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: Band:	Bundesamt für Gesundheit, Abteilung Strahlenschutz - (2014)

Rubrik: Umwelt = Environnement

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. <u>Siehe Rechtliche Hinweise.</u>

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. <u>Voir Informations légales.</u>

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. <u>See Legal notice.</u>

Download PDF: 26.04.2025

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

Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz

Radioactivité de l'environnement et doses de rayonnements en Suisse

Ergebnisse 2014 Résultats 2014



4

Umwelt Environnement

4 Umwelt - Environnement - @OFSP 2015

















Inhaltverzeichnis / Sommaire

4.1 Radioaktivität in der Luft (Aerosol) und im Niederschlag	55
Zusammenfassung	55
Luft	55
Niederschlag	58
4.2 RADAIR	59
Résumé	59
Introduction	59
Principe de mesure	60
Les modifications apportées en 2014	60
Les résultats de mesure	60
4.3 Überwachung der Radioaktivität der Luft mit Militärflugzeugen	64
Zusammenfassung	64
Vorgeschichte	64
Sammlung der Proben	65
Messung der Proben	66
4.4 Radioaktivität in aquatischen Systemen	67
Zusammenfassung	67
Ziele	67
Methoden	68
Ergebnisse	69
Langfristige Entwicklung der Radionuklidabgaben und Frachten in Aare und Rhein	70
Partikelproben	70
Fische	72
Grundwasser	72
Aufbau eines automatischen Messnetzes zur Überwachung der Radioaktivität in den Flüssen	73
4.5 ¹³⁷ Cs, ²⁴¹ Am und ^{239,240} Pu in einem Sediment des Klingnauer Stausees	74
Einleitung	74
4.6 Radioactivité du sol et de l'herbe	78
Résumé	78
Introduction	78
Résultats et discussion	80
Conclusions	81

4.1 Radioaktivität in der Luft (Aerosol) und im Niederschlag

P. Steinmann, S. Estier, P. Beuret, G. Ferreri, A. Gurtner, T. Marti, M. Müller Sektion Umweltradioaktivität, URA / BAG, 3003 BERN

Zusammenfassung

Die Messungen der Überwachung der Radioaktivität in der Luft und im Niederschlag haben im Jahr 2014 keine erhöhten Werte gezeigt, welche eine Gefährdung der Gesundheit der Bevölkerung dargestellt hätten. In diesen Umweltkompartimenten überwiegt der Anteil an natürlicher Radioaktivität deutlich. Dank der grossen Empfindlichkeit der verwendeten Messmethoden konnten trotzdem kleinste Spuren von künstlichen Radionukliden auf den Aerosol-Partikeln nachgewiesen werden. Im Wesentlichen handelt es sich dabei um ¹³⁷Cs, welches noch aus den alten Ablagerungen während der Atomwaffenversuche der 50-er und frühen 60-er Jahren und des Reaktorunfalles von Tschernobyl stammt. Die gemessenen Konzentrationen von künstlichen Gamma- und Alpha-Strahlern liegen um viele Grössenordnungen tiefer als die entsprechenden Immissionsgrenzwerte aus der Srahlenschutzverordnung (StSV).

Im Niederschlag, d.h. in Regen und Schnee, wurden 2014 mit Ausnahme von Tritium und sporadischen Spuren von ¹³⁷Cs keine künstlichen Radionuklide nachgewiesen. Die Tritiumkonzentrationen in der unmittelbaren Umgebung von Tritium-verarbeitender Industrie erreichten im Maximum 9% des Immissionsgrenzwertes der StSV für öffentlich zugängliche Gewässer. Beim ¹³⁷Cs lagen auch die höchsten Konzentrationen um mindestens einen Faktor 10'000 unterhalb des Immissionsrenzwertes.

Luft

Probenahme und Messung

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

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

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

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

Tabelle 1: HVS-Stationen des BAG

Künstliche Radioisotope in der Luft

Als einziges künstliches Radioisotope war auch im Jahr 2014 das ¹³⁷Cs regelmässig nachweisbar (siehe Fig. 1). Dies allerdings in sehr geringen Konzentrationen. Die höchsten Werte von knapp über 3 μ Bq/m³ wurden im Januar sowie Dezember für die Station Cadenazzo gemessen. Dieser Wert ist eine Million Mal tiefer als der ¹³⁷Cs-Immissionsgrenzwert für Luft von 3'300'000 μ Bq/m³. Etwas höhere ¹³⁷Cs Konzentrationen in den Wintermonaten sind typisch für alle HVS-Stationen und sind wahrscheinlich durch aufgewirbelte Bodenpartikel in der vegetationsarmen Zeit erklärbar. Weil die Böden im Kanton Tessin nach Tschernobyl stärker kontaminiert wurden als im Mittelland erklärt diese Hypothese auch die etwas höheren Werte der Station Cadenazzo.

Das radioaktive Natriumisotop ²⁴Na mit einer Halbwertszeit von 15 Stunden kann sowohl natürliche als auch künstliche Quellen haben. Natürliches ²⁴Na wird wie das ⁷Be und ²²Na in der oberen Atmosphäre durch die kosmische Strahlung erzeugt. Künstliches ²⁴Na kann in Beschleunigern erzeugt werden, wie sie z. B. am Cern in Genf oder am PSI in Villigen im Einsatz stehen. Beim HVS CERN konnten im Berichtsjahr keine Spuren von 24Na nachgewiesen werden (typische Nachweisgrenze: 70 µBg/m³). Hingegen zeigten 3 Filter aus Klingnau messbare Spuren von ²⁴Na (27-130 μBq/m³). Die HVS Station Klingnau liegt in rund 6 km Entfernung vom PSI, welches daher als mögliche Quelle in Betracht gezogen werden muss. Die gemessenen ²⁴Na Werte liegen allerdings deutlich unterhalb des Immissionsgrenzwertes von 100 Bq/m3 im Wochenmittel (d.h. die Messwerte betragen ca. 1 Millionstel des Grenzwertes). Ein natürlicher Ursprung für das ²⁴Na in Klingnau ist nicht wahrscheinlich, da der höchste Wert im November auftrat und gleichzeitig sehr wenig ⁷Be (700 µBg/m³) gemessen wurde. Bei Luftmassen mit Herkunft obere Troposphäre wäre 7Be ein Vielfaches höher gewesen. In den übrigen HVS-Stationen konnte 2014 kein ²⁴Na nachgewiesen werden. Die berechnete ²⁴Na Aktivität beruht auf der Annahme einer über die gesamte Sammelzeit konstanten Konzentration in der Luft.

Geringste 131 I Konzentrationen tauchten 2014 in 3 Filtern der HVS Station Cadenazzo auf (höchster Wert: 2.8 μ Bq/m³ im November).



Plutonium-Isotope wurden 2014 an vier Sammelproben von HVS-Filtern der Station Liebefeld bestimmt - eine Probe mit Filtern vom Sommer und eine Probe mit Filtern vom Winter. Die Summe der Alphastrahler ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu und ²⁴¹Am ergab 1.1±0.2 nBq/m³ im Winterhalbjahr 2013/2014 und 2.6±0.5 nBg/m³ im Sommerhalbiahr 2014. Für die Stationen Klingnau und Posieux wurden Ganzjahresproben (Oktober 2013 - September 2014) analysiert. Die Summe der Alphastrahler betrug 1.9 ± 0.3 nBq/m³ (Posieux) und 3.5 ± 0.4 nBq/m³ (Klingnau). Diese Konzentrationen der künstlichen Alphastrahler sind sehr tief und liegen wie beim 137Cs ungefähr eine Million Mal tiefer als der Immissionsgrenzwert. Erwähnenswert ist auch, dass die Konzentrationen von künstlichen Radionukliden in Stratosphärenluft bis zu tausend Mal höher sein können als in der bodennahen Luft. Die Erklärung dafür ist die lange Aufenthaltsdauer von kleinsten Aerosolpartikel mit Radionukliden von den oberirdischen Atomwaffentests (Referenz 1).

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

Natürliche Radioisotope in der Luft

Die 2014 auf den HVS Filtern gemessenen Radioisotope waren fast ausschliesslich natürlicher Herkunft. Vorherrschend waren das langlebige Radonfolgeprodukt ²¹⁰Pb und das kosmogene, in hohen Schichten der Atmosphäre gebildete ⁷Be. Die Konzentration von ²¹⁰Pb lag im üblichen Bereich von 0.1 bis 1.5 mBq/m³ (Mittelwert 0.5 mBq/m³); die Konzentrationen für ⁷Be schwankten zwischen



Figur 2:

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

0.2 und 8.4 mBq/m³ (Mittelwert 3.3 mBq/m³).

Neben ⁷Be war in kleinsten Spuren von meist weniger als einem μ Bq/m³ das ebenfalls kosmogene ²²Na nachweisbar. Die Figur 2 zeigt für jeden Monat die Verteilung der ⁷Be Konzentrationen aller Stationen im Vergleich mit dem langjährigen Jahresverlauf. Die relativ kühlen und regnerischen Monate Mai, August und September - in einem sonst sehr warmem 2014 (MeteoSchweiz, Klimabulletin Jahr 2014) - zeichneten sich durch vergleichsweise tiefe ⁷Be Konzentrationen aus. Das fehlende Erwärmen der tiefen Luftschichte hatte zur Folge, dass in diesen Monaten der Austausch zwischen der oberen Troposphäre und bodennaher Luft relativ schwach war und dass so nur wenig ⁷Be-reiche Luft an die



Erdoberfläche gelangte. Der höchste ⁷Be-Wert trat Mitte März während einer trockenen warmen Periode auf. Das höchste 7Be Monatsmittel sah der Monat Juni, in welchem gleichzeitig die höchsten Temperaturen des Jahres verzeichnet wurden (Klimabulletin Jahr 2014). Dies verdeutlicht, dass die konvektive vertikale Durchmischung der Troposphäre den Haupteinfluss auf die 7Be Konzentrationen in der bodennahen Luft hat. Weitere Faktoren sind Niederschlag (Auswaschen von aerosolgebundenem 7Be) und die Sonnenaktivität (negative Korrelation mit der Produktion von 7Be in der oberen Atmosphäre). Die Sonnenaktivität 2014 war übrigens die höchste des aktuellen Sonnenzyklus 24 (http://solarscience.msfc.nasa.gov/). Die Produktion von 7Be war also entsprechend gering. Gleichzeitig war 2014 aber das wärmste Jahr seit Beginn der Aufzeichnungen (Klimabulletin Jahr 2014), sodass die hohe vertikale Durchmischung der Troposphäre dennoch für etwas höhere 7Be Konzentrationen in bodennaher Luft sorgte als etwa im Vorjahr.

