmutzungen der Allaine nicht zu sehr auf das Wasser der "Captage", oder zumindest mit erheblicher Verzögerung, auswirken sollten.

Ein Spezialfall für sich ist die Quelle "Volcan". Sie reagiert zwar wie eine Karstquelle sehr rasch und heftig auf Niederschläge (daher der Name), die  $^{222}\text{Rn}$  Konzentration ist aber viel zu hoch für eine Karstquelle, vergleichbar mit dem Wert für die "Captage" oder B14.

Die ca. 6 Bq/l Tritium in der Allaine sind deutlich höher als die etwa 2 Bq/l in frisches Niederschlägen in der Schweiz. Da die Werte für die "Captage" und B14 auch so hoch sind, dürften die 6 Bq/l nicht einfach eine einmalige Erhöhung gewesen sein. Es ist daher vorgesehen, die Allaine regelmässig zu beproben und auch ein Profil längs des Flusses aufzunehmen um die Kontaminations-Quelle zu lokalisieren.

#### 4.4.5.7 Kombinierte Radon- und $\text{CO}_2$ -Messungen (Diplomarbeit Ludovic Savoy)

15% des Trinkwassers wird in der Schweiz aus Karstquellen bezogen, aus Quellen die als besonders kontaminationsgefährdet gelten, da die Aufenthaltszeit des Wassers im Karst im allgemeinen als sehr kurz angenommen wird. Es gibt nun aber Hinweise darauf, dass in der Übergangszone zwischen Boden und Karst, dem "Epikarst" grosse Mengen Wasser über längere Zeit gespeichert bleiben können. Am CHYN läuft dazu seit einigen Jahren ein Forschungsprojekt mit dem Ziel die Transportvorgänge und biologischen Prozesse im Epikarst besser zu verstehen. Biologische Prozesse können bei längerer Aufenthaltszeit des Wassers zu einem natürlichen Abbau von Schadstoffen führen. Eine längere Aufenthaltszeit als bisher angenommen würde auch Karstwässer wesentlich weniger anfällig auf Kontaminationen durch radioaktiven Fallout machen.

Um die Rückhaltung des Wassers im Epikarst abschätzen zu können, sollte an der Quelle zwischen frischem Regenwasser, Wasser aus dem Boden, Wasser aus dem Epikarst und Wasser aus dem

Speichergestein unterschieden werden können. Das gelingt nur zum Teil durch Zugabe künstlicher Tracer zum Wasser bei Beregnungsversuchen. Im Rahmen einer Diplomarbeit beim CHYN wurde nun versucht natürlich im Boden vorhandene Tracer zu nützen.

Diese sind Radon, das im Boden in wesentlich höheren Konzentrationen als in tieferen Schichten (Epikarst, Speichergestein) vorhanden ist und  $\text{CO}_2$ , das im Boden durch Mikroorganismen produziert wird. Niederschlagswasser transportiert das Radon und das  $\text{CO}_2$  aus dem Boden in tiefere Schichten. Das Radon zerfällt dabei mit einer Halbwertszeit von etwa 4 Tagen, das  $\text{CO}_2$  reagiert aber viel langsamer mit dem Kalk. Es stehen daher zwei natürliche Tracer mit sehr unterschiedlichen Halbwertszeiten zur Verfügung. Im Regenwasser sind sowohl die Radonkonzentration als auch die  $\text{CO}_2$ -Konzentration sehr tief. Die Wässer aus den verschiedenen Medien können daher unterschieden werden. Zur Unterscheidung von Niederschlagswasser und Speichergestein-Wasser, die beide nur wenig Radon und  $\text{CO}_2$  enthalten, kann die Leitfähigkeit benützt werden, die beim Regenwasser sehr tief ist:

Um diese Hypothese zu testen wurde in einer Karsthöhle im Jura (Milandre bei Boncourt) Ende August 2002 eine Apparatur zur kontinuierlichen Messung von Radon und  $\text{CO}_2$  im Wasser montiert. Erste Resultate zeigen, dass wir mit der Hypothese auf dem richtigen Weg sind. Die Untersuchungen werden nun im Rahmen zweier Dissertationen weitergeführt. Eine wird sich auf Karstsysteme des Juras konzentrieren, bei der anderen wird ein Karstsystem im Gruyère (Kt. Freiburg) untersucht.

#### 4.4.6 Danksagung

Diese Untersuchungen sind nur dank der Unterstützung durch das BAG möglich, das die Messgeräte zur Verfügung stellt und den Betrieb des Radionuklid-Labors des CHYN finanziert.

#### 4.4.7 Literatur

- [1] Surbeck, H., Alpha spectrometry sample preparation using selectively adsorbing thin films, *Applied Radiation and Isotopes* 53 (2000) 97-100
- [2] Eikenberg, J., Tricca, A., Vezzu, G., Bajo, S., Ruethi, M. and Surbeck, H., Determination of Ra-228, Ra-226 and Ra-224 in natural water via adsorption on  $\text{MnO}_2$ -coated discs, *J. Environmental Radioactivity* 54 (2001), 109-131
- [3] Surbeck, H., A radon-in-water monitor based on fast gas transfer membranes, In: *Proc. Int. Conf on Technologically Enhanced Natural Radioactivity*, 16-19 Sept. 1996, Szczyrk, Poland.
- [4] Komarneni, S., Kozai, N. and Paulus, W.J. Superselective clay for radium uptake *Nature* 410, 771 (2001)
- [5] Deflorin, O. und Surbeck, H., Natürliche Radionuklide im Trinkwasser am Beispiel des Kantons Graubünden. *GWA (Gas, Wasser, Abwasser)*, 1, 2003, 40 - 45.
- [6] Osmond, J.K. and Cowart J.B., in *Uranium Series Disequilibrium*, Ivanovich, M. and Harmon, R.S. (Eds), Claredon Press, Oxford 1982, 207