

**Autoren: M. Zehring & A. Pregler**

## **Rheinüberwachung / Radioaktivität**

Anzahl untersuchte Proben: 52    beanstandet: 0

### **Ausgangslage**

Im Rahmen des Schweizerischen Überwachungsprogrammes der Radioaktivität (SUER) werden Wasser- und Schwebstoffproben des Rheines unterhalb von Basel untersucht. Die Schwebstoffproben des Rheins dienen zur Überwachung der schweizerischen Kernkraftwerke. Ein erheblicher Teil der über den Wasserpfad abgegebenen Radionuklide lagert sich an Tonmineralien an und wird in Form von Schwebstoffen stromabwärts transportiert. Die adsorbierten Nuklide werden schliesslich im Flusssediment eingelagert. Der Rheinschwebstoff ist somit ein geeignetes Untersuchungskompartiment für die langzeitliche Radioaktivitätsüberwachung der rheinaufwärts liegenden Kernkraftwerke und weiterer Emittenten der Schweiz.



Rheinüberwachungsstation Weil (RüS)<sup>1</sup>

### **Untersuchungsziele**

Die vorliegenden Untersuchungen sind Bestandteil des jährlichen Überwachungsprogrammes der Umweltradioaktivität des Bundes<sup>2</sup>.

Dies beinhaltet ein Tritium-Monitoring des Rheinwassers in der Rheinüberwachungsstation Weil am Rhein (RüS) auf der Basis von Wochen-Mischproben. Anhand der Untersuchung von monatlich gezogenen Schwebstoffproben werden Emissionen aus AKWs und Industriebetrieben durch periodische Analyse der Rheinschwebstoffe überwacht.

### **Gesetzliche Grundlagen**

Aktivitätskonzentrationen in öffentlich zugänglichen Gewässern dürfen im Wochenmittel festgelegte Immissionsgrenzwerte für Gewässer ( $IG_{GW}$ ) nicht überschreiten.

In Anhang 7 der eidgenössischen Strahlenschutzverordnung (StSV)<sup>3</sup> sind diese Immissionsgrenzwerte für öffentlich zugängliche Gewässer festgelegt. Sie sind so definiert, dass die kritische Person, die den gesamten Trinkwasserbedarf mit Wasser decken würde, das mit dem Immissionsgrenzwert kontaminiert wäre, dadurch eine jährliche Ingestionsdosis von 0,3 mSv erhalten würde. Nachfolgend ist der jeweils schärfste Grenzwert der unterschiedlichen Altersgruppen aufgeführt.

In der StSV sind Materialien natürlicher Herkunft und Nuklidzusammensetzung von der Beurteilung ausgenommen, wenn sie zu einer Dosis von weniger als 1 mSv pro Jahr führen (Art. 2 Abs.1 StSV). Bei den natürlichen Radionukliden des Uran, Radium und Polonium wird deshalb auf eine gesetzliche Beurteilung verzichtet.

<sup>1</sup> Foto von Sandra Zehring

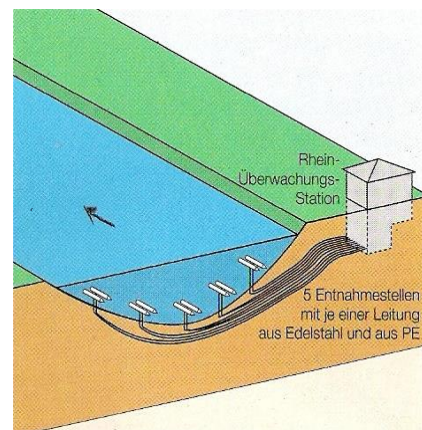
<sup>2</sup> Überwachung der Umweltradioaktivität in der Schweiz: BAG-Probenahmeplan 2019

<sup>3</sup> Eidgenössische Strahlenschutzverordnung vom 26. April 2017, in Kraft seit 1.1.2018