Als weiteres natürliches Radioisotop findet sich in den HVS Filtern oft auch ⁴⁰K (Fig. 3). Es fallen die etwas höheren Werte der Station Posieux auf, verursacht durch lokale Einflüsse der dortigen landwirtschaftlichen Forschungsstation (z.B. erhöhte Resuspension von Bodenpartikeln; eventuell erhöhter Eintrag von Düngerstaub durch entsprechende Arbeiten in der Nähe des Luftfilters). Bei der Station Liebefeld wurde ⁴⁰K an den Filtern der Woche mit der Neujahrsnacht 2014 sowie der Woche vom 1. August gemessen. Das Kaliumnitrat aus dem Feuerwerk hinterliess seine Spuren in den Filtern dieser stadtnahen Station. Neujahr 2015 allerdings wurde offenbar im Aargau (Klingnau) feuriger begrüsst als in der Bundeshauptstadt (Fig. 3).

Niederschlag

Messungen von Gammastrahlern

Im Berichtsjahr 2014 wurde an folgenden Sammelstationen kontinuierlich Niederschlag gesammelt (Probenahme mit Ionenaustauscherharz) und monatlich gammaspektrometrisch gemessen: Umgebung der Kernkraftwerke Mühleberg, Leibstadt, Gösgen und Benznau, Umgebung PSI/ZWILAG sowie Posieux FR, Güttingen TG, Cadenazzo TI, Cernier NE und Davos GR . Mit Ausnahme von sporadischen Spuren von ¹³⁷Cs (alle Werte kleiner als 1 mBq/l) konnten in Regen und Schnee keine künstlichen Radioisotope nachgewiesen werden. Zur Erinnerung: der Immissionsgrenzwert der StSV für ¹³⁷Cs in öffentlich zugänglichen Gewässern liegt bei 16 Bq/l. Der Immissionsgrenzwert aus der Strahlenschutz verordnung wird hier herangezogen, weil bei starken Niederschlägen ein öffentlich zugängliches Gewässer im Wesentlichen durch Regenwasser gespiesen sein könnte.

Für die natürlichen Radioisotope ⁷Be und ²¹⁰Pb wurden Werte im Bereich 0.1-3.3 (Mittelwert 0.8) Bq/l, respektive 0.01-0.14 (Mittelwert 0.05) Bq/l gemessen. Für eine weitere Diskussion dieser Resultate siehe auch Kapitel 8.5.

Tritium-Messungen

Für die Niederschlagsproben der Referenzstationen Posieux, Güttingen, Cadenazzo sowie bei den Stationen Basel-Binningen und La Chaux-de-Fonds lagen praktisch alle Tritiumkonzentrationen unterhalb der Nachweisgrenze von 2 Bq/l. Diese Werte liegen im Bereich der natürlichen Tritiumkonzentrationen in Regen von 0.1-0.6 Bq/l.

Tritium-Messungen an Regenproben aus der Umgebung der Kernkraftwerke, dem PSI und dem ZWI-LAG ergaben ebenfalls meist Messwerte unterhalb der Nachweisgrenze von 2 Bq/I, wobei auch höhere Werte auftraten: bis zu 10 Bq/I bei den Kernkraftwerken und bis 47 Bq/I beim PSI. Alle gemessenen Konzentrationen liegen sehr deutlich unterhalb der gesetzlichen Grenzwerte (siehe Kapitel 8.5).

Höhere Tritiumwerte - aber immer noch klar unterhalb der Grenzwerte - zeigte die Überwachung von Tritium-verarbeitender Industrie. Nahe bei den betroffenen Standorten in Teufen AR und Niederwangen BE enthält das Regenwasser zwischen 20 und 1'070 Bq/I Tritium mit einem Mittelwert von rund 230 Bq/I. Die Höchstkonzentration entspricht rund 9% des Immissionsgrenzwertes der StrSV für öffentlich zugängliche Gewässer. Ausführlicher werden diese Tritium-Resultate in Kapitel 9.3 besprochen.

Referenzen

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

S. Estier, P. Beuret, G. Ferreri, A. Gurtner, T. Marti, M. Müller, P. Steinmann Section Radioactivité de l'environnement, URA / OFSP, 3003 BERN

Résumé

Les résultats des mesures de la radioactivité dans l'air réalisées en continu par le réseau automatique de surveillance RADAIR exploité par l'Office Fédéral de la Santé Publique n'ont mis en évidence aucune valeur susceptible de représenter un danger pour la santé de la population. Dans ce compartiment environnemental, la radioactivité d'origine naturelle domine nettement, et aucune activité β d'origine artificielle supérieure à la limite de détection de 50 à 400 mBq/m³ n'a été enregistrée en 2014 par les collecteurs d'aérosols. Les concentrations d'¹³¹I gazeux sont elles aussi restées inférieures aux limites de détection de 40 - 50 mBq/m³.



Introduction

L'OFSP exploite trois réseaux de surveillance de la radioactivité dans l'air. Le premier se compose de collecteurs d'aérosols à moyen débit (40 m³/h) et est principalement dédié à la surveillance des centrales nucléaires (Gösgen-Däniken, Leibstadt et Mühleberg), ainsi qu'à la surveillance de sites en altitude (Jungfraujoch). Le deuxième, d'une très grande sensibilité, est constitué de collecteurs d'aérosols à haut débit (env. 500 m³/h) situés à Posieux/FR, Cadenazzo/TI, Güttingen /TG, au CERN/GE, à Klingnau/AG et à Liebefeld/BE. Finalement, l'OFSP gère les 11 stations automatiques de surveillance de l'air composant le réseau RADAIR.

Ces réseaux se distinguent par leur sensibilité et leur rapidité de réponse (intervalle de temps entre le début de la période de collection et la disponibilité des résultats de mesure) et remplissent des rôles bien distincts. Dans le cas des collecteurs d'aérosols à haut débit, la période de collection s'élève à 1 semaine. Les filtres sont ensuite envoyés par poste puis mesurés en laboratoire. Le délai pour l'obtention des résultats est donc de quelques jours. En revanche, les limites de détection sont très faibles, env. 0.5 μ Bq/m³ pour le ¹³⁷Cs. Ces installations permettent ainsi d'évaluer les niveaux réels de radioactivité présents dans l'environnement. Les résultats des mesures des filtres aérosols des collecteurs à haut débit sont détaillés au chapitre 4.1.

Le réseau RADAIR, quant à lui, est un système d'alerte dont l'objectif est de permettre une détection rapide d'une éventuelle hausse significative de la radioactivité dans l'air : les aérosols sont ainsi collectés et mesurés en continu sur des filtres déroulants et les résultats sont collectés par la centrale de gestion des données toutes les 30 minutes. Le présent chapitre détaille les résultats des mesures enregistrées par le réseau RADAIR au cours de l'année 2014.

Principe de mesure

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

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

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

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

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

Jusqu'en 2011, une valeur constante du facteur F, dépendante du site et modifiée périodiquement par un administrateur système était utilisée. Dès 2012, les moniteurs ont été progressivement équipés d'un nouveau logiciel permettant d'adapter en permanence ce facteur F pour prédire au mieux la composante naturelle du rayonnement β (B_{nat}) en tenant compte des fluctuations saisonnières et quotidiennes du site de mesure. Le but étant, d'une part d'automatiser la mesure le mieux possible et d'autre part d'améliorer la sensibilité. Pour cela, le moniteur effectue la moyenne glissante des n (n>10) derniers rapports pour autant que ce dernier soit compris entre des valeurs seuils (0.6 et 0.9). Ce rapport moyen donnera le facteur ${\sf F}_{\sf m}$ avec lequel la concentration β artificielle de la mesure en cours sera calculée.

Les moniteurs FHT59S, appelés aussi moniteurs $\alpha\beta$, sont aujourd'hui tous équipés de la nouvelle version du logiciel de mesure avec compensation automatique du facteur α/β (F_m). Ce nouveau principe de calcul offre un abaissement de la limite de détection, jusqu'à un facteur 2 selon les sites, par

rapport à la méthode manuelle. Une autre conséquence de ce nouveau principe est la diminution du nombre des pré-alarmes de niveau 1, c'est-à-dire des dépassements de la concentration β actuelle d'origine naturelle > 5 Bq/m³, en particulier lors de brusques variations de la concentration alpha. Si la méthode automatique de compensation ne donnait pas satisfaction sur une certaine période, la méthode manuelle de compensation existe toujours. Les administrateurs peuvent en effet gérer manuellement les données directement depuis la centrale à l'aide d'un logiciel. Celui-ci permet entre autre de recalculer la concentration bêta artificielle moyenne avec un autre facteur de compensation que celui d'origine.

Les modifications apportées en 2014

L'ensemble du système RADAIR (moniteurs et serveurs) fonctionne avec satisfaction. Néanmois les ordinateurs de contrôle des moniteurs montrent des signes de vieillisement et devront être prochainement remplacés. Si les moniteurs aérosols seront mis à l'arrêt après la mise en service des sondes de mesure du nouveau réseau URAnet, dès 2017, les moniteurs d'iode seront eux intégrés à ce nouveau réseau. C'est pourquoi la rénovation de ces ordinateurs est importante pour la suite.

Les données RADAIR sont toujours disponibles sur internet à l'adresse www.radair.ch, mais en 2015 elles seront également intégrées à la plateforme internet Radenviro (www.radenviro.ch), donnant accès à tous les résultats des mesures de la radioactivité dans l'environnement effectuées dans le cadre de la surveillance coordonnée par l'OFSP.

Les résultats de mesure

Collecteurs d'aérosols α/β :

La figure 2 montre les concentrations α naturelles mensuelles moyennes et maximales relevées en 2014 aux stations de Bellinzona, de Fribourg, du PSI et de Weissfluhjoch ainsi que les histogrammes des concentrations β artificielles obtenues après compensation.