Parameter	Immissionsgrenzwert für Gewässer IGgw (Bq/L)
<sup>3</sup> H (Tritium, als HTO)	20'000
<sup>54</sup> Mn (Mangan-54)	360
<sup>60</sup> Co (Cobalt-60)	42
<sup>65</sup> Zn (Zink-65)	72
<sup>111</sup> In (Indium-111)	1'590
<sup>122</sup> Sb (Antimon-122)	271
<sup>131</sup> I (Iod-131)	6.7
<sup>153</sup> Sm (Samarium-153)	976
<sup>137</sup> Cs (Cäsium-137)	36
<sup>160</sup> Er (Erbium-169)	1'240
<sup>177</sup> Lu (Lutetium-177)	870
<sup>177m</sup> Lu (Lutetium-177m)	270
<sup>223</sup> Ra (Radium-223)	0.08

### Probenbeschreibung

An fünf diskreten Stellen quer über den Rhein wird permanent Rheinwasser gesammelt und gekühlt rückgestellt. Im Normalfall wird das repräsentative Mischwasser von jeweils 24 Stunden analysiert. Im Bedarfsfall kann auf 12 Stunden-Mischproben jeder einzelnen Probenahmestelle zurückgegriffen werden. Bei erhöhter Tritiumaktivität (> 40 Bq/L) kann durch die Messung der fünf Einzelstränge ermittelt werden, ob die Tritiumeinleitung im Raume Basel oder oberhalb von Basel (Staustufe Birsfelden) stattgefunden hat. Zudem lassen sich durch die feinere Auflösung Tritiumfrachten exakter berechnen. Die Schwebstoffproben werden vom Amt für Umwelt und Energie Basel-Stadt im Rahmen der Rheinüberwachung monatlich erhoben. Mit einer Zentrifuge werden die Schwebstoffteilchen aus dem Rheinwasser abgetrennt, gefriergetrocknet und gemahlen.



Schematische Darstellung der Wasserentnahmestellen der RÜS<sup>4</sup>

### Prüfverfahren

#### Alphaspektrometrie

Für die Bestimmung des Poloniums (<sup>210</sup>Po) wurde Schwebstoff mit Säure/Wasserstoffperoxid im Mikrowellenofen aufgeschlossen. Das Polonium wurde in der Aufschlusslösung an eine Silber-Folie abgeschieden und anschliessend mit Alphaspektrometrie während 24 Stunden ausgezählt.

#### Betaspektrometrie

Für die Tritiumanalysen wurde aus den Tagesproben eine Wochenmischprobe erstellt. Davon wurden acht mL filtriert (0.45 µm), mit 12 mL Ultimagold-LLT-Cocktail gemischt und mit Flüssigszintillation während zehn Stunden ausgezählt.

#### Gammaspectrometrie

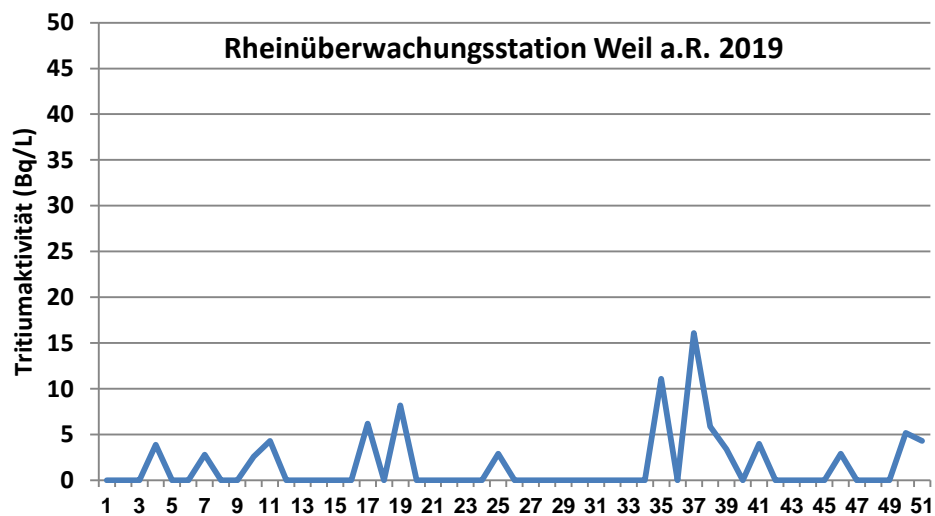
Die Schwebstoffproben wurden in kalibrierten Petrischalen direkt mit hochauflösenden Ge-Detektoren ausgezählt.