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

Fig A: septembre 2014

Fig B: novembre 2014



Les différences marquées entre concentrations maximales et concentrations moyennes reflètent les importantes fluctuations diurnes-nocturnes de radioactivité naturelle passant de 5 à 50 Bq/m³ (en 24 heures) suivant les sites (graphiques A,B,E,F de la figure 2). Il faut savoir que le phénomène d'inversion thermique limite la dispersion verticale du radon et de ses produits de filiation qui s'accumulent près du sol durant la nuit, c'est pourquoi il s'en suit une augmentation de la concentration en fin de nuit.

À remarguer que lorsque le rapport entre la concentration moyenne mensuelle et la moyenne mensuelle des concentrations maximales se rapproche de 1, c'est la concentration moyenne qui reste relativement grande car il n'y a pas ou peu de résorption de cette inversion thermique et les émetteurs α et β restent piégés au niveau du sol sans être mélangés à de l'air frais. La figure 1B et le mois de novembre des figures 2 A,B,E montrent qu'il y a une augmentation quotidienne moyenne de la concentration alpha; ce phénomène est dû à un «bouchon» d'air froid qui stagne dans les basses couches de l'atmosphère et on l'observe, en général, durant les mois où il fait froid dans les basses couches de l'atmosphère, c'est-à-dire de novembre à février.

À l'inverse, dans les stations de montagne comme au Jungfraujoch et au Weissfluhjoch, les concentrations en radon sont très faibles, en moyenne de l'ordre de 3-5 Bq/m³. La contribution provient essentiellement de la plaine, soit avec les vents thermiques, soit avec les vents dominants. Sur les graphiques A, B, E et F de la figure 2, on constate que les maximas de juillet et août, habituellement présents, ont été atténués par les abondantes précipitations de l'été dernier. Notons encore, d'une manière générale, que les concentrations naturelles les plus faibles se rencontrent durant les mois de mai et juin où d'une part, les précipitations sont plus conséquentes (lessivage des aérosols) et d'autre part, le brassage des masses d'air est plus important (phénomène de dilution).

Plus les fluctuations de radioactivité naturelle sont importantes, plus une contribution supplémentaire d'origine artificielle est difficile à mettre en évidence et donc plus la limite de détection de la concentration β artificielle sera élevée. Suivants les sites, on observe ainsi un rapport d'environ 200 à 400 entre la limite de détection des concentrations ß artificielles et les valeurs maximales des concentrations α . La présence irrégulière du radon et de ses produits de filiation sur le sol suisse est ainsi responsable des différences notables des limites de détection de la radioactivité β d'origine artificielle. Les histogrammes de la concentration β (graphiques C,D,G,H de la figure 2) montrent ces limites. Malgré l'application d'un facteur de compensation adéquat, encore amélioré grâce à l'algorithme automatique de compensation, des augmentations de radioactivité inférieures à 400 mBq/m³ ne sont pas décelables pour les stations de plaine. Cette limite de détection s'abaisse à 60 mBq/m³ pour les stations d'altitude. À noter que le nombre de mesures annuelles varie en fonction des moniteurs et des années. Afin de faciliter la comparaison des histogrammes entre eux, l'ordonnée présente les taux annuels de mesure plutôt que le nombre absolu de mesures.

De manière générale, les limites de détection ont diminué avec l'installation du programme de compensation automatique des concentrations β . Ces limites sont restées stables entre 2013 et 2014. Les histogrammes des concentrations β artificielles



Figure 2:

Les graphiques **A**,**B**,**E**,**F** montrent les concentrations alpha totales (d'origine naturelle) mensuelles moyennes, les moyennes mensuelles des concentrations alpha et les valeurs mensuelles maximales ainsi que les précipitations cumulées mensuelles enregistrées en 2014 aux stations de Bellinzona, Fribourg, Institut Paul Scherrer et Weissfluhjoch. Les graphiques **C**,**D**,**G**,**H** représentent les histogrammes des concentrations bêta artificielles compensées obtenus en 2013 et 2014 à ces mêmes stations.

62



moyennes normées enregistrés en 2013 et en 2014 montrent cette stabilité.

Notons pour terminer qu'aucune activité β d'origine artificielle supérieure à la limite de détection n'a été enregistrée par les collecteurs α/β en 2014.

Collecteur de 131I:

Les moniteurs de Bellinzona, de Fribourg, de Genève-Meyrin et du PSI mesurant l'iode gazeux (¹³¹I) n'ont pas décelé de valeurs supérieures à leur limite de détection (40 - 50 mBq/m³) au cours de l'année 2014. La figure 3 montre l'histogramme de la concentration moyenne du ¹³¹I enregistré dans les stations de Genève-Meyrin et à l'Institut Paul Scherrer (PSI). Malgré les 16 jours d'interruption du moniteur de Genève suite à une défaillance d'une carte de mesure, les deux histogrammes de la figure 3 sont quasi identiques.

Disponibilité du système

Grâce à un entretien suivi, le taux de bon fonctionnement des moniteurs s'est situé en 2014 entre 90 et 98% pour la plupart des stations (collecteurs d'aérosols et d'iode inclus). A noter que les périodes d'arrêt des moniteurs pour entretien sont également compris dans cette statistique.

Les moniteurs situés à Bâle et à Güttingen ont fait exception suite à des pannes du climatiseur. Le premier moniteur a dû être arrêté durant 41 jours suite à un arrêt de la climatisation qui a endommagé une carte de contrôle pour le traitement des signaux de mesure. Le climatiseur du second moniteur a dû faire l'objet d'un remplacement complet, avec pour conséquence un arrêt de 4 mois, principalement en raison des délais de livraison.

D'une manière générale, les pannes les plus courantes ont été, dans l'ordre de fréquence: les chutes de la haute tension, les cartes d'acquisition des signaux du détecteur, les pannes de climatisation des locaux, quelques pannes de secteurs et de communication principalement sur le site du Jungfraujoch. Le jour de Noël, un des canaux de la carte d'acquisition des comptages du moniteur α/β de Genève-Meyrin est tombée en panne et le moniteur a généré un faux comptage qui a eu pour conséquence la transmission d'une fausse alarme de niveau 2. L'alarme a été gérée dans l'heure qui a suivi.

4.3 Überwachung der Radioaktivität der Luft mit Militärflugzeugen

M. Müller, S.Estier Sektion Umweltradioaktivität, URA / BAG, 3003 BERN

Zusammenfassung

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

Vorgeschichte

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

Bei Kernwaffenexplosionen sowie auch bei Unfällen in Kernanlagen erfolgt die Freisetzung der Radioaktivität zum grössten Teil in die Atmosphäre, und die radioaktive Wolke wird je nach Art der Freisetzung in einer gewissen Höhe mit dem Wind verfrachtet.

Im Ernstfall (d.h. bei einem Kernwaffeneinsatz oder einem schweren Kernkraftwerk-Unfall) müssen die Einsatzorgane rasch über allfällige Schutzmassnahmen für die Bevölkerung entscheiden können. Es ist deshalb notwendig, Zusammensetzung (Nuklidvektor), Ausmass und Lage einer solchen radioaktiven Wolke möglichst frühzeitig zu erfassen, bevor sich deren Radioaktivität auf Boden und Pflanzen ablagert. Dies führte dazu, dass in den 60er-Jahren in Zusammenarbeit der KUER mit den damaligen Flugzeugwerken Emmen Sammelgeräte entwickelt und im Windkanal kalibriert wurden, welche ermöglichten, mittels Militärflugzeugen Aerosolproben aus bis zu 12'000 m Höhe zu sammeln (Fig. 1&2) um hernach deren Radioaktivität im Labor mittels Gamma-Spektrometrie quantitativ zu analysieren. Ebenfalls ab Mitte der 60er-Jahre wurden am Physikinstitut der Universität Freiburg die ersten Ge(Li)-Detektoren in Betrieb genommen, die für solche Messungen vom Labor der KUER für die Analyse von Luftfiltern benutzt werden konnten.

Ab dem Jahr 2000 war ein Einsatz mit den Sammelgeräten der ersten Generation nicht mehr möglich, da die Tiger-Flugzeuge über eine andere Aufhängevorrichtung verfügen; zudem zeigte sich auch, dass die seit rund 30 Jahren eingesetzten Geräte



Höhenluftfilter-Aggregate montiert an den beiden Flügeln eines Tiger sowie Detail-Aufnahme eines Sammelgerätes.

einer Überholung bedurften. Mit dieser Erneuerung und Anpassung sowie der erneuten Flugzulassung wurde RUAG Aerospace (die Nachfolgerin der Flugzeugwerke Emmen, die die Geräte damals gebaut hatte) beauftragt. Seit 2004 sind die Geräte wieder einsatzbereit und flugerprobt. gesteuert geöffnet und geschlossen werden, was eine Probenahme unter vorgewählten Bedingungen (bzgl. Flughöhe, Flugroute, Dauer, Geschwindigkeit) ermöglicht. Die Geräte wurden im Windkanal kalibriert, sodass bei bekannter Flughöhe, Geschwindigkeit und Flugdauer beprobte Luftmenge (kg) ermittelt werden kann.

Sammlung der Proben

Die Probenahme der Aerosolpartikel erfolgt mit Hilfe von Luftfiltern, welche in einem Sammelaggregat unter dem Flügel eines Tigers F-5F/E befestigt werden. Die Geräte können vom Piloten fernDie Flughöhe kann vom Auftraggeber gewählt werden, je nachdem, ob bei einem Ereignis die radioaktive Wolke bis in die Stratosphäre aufsteigt. Im Normalfall sind 6 Sammelflüge pro Jahr vorgesehen, wobei seit Anfang 2010 Hin- und Rückflug abwechslungsweise über resp. unter der Tropopause erfolgen. Die Höhe der Tropopause wird täglich mit



4.3 Überwachung der Radioaktivität der Luft mit Militärflugzeugen - @BAG 2015

einem Ballonflug durch MeteoSchweiz in Payerne ermittelt.

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

Als Filtermaterial wird ein Zellulosefilter (Sorte 0048, Art. Nr. 348987) von Whatman mit den Dimensionen 555 x 526 mm verwendet. Nach der Beprobung wird der Filter zur Analyse halbiert und eine Hälfte mit einer hydraulischen Presse mit 25 Tonnen zu einer Tablette von 63 mm Durchmesser und ca. 10 mm Dicke gepresst. Die andere Hälfte dient als Rückstellprobe sowie gegebenenfalls für weitere Analysen.