<sup>4</sup> Schema aus: Amt für Umweltschutz und Energie Basel-Stadt, Prospekt der Rheinüberwachungsstation Weil a. R.

Aus der  $^{238}\text{U}$ -Reihe können  $^{214}\text{Bi}$  und  $^{214}\text{Pb}$  mit Gammaskpektrometrie direkt bestimmt werden.  $^{226}\text{Ra}$  lässt sich nach entsprechender Gleichgewichtseinstellung zwischen  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{222}\text{Rn}$  indirekt aus den Aktivitäten von  $^{214}\text{Bi}$  bzw.  $^{214}\text{Pb}$  bestimmen. Aus der  $^{232}\text{Th}$ -Reihe sind die Nuklide  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  und  $^{208}\text{Tl}$  direkt messbar.  $^{228}\text{Th}$  lässt sich indirekt via  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Tl}$  bzw.  $^{212}\text{Bi}$  bestimmen.  $^{228}\text{Ra}$  steht mit  $^{228}\text{Ac}$  im Gleichgewicht und weist somit die gleiche Aktivität auf.

## Ergebnisse

### Tritium in der Wasserphase



- Tritium war in 16 von 52 Wochen-Mischmustern nachweisbar (> 2 Bq/L).
- Der durchschnittliche Tritium-Wochenaktivität betrug im Berichtsjahr  $6.9 \pm 2.8$  Bq/L. Der Immissions-Grenzwert von 20'000 Bq/L war ganzjährig eingehalten.

### Medizinisch angewendete Radionuklide im Rheinschwebstoff

- Nuklearmedizinisch verwendete, kurzlebige Radionuklide konnten wie in den Vorjahren nachgewiesen werden. Insbesondere  $^{177}\text{Lu}$  und  $^{131}\text{I}$  werden im Universitätsspital Basel häufig eingesetzt und sind in nahezu allen Proben präsent. Es konnten jedoch keine Verstösse gegen die Immissionsgrenzwerte festgestellt werden.
- Anstelle des  $^{177}\text{Lu}$  wird sporadisch auch  $^{177\text{m}}\text{Lu}$  eingesetzt. Dessen Halbwertszeit ist jedoch erheblich länger (161 Tage), weshalb der Immissionsgrenzwert auch deutlich tiefer angesetzt ist als beim  $^{177}\text{Lu}$ . Das Nuklid wurde nur in vier Schwebstoffproben mit einem Mittelwert von 2.3 Bq/kg nachgewiesen.
- Seit 2013 wird  $^{223}\text{Ra}$ , ein Präparat mit dem Handelsnamen Xofigo, (Halbwertszeit: 11.4 Tage) zur Behandlung von Prostatakarzinomen eingesetzt<sup>5</sup>. Folglich kann dieses Radionuklid jetzt auch im Rhein nachgewiesen werden. In 12 Schwebstoffproben war  $^{223}\text{Ra}$  nachweisbar mit Aktivitäten über dem Immissionsgrenzwert. Dieser Grenzwert gilt jedoch für die Wasserphase. Im Rheinschwebstoff sind die Radionuklide um mindestens einen Faktor 1000 angereichert.

<sup>5</sup> P. Steinmann: Nachweis von  $^{223}\text{Ra}$  aus der Medizin in Klärschlammproben, In: Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz. BAG, Berichtsjahr 2014, 167-169.