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

Messung der Proben

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

Über die letzten fünf Jahre liegt der Median der Konzentration des kosmogenen Radionuklids ⁷Be oberhalb der Tropopause bei 125 mBq/kg. Bei den Messungen 1km unterhalb der Tropopause liegt der Median bei 21 mBq/kg. Als Vergleich seien hier die Werte von P. Winiger [1] bis [4] (Werte von 1960/1970) erwähnt, die für ⁷Be im Mittel bei 100 mBq/kg bzw. 20 mBq/kg 1'000 m über bzw. unter der Tropopause liegen.

Der grösste Teil der ¹³⁷Cs-Konzentrationen lag im Jahr 2014 unter der Nachweisgrenze von 0.01 - 0.05 mBq/kg. In Figur 3 deutlich sichtbar sind die nach dem Reaktorunfall Fukushima (März 2011) gemessenen ¹³¹I Konzentrationen, welche jedoch infolge der Halbwertszeit von 8 Tagen schon kurze Zeit später nicht mehr messbar waren. Auch das Radionuklid ¹³⁴Cs konnte im Berichtjahr nicht mehr nachgewiesen werden.

Quellen:

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

4.4 Radioaktivität in aquatischen Systemen

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

A. Lück - Eawag, Gruppe Sedimentologie, Abteilung SURF, 8600 Dübendorf

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

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

Zusammenfassung

In den Wasser- und Partikelproben von Aare und Rhein wurde 2014 nur sporadisch 60Co, aber kein ⁵⁴Mn oder ⁵⁸Co aus Abgaben der Kernkraftwerke nachgewiesen. Dies ist die Folge der seit einigen Jahren und insbesondere im Jahr 2014 reduzierten Abgaben dieser Nuklide aus den Kernkraftwerken Mühleberg, Gösgen, Beznau und Leibstadt. Weiter wurde ¹³⁷Cs gefunden, welches zum grössten Teil vom Tschernobylunfall stammt. In Stichproben von Schwebstoffen im Rhein bei Weil (D) wurden im Weiteren die kurzlebigen Radionuklide ¹³¹I und ¹⁷⁷Lu gefunden, welche in der Nuklearmedizin eingesetzt werden. In Fischen waren keine künstlichen Radionuklide nachweisbar. In Wasserpflanzenproben wurde regelmässig ⁴⁰K nachgewiesen, aber nur in einer Probe (Station Hagneck) wurde 54Mn, 58Co, und 60Co gefunden. Analysen des Grundwassers bei Aarberg, Döttingen und Pratteln ergaben keine Hinweise auf eine Infiltration künstlicher Radionuklide aus der Aare bzw. dem Rhein.

Ziele

Die meisten künstlichen Radionuklide gelangen direkt über Einleitung von Abwässern oder indirekt über den Niederschlag in den Wasserkreislauf. Entsprechend wird die Radioaktivität in aquatischen Systemen kontinuierlich analysiert, um die Radionuklid-Immissionen der entsprechenden Betriebe zu überwachen und die gesamte Radioaktivität, welche die Schweiz verlässt, zu bilanzieren.





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

Methoden

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

Die Wasserproben aus Aare und Rhein bei Hagneck, Klingnau und Pratteln werden als grossvolumige, monatliche Sammelproben entnommen. Entsprechend dem jeweiligen Abfluss werden pro Tag automatisch zwischen 20 und 40 Proben genommen, was monatliche Sammelproben zwischen 50L und 200L ergibt. Im Jahr 2014 war der mittlere Abfluss 181 m³/s bei Hagneck, 550 m³/s bei Klingnau und 1'016 m³/s bei Pratteln. Zur Bestimmung der monatlichen Fracht der Radionuklide in Aare und Rhein werden die Radionuklide in den Sammelproben



Figur 2:

Vergleich der berechneten und gemessenen Frachten von ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co, ⁶⁰Co und ¹³⁷Cs an den drei Stationen bei Hagneck, Klingnau und Pratteln. Die berechneten Frachten entsprechen den kumulierten Abgaben der flussaufwärts gelegenen Kernkraftwerke. Die Messwerte lagen mit Ausnahme der Probe vom August 2014 immer unter der Bestimmungsgrenze (blaue Stufenlinie). Die Fehlerbalken zeigen den Standardmessfehler der Fracht. durch eine Eisenhydroxidfällung aufkonzentriert. Danach wird das Fällungsprodukt getrocknet und darin die Aktivitäten der betreffenden Radionuklide bestimmt. Die Radionuklid-Fracht ergibt sich aus dem Produkt der gemessenen Aktivität und der während der Sammelperiode abgeflossenen Wassermenge.

Die Schwebestoffproben werden mit Hilfe von Sedimentfallen als monatliche Sammelproben gesammelt. Die Fisch- und Wasserpflanzenproben (ohne Wurzeln) werden unmittelbar stromabwärts der Kernkraftwerke entnommen, wobei die Fische filetiert und die Wasserpflanzenproben gereinigt werden, um eine Partikelkontamination mit Radionukliden zu vermeiden. Die Sediment-, Fisch- und Wasserpflanzenproben werden vor der Analyse gefriergetrocknet. Die spezifische Aktivität dieser Proben wird in Bezug auf das Trockengewicht angegeben.

Bei der Rheinüberwachungsstation Weil (D) werden durch das Kantonale Labor Basel Stadt täglich Wasserproben entnommen und deren ³H-Aktivität bestimmt (Bestimmungsgrenze 1 Bq/L). Zudem werden bei Weil monatlich Schwebstoff-Stichproben gewonnen. Dabei wurden über Zeiträume von 2 bis 6 Tagen Rheinwasser aus der Querprofilmischung entnommen und davon die Schwebestoffe abzentrifugiert. Die Schwebstoffe werden gefriergetrocknet, gemahlen und danach gammaspektrometrisch analysiert. Aus den so bestimmten spezifischen Aktivitäten und dem monatlichen Abfluss bei Basel werden die monatlichen Radionuklidfrachten auf suspendierten Partikeln abgeschätzt. Dabei ist zu beachten, dass diese Hochrechnung mit einer grossen Unsicherheit behaftet ist, da sie auf der Annahme beruht, dass die über 2 - 6 Tage gesam-

Figur 3:

melten Stichproben repräsentativ für den ganzen Monat sind und die Abgaben der Kernkraftwerke kontinuierlich erfolgen, was beides nicht der Fall ist.

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

Ergebnisse

Wasserproben

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

Die kumulierten Abgaben von 54Mn, 58Co und 60Co der flussaufwärts gelegenen Kernkraftwerke sind bei allen drei Stationen nahezu identisch, weil diese Nuklide überwiegend aus dem Kernkraftwerk Mühleberg stammen. Die kumulative ¹³⁷Cs-Bilanz ist durch die Abgaben des Kernkraftwerks Beznau bestimmt, wobei die grösste Abgabe im März 2014 stattgefunden hat (31 MBq).

Nur in einer einzigen Probe der Station Hagneck konnten 60Co und 137Cs nachgewiesen werden (August 2014), wo die Verdünnung der Abgaben aus dem Kernkraftwerk Mühleberg am geringsten ist. Der ¹³⁷Cs-Nachweis ist wie in bisherigen Jahren grösser als die Abgaben des Kernkraftwerks



Radioaktivität in aquatischen Systemen - @BAG 2015 4.4

Mühleberg, was auf die Remobilisierung von ¹³⁷Cs vom Tschernobylunfall zurückgeführt wird. ⁵⁴Mn und ⁵⁸Co wurden in keiner einzigen Probe der drei Stationen nachgewiesen.

Die ³H-Aktivität der täglichen Rheinwasserproben von Weil am Rhein (D) ist in Figur 3 dargestellt. Die ³H-Konzentration schwankt generell im Bereich von 5 - 10 Bq/L, mit einem Maximum von 32 Bq/L im Juni 2014. Die erhöhten ³H-Konzentrationen im Mai, Juni und Juli 2014 gehen einher mit den ³H-Abgaben der Kernkraftwerke zu dieser Zeit (vor allem Beznau und Gösgen).

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

Langfristige Entwicklung der Radionuklidabgaben und Frachten in Aare und Rhein

Figur 4 zeigt den zeitlichen Verlauf der Abgaben von ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co, ⁶⁰Co und ¹³⁷Cs aller Kernkraftwerke während den Jahren 2000 – 2014. Als Folge der Revisionen der Kernkraftwerke sind die Abgaben jeweils im Sommer/Herbst am grössten. Über die Jahre betrachtet haben die Abgaben von ⁵⁸Co, ⁶⁰Co und ¹³⁷Cs bis ca. 2008 tendenziell abgenommen. Danach ist bis ins Jahr 2013 keine systematische Veränderung mehr erkennbar. Im Jahr 2014 verringerten sich die Abgaben von ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co und ⁶⁰Co auf 25 - 54 % der Abgaben im Jahr 2013.

Aufgrund der geringeren Abgaben lagen die Messwerte der im Wasser gelösten Radionuklide meist unterhalb der spezifischen Bestimmungsgrenzen. Deshalb ist wie in den Vorjahren eine Quantifizierung der Jahresgesamtfracht anhand der monatlich überwachten Radionuklidfrachten nicht sinnvoll möglich.

Um die Bestimmungsgrenze für die künftige Überwachung zu verringern, hat die Eawag gemeinsam mit der Rheinüberwachungsstation Weil (D) ein neues Probenahmesystem erarbeitet und 2014 im Probebetrieb getestet. Die Bestimmungsgrenze der im Wasser gelösten Radionuklide ist wesentlich durch das Volumen der monatlichen Sammelproben bestimmt. Eine zuverlässige Analyse setzt eine Wassermenge von mindestens 2 m³ voraus. Es hat sich jedoch gezeigt, dass solch grosse Wassermengen mit der bestehenden Beprobungstechnik nicht beherrschbar sind, weshalb eine alternative Beprobungstechnik entwickelt werden muss. Die Beprobung von Partikeln und Schwebstoffen im Rheinwasser hat im Probebetrieb hingegen zufriedenstellend funktioniert und erlaubt zudem die Trennung von grobkörnigem und feinkörnigem Material.





Partikelproben

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

Die spezifischen ¹³⁷Cs-Aktivitäten der Partikelproben betragen bei allen drei Stationen 10 - 100 Bq/ kg, und der zeitliche Verlauf zeigt keine Korrelation mit den Abgaben aus den Kernkraftwerken (Figur 5). Diese ¹³⁷Cs-Nachweise werden in Übereinstimmung mit dem im Wasser gelösten ¹³⁷Cs auf die Mobilisierung von ¹³⁷Cs vom Tschernobylunfall zurückgeführt. Ansonsten wurde nur ⁶⁰Co sporadisch bei Hagneck und Klingnau nachgewiesen; aufgrund der zunehmenden Verdünnung nicht aber bei Pratteln. ⁵⁴Mn und ⁵⁸Co wurde bei allen drei Stationen in keiner einzigen Probe nachgewiesen. Dies wird auf die gegenüber 2013 stark verringerten Abgaben von ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co und ⁶⁰Co aus den Kernkraftwerken zurückgeführt. Figur 6 zeigt die aus den Stichproben bei Weil (D) abgeschätzten Frachten von ⁵⁴Mn, ⁶⁰Co und ¹³⁷Cs auf Schwebestoffen. ⁵⁴Mn und ⁶⁰Co wurden nur sporadisch nachgewiesen und die geschätzten Frachten sind in der zweiten Jahreshälfte höher. Dies könnte durch die erhöhten Abgaben der Kernkraftwerke in diesem Zeitraum (Figur 5) bedingt sein. In allen Stichproben wurde ¹³⁷Cs gefunden, was wiederum primär auf die Mobilisierung von ¹³⁷Cs aus dem Tschernobylunfall zurückgeführt werden kann. Zusätzlich zu den relativ langlebigen Radionukliden konnten in den Stichproben von Weil (D) auch die kurzlebigen Radionuklide ¹³¹I (Halbwertszeit: 8 Tage) und ¹⁷⁷Lu (Halbwertszeit: 6.7 Tage) nachgewiesen werden (ebenfalls Figur 6), welche in der Nuklearmedizin eingesetzt werden.



Figur 5:

Spezifische Aktivitäten von ⁶⁰Co und ¹³⁷Cs in den monatlichen Partikelproben aus den Sedimentfallen bei Hagneck, Klingnau und Pratteln im Vergleich mit dem Abfluss und den kumulierten Abgaben von ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co, ⁶⁰Co, ⁶⁵Zn und ¹³⁷Cs der stromaufwärts gelegenen Kernkraftwerke. Die Messwerte wurden nur dann eingezeichnet, wenn die Bestimmungsgrenze der jeweiligen Messung erreicht wurde (typische Bestimmungsgrenzen für alle Nuklide in der Figur: 0.7-1.2 Bq/kg). ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co und ⁶⁵Zn wurden in keiner Probe nachgewiesen. Die Fehlerbalken zeigen den Standardmessfehler der spezifischen Aktivitäten. 4.4 Radioaktivität in aquatischen Systemen - @BAG 2015



Figur 6:

Monatliche Frachten von ⁵⁴Mn, ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs, ¹³¹I und ¹⁷⁷Lu auf Schwebestoffen bei Weil am Rhein. Die Frachten wurden aus den Messergebnissen der Stichproben abgeschätzt, welche über kurze Zeiträume (2-6 Tage pro Monat) gesammelt wurden.

Fische

Im Jahr 2014 wurden Fische jeweils unmittelbar stromabwärts der vier Kernkraftwerke untersucht:

- Hagneck, Alet, gefangen am 7.12.2014
- Schönenwerd (stromabwärts Kernkraftwerk Gösgen), Alet, gefangen am 3.9.2014
- Klingnau, Alet, gefangen am 24.8.2014
- Pratteln, Alet, gefangen am 16.10.2014

Bei allen Fischproben wurde natürliches 40 K gefunden (360-771 Bq/kg). Künstliche Radionuklide wurden keine nachgewiesen.

Wasserpflanzen

Am 8.9.2014 und 9.9.2014 wurden bei Hagneck, Klingnau und Pratteln je eine Wasserpflanzenprobe entnommen und analysiert. In der Probe von Hagneck wurde ⁵⁴Mn (27 Bq/kg), ⁵⁸Co (9 Bq/kg) und ⁶⁰Co (36 Bq/kq) gefunden, was durch die Revision des Kernkraftwerks Mühleberg bedingt sein könnte. In den restlichen Proben wurden keine künstlichen Radionuklide gefunden. In allen Proben konnte ⁴⁰K gemessen werden (712-1'000 Bq/kg).

Grundwasser

In den Grundwasserproben von Aarberg (12.12.14), Döttingen und Pratteln (beide 16.12.14) wurden keine künstlichen Radionuklide nachgewiesen (Bestimmungsgrenze ca. 0.3 mBq/L).

Aufbau eines automatischen Messnetzes zur Überwachung der Radioaktivität in den Flüssen

Der Bundesrat hat mit Beschluss vom 15. Mai 2013 das BAG mit der Erneuerung des automatischen Messnetzes zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt beauftragt. Neben den Luftmonitoren soll das erneuerte Messnetz neu auch Sonden für die Überwachung der Oberflächengewässer umfassen. Diese bisher fehlende automatische Überwachung der Oberflächengewässer mit der Möglichkeit Alarme auszulösen, wurde auch von mehreren parlamentarischen Vorstössen gefordert (Motionen der Grünen Fraktion 13.3294 und 13.3877 sowie Motion van Singer 13.3683, siehe www.parlament.ch/d/dokumentation/curia-vista).

Zur Realisierung dieses Auftrages hat das BAG bis Ende 2014 vier automatische NaI-Messsonden in Betrieb genommen. Eine Sonde überwacht das als Trinkwasser verwendete Rheinwasser in der Stadt Basel. Zwei Sonden messen in der Aare: eine beim Stausee Niederried (zur Überwachung der flüssigen Abgaben des KKW Mühleberg) und eine in Aarau (KKW Gösgen). Eine vierte Sonde befindet sich zur Überwachung des Rheins am Standort Laufenburg (stromabwärts des KKW Leibstadt). Die Sonden sind ins Messnetz von Meteo-Schweiz integriert und liefern alle 10 Minuten einen Messwert. Die Nachweisgrenze für ¹³⁷Cs liegt bei ca. 1 Bq/l und damit deutlich unterhalb des Toleranzwertes für dieses Nuklid im Trinkwasser. Die erreichte Nachweisgrenze und die kontinuierliche Messung mit kurzen Messintervallen erlauben es, im Falle einer unerkannten Erhöhung der Radioaktivität über den Toleranzwert hinaus, schnell zu informieren und allenfalls die Entnahme von Flusswasser für die Trinkwasserversorgung zu unterbrechen.

Die automatischen Messungen ersetzen aber nicht die bisherigen Messungen der EAWAG, welche viel empfindlicher sind (tausendmal tiefere Nachweisgrenze) und welche es ermöglichen, die bewilligten Abgaben der Kernkraftwerke zu erfassen und hochzurechnen. Weil die empfindlichen Messungen viel aufwändiger sind, liefern die EAWAG-Messungen nur monatliche Messwerte. Die bisherigen Erfahrungen mit dem automatischen Messnetz zeigen, dass die Sonden bereits einige Hochwassersituationen schadlos überstanden haben. Die Spektren enthalten Peaks von natürlichen Radioisotopen (die Radon-Folgeprodukte ²¹⁴Pb und ²¹⁴Bi sowie ⁴⁰K). Dieser natürliche Hintergrund steigt bei Hochwasser jeweils markant an und erhöht die Dosisleistung im Wasser von 1-2 nSv/h auf bis zu 10 nSv/h. Mögliche Ursachen für diese Erhöhung sind verstärkter Eintrag von Radonfolgeprodukten, grösserer Trübstoffgehalt im Wasser sowie eventuell Lageänderung der frei aufgehängten Sonden durch die stärkere Strömung. Künstliche Radioisotope haben die NaI-Detektoren bisher nicht festgestellt.

4.5 ¹³⁷Cs, ²⁴¹Am und ^{239,240}Pu in einem Sediment des Klingnauer Stausees

M. Jäggi¹, K. Domnanich¹, J. Eikenberg¹, S. Bollhalder², A. Lück², J. Beer²

¹ Paul Scherrer Institut, Abteilung ASI/Messwesen, 5232 Villigen-PSI ² Eawag, Abteilung Surf/RT, 8600 Dübendorf

Einleitung

Zwischen der Ortschaft Böttstein und dem Rhein lag zu Beginn des 20ten Jahrhunderts eine Schwemmebene. Zu dieser Zeit hatte die Aare noch einen wilden Verlauf und war gesäumt von Auenwäldern. Später wurde die Aare dann kanalisiert und es wurden Hochwasserschutzdämme errichtet. Initiiert durch die Gesellschaft Aarewerke (Gründung: 17.09.1929) wurde innerhalb von 4 Jahren, ca. 400 m oberhalb der Eisenbahnbrücke Koblenz-Felsenau, ein Wehr und somit der Klingnauer Stausee (Fläche: 1.15 km²; maximale Tiefe: 8.5m) realisiert. Das Kraftwerk konnte am 7.7.1935 seinen Vollbetrieb aufnehmen (http://www.klingnauerstausee.ch/stausee/kraftwerk.php). Einige Kilometer flussaufwärts, fliesst die Aare vor dem Klingnauer Stausee am Kernkraftwerk Beznau vorbei (Beznau 1 seit 1969; Beznau 2 seit 1971), welches das Aarewasser zu Kühlzwecken verwendet.

Seit dem Aufstau 1935 verlandet die linke Seebucht und ist heute grösstenteils nur noch wenige Zentimeter tief [1]. Durch diese Verlandung hat sich eine deutliche Sedimentbank gebildet, bei der die Eawag (Forschungsinstitut im ETH-Bereich) am 22.12.2012 vier Sedimentkerne stechen konnte (siehe Fig. 1 links, weisses Kreuz).



Figur 1:

Links: Luftbildaufnahme (google.maps.ch) der Sedimentbank vom Klingnauer Stausee. Das weisse Kreuz bezeichnet die ungefähre Stelle der Probenahme. Rechts: 2 Sedimentkerne mit darüberstehender Wassersäule.

Sediment als Zeitzeuge

Radionuklide anthropogenen Ursprungs lagern sich in der Troposphäre an Aerosole an und werden anschliessend in der Umwelt entweder trocken deponiert oder durch Regen ausgewaschen. Die anthropogenen (90Sr, 137Cs, Aktiniden) sowie die natürlichen (210Pb) Radionuklide gelangen dann, anhaftend an Aerosolpartikeln, auf die Gewässeroberflächen und lagern sich an Schwebestoffen an, welche regelmässig sedimentiert werden. Durch die oberirdischen Kernwaffentests wurden im Verlauf der späten 50er und frühen 60er Jahre (Maximum 1963) ¹³⁷Cs, ²⁴⁰Pu, ²³⁹Pu und ²⁴¹Pu in der Umwelt deponiert. Im Frühjahr 1986 wurde 137Cs über der Schweiz ausgeregnet, welches vom Reaktorunfall Tschernobyl stammte.

Beprobung des Sedimentkernes:

Die Hälfte des längsten Sedimentkerns (62 cm) vom Klingnauer Stausee wurde im Februar 2013 in 1 cm Stücke geteilt, um die tiefenabhängigen ¹³⁷Cs Aktivitätskonzentration [Bq/kg] mittels Gamma-Spektrometrie bestimmen zu können (Eawag). Danach wurden am Paul Scherrer Institut (PSI) die Proben radiochemisch weiterverarbeitet und unter anderem die ^{239,240}Pu Aktivitätskonzentrationen mittels Alpha-Spektrometrie bestimmt.

Resultate

In der Figur 2 ist das Profil des Sedimentkerns vom Klingnauer Stausee zu erkennen. In unregelmässigen Abständen wechseln sich helle und dunkle Bereiche ab.

Dieses Sediment wurde im Ruhigwasserbereich des Stausees beprobt. Trotzdem ist keine klare Schichtung zu sehen, wie dies z.B. in Sedimenthälften des Bielersees gefunden wurde [1].

Figur 3 links zeigt das Tiefenprofil von ¹³⁷Cs (blaue Linie). Die zwei Peak Maxima, verursacht durch Tschernobyl (1986) und die oberirdischen Bombentests (1963) können zur Sedimentdatierung verwendet werden. Die Sedimentationsrate zwischen 1986-2012 beträgt 1.04 cm/a und zwischen 1963-1986 fast identisch 0.96 cm/a. Diese Sedimentationsraten werden durch eine unabhängige ²¹⁰Pb Datierung unterstützt. Mit der Datierung können die zerfallskorrigierten ¹³⁷Cs Aktivitätskonzentrationen (Fig. 3 links, grüne Balken) berechnet werden, welche zum Zeitpunkt der Deposition abgelagert wurden. Ebenfalls lassen sich zwei weitere Maxima zwischen 1963 und 1986 auf 1970/1971 und 1976/77 datieren. Ein Sedimentprofil, welches 1995 durch die Eawag in einem Rhein Totarm bei Augst beprobt wurde, zeigt einen ganz ähnlichen Profilverlauf ([2], Fig. 4c). Der Peakverlauf des Klingnauer Stausee Sedimentes um die Jahre 1970/1971 ist sogar sehr ähnlich dem vom Sediment im Rhein bei Augst (Fig. 4b und 4c). Am 1.12.1970 ist im KKW Beznau ca. 3 m³ leicht kontaminierte Flüssigkeit ausgelaufen und in den kieshaltigen Boden versickert. Die damalige Kommission für die Sicherheit von Kernanlagen (KSA) wurde schriftlich über den Vorfall informiert, über den in der Folge auch in der Öffentlichkeit berichtet wurde. In Absprache mit der Behörde wurde damals ein Teil des Kieses im Oberwasserkanal Aare eingebracht. Die dabei freigesetzte Radioaktivität lag unter den gültigen Grenzwerten. Die Aktivitätsabgabe betrug 1.4% der zulässigen Jahresabgabelimiten (http://www.axpo.com/axpo/hydrosurselva/ de/medien/medienmitteilungen/2009/september/ kkb-beseitigt-reste-einer-radiologischen-altlastaus-dem-jahr-19.html). Ein Teil dieses Bodens kam im Stausee Augst zur Ablagerung und erklärt die leicht erhöhte ¹³⁷Cs Aktivitätskonzentration für 1971 im Sediment beim Rhein in Augst [2]. Ebenso wurde ein zweites Maximum um 1977/78 entdeckt, welches praktisch identisch ist mit dem Maximum 1976/77 im Sediment vom Klingnauer Stausee. In der Referenz [2] konnte damals keine schlüssige Erklärung dafür gefunden werden. Zwei zusätzliche, aber etwas geringere Maxima (1979 und 1981) sind in Figur 3 links zu erkennen.

Vergleicht man die Sedimentprofile aus dem Bielersee beprobt 1995 [2], 2010 [3] und 2013 [1], dann ist eine auffällige Ähnlichkeit zuerkennen mit dem ¹³⁷Cs Profil des Klingnauer Stausee Sedimentes in den Jahren 1974 bis 1984.



- @BAG 2015



Figur 3:

Links: Tiefenprofil der ¹³⁷Cs Aktivitätskonzentrationen gemessen (blau) und alterskorrigiert (grün). Rechts: Tiefenprofil der ^{239,240}Pu (rot) und ²⁴¹Am (schwarz) Aktivitätskonzentrationen.



Figur 4:

a) Tiefenprofil der alterskorrigierten ¹³⁷Cs Aktivitätskonzentrationen für den Bielersee [2] beprobt 1995,
b) Tiefenprofil der alterskorrigierten ¹³⁷Cs Aktivitätskonzentrationen für den Klingnauer Stausee beprobt 2012,

c) Tiefenprofil der alterskorrigierten ¹³⁷Cs Aktivitätskonzentrationen für den Rhein bei Augst [2] beprobt 1995.

Bereits 1998 wurde der ¹³⁷Cs Verlauf von 2 Sedimentkernen des Klingnauer Stausees präsentiert [4]. Leider konnten dort wegen sehr hoher Sedimentationsraten (> 3 cm/a) nur zwei Maxima bestimmt werden, 1986 und 1979. Der letzte Peak (1979) wurde auch damals schon mit einer ¹³⁷Cs Abgabe von Mühleberg in Verbindung gebracht [4]. Ebenso wurde dieser Peak in zwei Sedimentkernen im Rhein bei Augst (Peak Maxima 1978/79) gefunden ([4], Fig. 4c)). Bei den Bielerseesedimenten konnten die leicht erhöhten Maxima in den Jahren 1976, 1979 und 1982 mit erhöhten radioaktiven Abgaben des Kernkraftwerkes Mühleberg (KKM) erklärt werden ([5], Fig. 4a).

Basierend auf Referenz [5] (siehe [6]) wird gezeigt, dass im Sommer das Signal einer flüssigen Abgabe vom KKM nach minimal 7.6 Tagen (bei Hochwasser) und maximal 12 Tagen (bei Niedrigwasserstand) im Trinkwasser von Biel messbar wäre. Bei einer Abgabe im Winter dauert dieser Transport minimal 71.6 Tage (bei Hochwasser) und maximal 76 Tage bei Niedrigwasserstand. Diese Unterschiede kommen daher zustande, dass im Sommer das relativ warme Aare-Wasser auf der Oberfläche des relativ "kalten" Bielersees fliesst und nach 6 Tagen um einen Faktor 3 verdünnt den Bielersee durch den Aareausfluss wieder verlässt. Im Winter taucht das relativ kalte Aarewasser in den warmen Bielersee ein und benötigt bis zur vollen Durchmischung und Verlassen des Bielersees ca. 70 Tage [6]. Auch bei der Rhone konnte der Transport von radioaktiven Abgaben der nuklearen Industrie durch das Oberflächengewässer über lange Distanzen beobachtet werden [7].

Das Tiefenprofil von ^{239,240}Pu und ²⁴¹Am zeigen einen ganz ähnlichen Verlauf wie das 137Cs in den 50er und 60er Jahren, welche auf den Plutonium Eintrag durch die oberirdischen Bombentests in dieser Zeit zurückzuführen sind (Fig. 3 rechts). 1971 ist ein zusätzlicher Peak einer geringen 239,240Pu Aktivitätskonzentration zu erkennen. In den früheren Untersuchungen am Klingnauer Stausee, wurden die ^{239,240}Pu und ²⁴¹Am Aktivitätskonzentrationen nicht gemessen ([2], [4]). Die Übereinstimmung der Peakmaxima für ¹³⁷Cs und ^{239,240}Pu und ²⁴¹Am lässt darauf schliessen, dass 1970/1971 in der legalen Abgabe vom Kernkraftwerk Beznau zusätzlich auch Aktiniden enthalten waren. Ähnliche Befunde wurden auch in der Rhone festgestellt, bedingt durch Abgaben der Wiederaufbereitungsanlage Marcopoule [8].

Referenzen

- [1] Röllin, S., Beer, J., Balsiger, B., Brennwald, M., Estier, S., Klemt, E., Lück, A., Putyrskaya, V., Sahli, H., Steinmann, P., 2013. Radionuklide in Sedimenten des Bielersees, in: BAG veröffentlichter Jahresbericht "Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz 2013. Download unter: http://www.bag.admin.ch/themen/ strahlung/00043/00065/02239/index.html?lang=de
- [2] Albrecht, A. und Beer, J., 1995. "Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein" EAWAG-HSK Studie, 95 Seiten (pdf 11.3 MB, http://static.ensi.ch/1373885099/eawag_ report_1995_001.pdf)
- [3] Thevenon, F., Wirth, S., Fujak, M., Poté, J., Girardclos, S., 2013. Human impact on the transport of terrigenous and anthropogenic elements to peri-alpine lakes (Switzerland) over the last decades, Aquatic Sciences, vol. 75, no. 3, p. 413-424. Download unter: www.ensi.ch, http://static.ensi.ch/1373883748/101007_s00027-013-0287-6.pdf.
- [4] Albrecht, A., Reiser, R., Lück, A., Stoll, J.-M. A., 1998. Radiocesium Dating of Sediments from Lakes and Reservoirs of Different Hydrological Regimes. Environ. Sci. Technol. 32, 1882-1887.
- [5] ENSI, 2013. Die Fakten zur "Radioaktivität im Bielersee". Download unter: www.ensi.ch, (pdf:http://www.ensi.ch/de/2013/07/15/die-faktenzurradioaktivitat-im-bielersee).
- [6] ENSI, 2014. Aktennotiz: Faustregeln zur Abschätzung der Aktivitätskonzentrationen und der Fliesszeiten nach einen KKW-Unfall mit einer Abgabe von radioaktiven Stoffen in Aare bzw. Rhein. Download unter: ww.ensi.ch, (pdf: http://static.ensi.ch/1423582328/faustregeln_ radioaktivitaet_ausbreitung_fluesse_kkw-unfall.pdf).
- [7] Martin, J.M., Thomas, A.J., 1990. Origins, Concentrations and Distributions of Artificial Radioanuclides discharched by the Rhône River to the Mediterranean Sea. J. Environ. Radioactivity 11, 105-139.
- [8] Ferrand, E., Eyrolle, F., Radakovitch, O., Provansal, M., Dufour, S., Vella, C., Raccasi, G., Gurriaran, R., 2012. Historical levels of heavy metals and artificial radionucliedes reconstructed from overbank sediment records in lower Rhône River (South-East France). Geochim. Cosmochim. Acta 82, 163-182.

4.6 Radioactivité du sol et de l'herbe

P. Froidevaux, M. Straub, P-A. Pittet, F. Barraud, M. Pedro et F. Bochud Institut de Radiophysique, CHUV, Grand Pré 1, 1007 Lausanne

S. Estier, P. Steinmann, A. Gurtner Radioactivité de l'environnement, URA / OFSP, 3003 BERNE

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

J.A. Corcho Alvarado, S. Wüthrich, S. Röllin, B. Balsiger Labor Spiez, Bundesamt für Bevölkerungschutz des VBS, 3700 Spiez

Résumé

Nous avons prélevé des échantillons de sol (0-5 cm) et d'herbe sur différents sites en Suisse, notamment aux abords des centrales nucléaires. Dans certains cas, des mesures de spectrométrie in-situ ont également été réalisées. Les résultats montrent que le niveau d'activité artificielle dans le sol et l'herbe est resté faible et au niveau des années précédentes. Les activités des radioéléments habituellement observés dans les échantillons de sol comme conséquence des essais d'armes atomiques réalisés en atmosphère dans les années soixante sont inférieures à 1 Bq/kg pour le plutonium, l'américium et au maximum de 67 Bq/kg pour le 90Sr dans un sol de montagne du Tessin. Le niveau d'activité en ¹³⁷Cs est plus variable et dépend de la contribution de l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl et peut atteindre 267 Bg/kg au Tessin (env. 48 Bg/kg au maximum sur le plateau suisse), région particulièrement touchée par les retombées de l'accident. Les activités en 90Sr sont restées très similaires à celles observées les années précédentes et sont plus élevées en altitude et au Tessin que sur le reste de la Suisse. Ces variations dans les sols se reflètent au niveau des herbes, avec des activités en ⁹⁰Sr supérieures dans les herbes de montagne (jusqu'à 15 Bq/kg MS) et du Tessin (137Cs jusqu'à 20 Bq/kg MS).

Introduction

Le sol est le réceptacle de la déposition atmosphérique terrestre de radioactivité en cas d'accident nucléaire ou de rejet atmosphérique par les centrales nucléaires. De par sa composition chimique, sa structure physique et sa capacité d'échange cationique, le sol va jouer un rôle de premier plan dans la conservation de la radioactivité en surface de la biosphère et dans le transfert des radioéléments du sol à l'herbe de fourrage ou à d'autres végétaux comestibles. Dans le but d'évaluer des scénarios à long terme sur le devenir de certains radioéléments déposés dans le sol, la mesure régulière de la déposition atmosphérique de radioactivité liée aux essais nucléaires des années soixante est très importante. Elle permet en effet l'évaluation des périodes (T1/2) de présence de l'activité dans des compartiments environnementaux d'importance pour l'exposition humaine aux radiations. C'est pourquoi le programme de la surveillance de la radioactivité dans le sol et l'herbe comprend des sites proches des centrales nucléaires et des sites de référence hors de leur influence qui sont suivis annuellement depuis plusieurs décennies. L'étude de l'impact de l'accident de Tchernobyl, notamment au Tessin, constitue également un but de ces mesures. La couche de sol analysée est celle de 0-5 cm de profondeur, car elle contient l'essentiel de la zone racinaire, appelée la rhizosphère, pour la plupart des espèces de plantes constituant l'herbe à fourrage. L'herbe analysée est prélevée en général directement sur la surface de sol échantillonné, ce qui permet l'établissement de facteurs de transfert sol-herbe. Actuellement en Suisse, la radioactivité artificielle des sols et de l'herbe est constituée des retombées radioactives globales des essais atmosphériques d'armes atomiques (e.g. ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs, Pu, Am) ainsi que du dépôt provenant de l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl (surtout ¹³⁷Cs).

Dans ce travail, nous avons déterminé l'activité des émetteurs gamma (e.g. ¹³⁷Cs) et du ⁹⁰Sr dans des échantillons de sol et d'herbe prélevés aux abords des centrales nucléaires suisses et sur certains sites de référence. Les mesures de plutonium et d'américium dans les sols sont également présentées mais discutées plus loin dans un chapitre spécifique. Le

but est de comparer les valeurs obtenues sur les sites des centrales nucléaires avec celles obtenues sur les sites de référence ainsi que de comparer ces valeurs avec celles des années précédentes. De plus, l'évaluation des temps de résidence de certains radioéléments dans différents compartiments de l'environnement permet d'envisager certains scénarios de gestion de situation post-accidentelle. Par exemple dans la figure 1, on constate que pour le transfert de ¹³⁷Cs dans les différents compartiments de l'environnement, les aliments (lait, viande, poissons) sont rapidement à l'équilibre avec le

Tableau 1:

Activité du ⁴⁰ K, ¹³⁷ Cs, ⁹⁰ Sr, Pu et Am dans des sols (0-5 cm) prélevés en Suisse en 2014 (Bq/kg matière sèche, < 2n	nm	n).
---	----	-----

Canton / Lieu	n	40 K	⁶⁰ Co	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am
AG (voisinage KKB)	2	370 - 422	< 0.7	< 0.8	12.6 - 17.9	0.89 ± 0.13	0.100 ± 0.005	0.036 ± 0.003
AG (KKB in-situ)	2	282 - 295			10.5 - 12.6			
AG (PSI)	1	426 ± 46	< 0.5	< 0.5	13.5 ± 1.4	0.44 ± 019	0.062 ± 0.006 0.042 ± 0.003	0.042 ± 0.003 0.027 ± 0.002
AG (PSI in-situ)	1	263 ± 28			5.4 ± 0.7			
AG (ZWILAG)	1	350 ± 38	< 0.7	< 0.6	6.2 ± 0.8	0.43 ± 0.11	0.138 ± 0.009 0.127 ± 0.007	0.064 ± 0.009 0.064 ± 0.004
AG (ZWILAG in-situ)	1	272 ± 29			3.7 ± 0.5			
AG (vois. KKL)	4	376 - 479	< 0.8	< 0.8	12.1 - 19.0	0.62 ± 0.14	0.151 ± 0.006	0.063 ± 0.004
AG (KKL in-situ)	4	195 - 305		SC.	6.1 - 9.6			
AG/SO (vois. KKG)	4	359 - 452	< 0.8	< 0.8	7.4 - 19.4	0.59 ± 0.14	0.225 ± 0.013 0.182 ± 0.008	0.082 ± 0.014 0.099 ± 0.006
AG/SO (KKG in-situ)	4	272 - 332	8		5.6 - 8.6	2		
BE (voisinage KKM)	4	422 - 733	< 0.9	< 0.9	6.7 - 14.7	0.72 ± 0.16 0.71 ± 0.14	0.177 ± 0.011 0.123 ± 0.006	0.064 ± 0.011 0.050 ± 0.003
BE (KKM in-situ)	4	278 - 558			4.8 - 11.0			
BE (Mürren) 1)	1	531 ± 58	< 0.26	< 0.3	39.9 ± 4.6	5.27 ± 0.74		
BE (Gimmelwald) 2)	1	293 ± 24	< 0.18	< 0.2	13.4 ± 1.6	2.93 ± 0.59		
BE (Fahrni) ³⁾	1	432 ± 36	< 0.22	< 0.3	13.9 ± 1.7	2.69 ± 0.38		
BE (Diesse/Jura)	1	393 ± 83	< 0.24	< 0.3	17.0 ± 2.1	1.22 ± 0.22		
BL (Sissach)	1	505 ± 26	< 0.5	< 0.5	13.9 ± 1.2	13.2 ± 2.6		
FR (Posieux)	1	403 ± 42	< 0.4	< 0.4	6.2 ± 0.7	0.61 ± 0.12	0.215 ± 0.011	0.056 ± 0.006
FR (Posieux in-situ)	1	338 ± 35			4.2 ± 0.7			
GE (Vois. CERN)	5	389 - 438	< 1.1	< 1.1	5.2 - 9.5	0.88 ± 0.25	0.104 ± 0.006	0.053 ± 0.003
GE (CERN in-situ)	5	342 - 387			2.3 - 3.8			
TG (Güttingen)	1	359 ± 39	< 0.5	< 0.5	18.0 ± 1.9	0.72 ± 0.08	0.140 ± 0.008 0.097 ± 0.006	0.111 ± 0.009 0.056 ± 0.003
TG (Güttingen in-situ)	1	250 ± 27			13.9 ± 1.6			
TG (Arenenberg)	1	438 ± 15	< 0.6	< 0.7	47.9 ± 0.4	1.03 ± 0.19	0.114 ± 0.006	0.056 ± 0.005
TI (Centovalli)	1	484 ± 45	< 1.0	< 1.0	267 ± 13	67.0 ± 13.4		
TI (Leventina)	1	599 ± 30	< 0.6	< 0.5	18.9 ± 1.4	19.6 ± 3.9		
TI (Malcantone)	1	630 ± 35	< 0.7	< 0.6	66.0 ± 3.3	18.7 ± 3.7		
TI (Stabio)	1	631 ± 65	< 0.6	< 0.6	243 ± 25			
TI (Stabio in-situ)	1	470 ± 48			136 ± 14			
TI (Cadenazzo)	1	676 ± 73	< 1.0	< 1.0	91.9 ± 9.6	2.69 ± 0.40	0.081 ± 0.005	0.029 ± 0.003
TI (Cadenazzo in-situ)	1	447 ± 46			45.4 ± 4.7			
Ti (Caslano)	1	620 ± 64	< 0.5	< 0.6	121 ± 12			
Ti (Caslano in-situ)	1	445 ± 46			57.0 ± 5.9			

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



Figure 1.

Exemple d'intervalle de temps nécessaire à l'obtention d'un équilibre du ¹³⁷Cs entre le compartiment décrit et la solution correspondante pour certains compartiments de l'environnement. On constate que l'équilibre entre le sol et la solution de sol est le plus lent à s'établir et dirigera ainsi la cinétique des autres compartiments.

compartiment trophique de référence (e.g. végétation pour le lait et la viande). La vitesse de transfert du ¹³⁷Cs du sol à l'aliment est alors contrôlée par l'équilibre le plus lent à s'établir, à savoir entre le sol et la solution de sol, qui peut prendre en effet plusieurs années.

Résultats et discussion

Les résultats des mesures de radioactivité dans le sol sont présentés dans le Tableau 1. Les activités en émetteurs gamma sont dominées par le 40K, avec des activités situées entre 195 et 733 Bq/kg. Les activités en émetteurs gamma artificiels proviennent uniquement du ¹³⁷Cs dont les valeurs varient entre 2.3 et 267 Bq/kg. Les sites de prélèvement du Tessin, significativement plus contaminés lors de l'accident de Tchernobyl en 1986, ont les valeurs d'activité les plus élevées (jusqu'à 267 Bg/kg). Ces valeurs sont proches de celles obtenues sur les mêmes sites l'année précédente. Les sites d'altitude près de Thoune ont des activités intermédiaires (14 - 40 Bq/kg) alors que les sites de plaine, notamment près des centrales nucléaires, ont les activités les plus faibles (2-15 Bq/kg). Le site d'Arenenberg, en Suisse orientale, est le site de plaine le plus contaminé en ¹³⁷Cs (48 Bq/kg), cette région ayant subi de fortes précipitations lors du passage du nuage radioactif en provenance de Tchernobyl. Les sites aux abords

Tableau 2:

Activité du ⁷Be, ⁴⁰K, ⁶⁰Co, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs et ⁹⁰Sr dans des échantillons d'herbe prélevés en Suisse en 2014 (Bq/kg de matière sèche). Pour les échantillons uniques, la valeur et l'incertitude sont indiquées (a ± b). Si plusieurs échantillons ont été mesurés la gamme des valeurs est donnée (a - b).

Canton/Lieu	n	⁷ Be	40 K	⁶⁰ Co	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr
AG (Voisinage KKB)	4	101 - 214	891 - 1'086	< 2.0	< 1.7	< 1.2 - 2.1	0.44 ± 0.05 0.55 ± 0.08
AG (PSI-ZWILAG)	2	97 - 191	913 - 930	< 1.8	< 1.8	< 1.8	
AG (PSI-OASE)	2	177 - 183	685 - 867	< 1.3	< 1.2	< 0.9 - 1.0	
AG (Voisinage KKL)	8	77 - 235	577 - 1'054	< 1.8	< 1.6	< 1.1 - 3.6	0.41 ± 0.05 0.94 ± 0.11
AG/SO (Voisinage KKG)	8	133 - 299	583 - 1'224	< 1.8	< 1.4	< 0.9 - 1.5	0.38 ± 0.04 0.71 ± 0.07
BE (Voisinage KKM)	8	161 - 305	616 - 1'347	< 1.8	< 1.5	< 0.7 - 1.3	0.30 ± 0.06 0.77 ± 0.09
BE (Mürren) 1)	1	390 ± 48	384 ± 43	< 0.3	< 0.2	1.9 ± 0.3	17.7 ± 2.5
BE (Gimmelwald) 2)	1	172 ± 27	573 ± 49	< 0.3	< 0.2	< 0.19	2.08 ± 0.33
BE (Fahrni) ³⁾	2	49 - 500	858 - 1'070	< 0.4	< 0.3	< 0.33 - 0.88	2.11 - 2.69
BE (Diesse/Jura)	2	67 - 228	1'170 - 1'390	< 0.5	< 0.3	< 0.34 - 0.39	0.55 - 0.83
BL (Sissach)	1	199 ± 8	1'070 ± 29	< 0.2	< 0.1	< 0.1	4.80 ± 0.96
GE (Voisinage CERN)	5	228 - 399	561 - 830	< 2.4	< 2.2	< 2.3	0.41 ± 0.05
FR (Posieux)	2	193 - 296	735 - 1'157	< 1.2	< 1.2	< 1.1	$0.63 \pm 0.08 \\ 0.73 \pm 0.09$
TG (Güttingen)	2	231 - 262	966 - 1'136	< 1.2	< 0.9	0.6 - 0.7	0.33 ± 0.07 0.99 ± 0.16
TG (Arenenberg)	1	85 ± 9	637 ± 24	< 1.3	< 1.3	< 1	0.28 ± 0.05
TI (Centovalli)	1	82 ± 6	832 ± 31	< 0.5	< 0.4	20.1 ± 1.1	15.6 ± 3.10
TI (Leventina)	1	151 ± 16	793 ± 44	< 1.0	< 0.7	3.1 ± 1	9.9 ± 2.00
TI (Malcantone)	1	234 ± 10	1'387 ± 54	< 0.5	< 0.4	0.5 ± 0.3	10.5 ± 2.1
TI (Cadenazzo)	2	206 - 247	1'136 - 1'218	< 1.5	< 1.2	1.1 - 1.5	3.82 ± 0.17 3.11 ± 0.22
TI (Stabio)	1	481 ± 51	696 ± 76	< 1.4	< 1.3	20.4 ± 2.0	
TI (Caslano)	1	552 ± 60	946 ± 105	< 2.1	< 1.9	9.6 ± 1.6	

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



Figure 2.

Détermination des périodes de résidence du ⁹⁰Sr dans le sol (en rouge) et dans l'herbe (en bleu) en Suisse (moyenne d'au moins 8 sites de prélèvement annuel) sur la base des résultats d'analyse obtenus depuis la fin des essais nucléaires et la disparition de quantités significatives de ⁹⁰Sr dans l'atmosphère. On constate que la période, déterminée à partir de la pente de la droite, est identique pour le sol et l'herbe (moyenne pour la Suisse).

des centrales nucléaires sont bien représentés dans les prélèvements et ne montrent pas de marquage supplémentaire en ¹³⁷Cs dû aux rejets.

Les activités en ⁹⁰Sr des sols du plateau suisse sont basses et ne dépassent que rarement quelques Bq par kg de masse sèche. Toutefois elles peuvent atteindre 67 Bq/kg en altitude au Tessin, avec potentiellement une contribution significative de l'accident de Tchernobyl.

L'analyse des activités en 90Sr mesurées dans les sols du plateau suisse durant ces 40 dernières années montre que l'activité en 90Sr dans les sols n'a cessé de décroitre depuis l'adoption en 1963 du traité d'interdiction des essais nucléaires en atmosphère. La figure 2 montre les activités (sous forme logarithmique) utilisées pour déterminer la période biologique de présence du 90Sr dans le sol et l'herbe. On constate que ces périodes sont identiques, de l'ordre de 14 ans, car le compartiment régissant toute la cinétique de transfert du 90Sr dans la biosphère et le long de la chaîne trophique est le sol. Froidevaux et al. [1] ont montré que le temps de résidence du 90Sr dans les vertèbres humaines est également de 13.5 ans car directement lié au temps de résidence du 90Sr dans la nourriture (13 ans pour le lait). Ces observations confirment celles présentées dans la figure 1 pour le ¹³⁷Cs. Elles indiquent que le scénario de la contamination à long terme de l'environnement, la chaîne trophique et l'être humain, doit impérativement tenir compte du compartiment de résidence le plus long à établir un équilibre.

Les mesures de radioactivité dans l'herbe sont présentées dans le tableau 2. Tout comme pour les sols, le radioélément prédominant est le ⁴⁰K, avec des activités pouvant atteindre 1'350 Bq/kg de masse sèche. L'herbe contient de plus une activité significative (50 - 550 Bq) de ⁷Be, qui est un radioélément naturel de 53.3 jours de période produit dans l'atmosphère sous l'effet du rayonnement cosmique. Les activités en ¹³⁷Cs sont faibles sur le plateau suisse (1 - 2 Bq/kg) mais peuvent atteindre 20 Bq/kg au Tessin, principalement à cause de la contribution importante de l'accident de Tchernobyl. Les activités en ⁹⁰Sr sont souvent inférieures à 1 Bq/kg, mais peuvent ici aussi atteindre jusqu'à 16 Bq/kg dans des herbes de montagne du Tessin. Tout comme pour le sol, on observe une diminution régulière avec une période de 13.5 ans du ⁹⁰Sr dans ce compartiment de la biosphère (Figure 2).

Conclusions

Les mesures de ⁹⁰Sr et de ¹³⁷Cs dans les sols et les herbes en Suisse en 2014 présentent des activités similaires aux années précédentes. Aucune augmentation d'activité n'a été constatée, ni aux abords des centrales nucléaires, ni dans les sites de référence. Les sites de montagne et certains sites du Tessin présentent des activités en ⁹⁰Sr et en ¹³⁷Cs supérieures à celles mesurées sur les sites de plaine, centrales nucléaires comprises. L'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl est par contre encore responsable d'un marquage assez important en ¹³⁷Cs dans des échantillons de sol et d'herbe de certains sites de prélèvement du Tessin.

Les mesures annuelles sur des sites de référence aux abords des centrales nucléaires et en dehors de tout impact des centrales permettent, lorsqu'elles sont répétées sur plusieurs décennies, de déterminer les périodes de résidence de la contamination de l'environnement et de la chaîne trophique par les essais nucléaires des années soixante. Cette contamination n'a pas eu d'impact négatif sur la santé de la population suisse mais permet d'obtenir des informations cruciales sur le devenir des radioéléments d'importance comme le ⁹⁰Sr, le ¹³⁷Cs et le plutonium, et de formuler des scénarios réalistes de contamination à long terme en cas d'accident mettant en jeu des activités importantes.

Référence

[1] Froidevaux, P., Haldimann, M., Bochud, F. Chemosphere 80, 519-524, 2010.