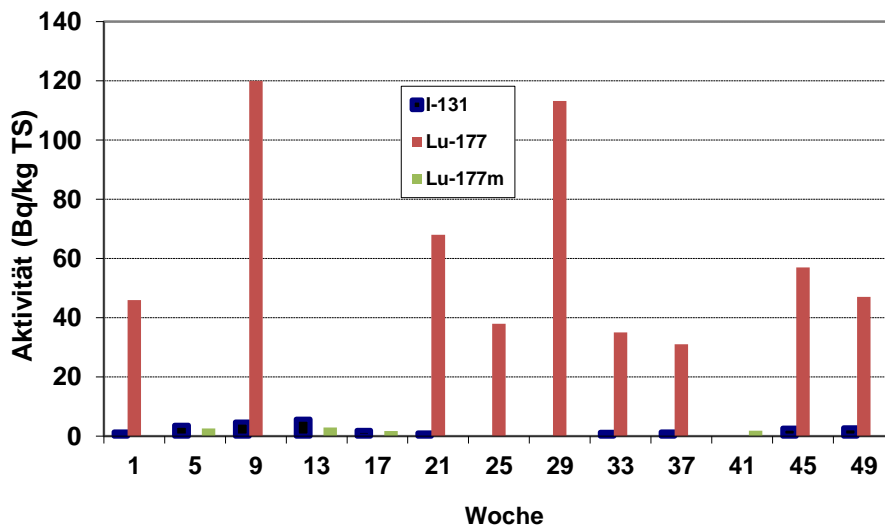
- Sporadisch wurden weitere Radionuklide wie  $^{169}\text{Er}$  und  $^{153}\text{Sm}$  im Schwebstoff nachgewie-

**Mittlere Aktivitäten medizinisch verwendeter Radionuklide im Rheinschwebstoff 2019**

Aktivität (Bq/kg)/Nuklid	$^{153}\text{Sm}$	$^{169}\text{Er}$	$^{131}\text{I}$	$^{177}\text{Lu}$	$^{177\text{m}}\text{Lu}$	$^{223}\text{Ra}$
Mittlere Aktivität	$160 \pm 41$	4500	$2.7 \pm 1.6$	$62 \pm 33$	$2.3 \pm 0.6$	$11 \pm 7.6$
Anzahl Messungen	2	1	10	9	4	12
Immissionsgrenzwert	976	1'240	6.7	870	270	0.1

sen. Die Ursache für diese Emissionen konnte nicht festgestellt werden.

Die angegebenen Immissionsgrenzwerte gelten für das Rheinwasser selbst. Die Rheinschwebstoffe sind im Vergleich zum Wasser um mindestens einen Faktor 1000 angereichert. Somit liegt bei den nachgewiesenen Radionukliden  $^{169}\text{Er}$  und  $^{223}\text{Ra}$  keine Überschreitung des Immissionsgrenzwerts vor.



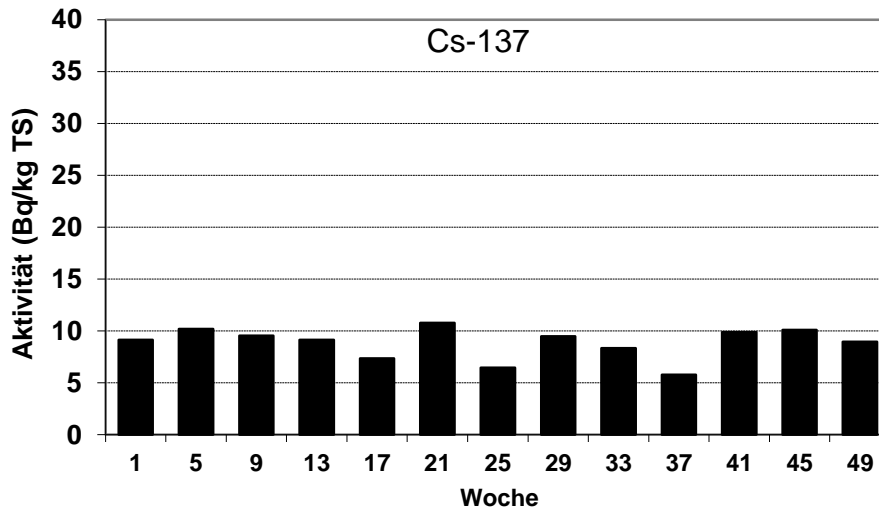
Pharmazeutisch verwendete Radionuklide im Rheinschwebstoff 2019

**Weitere künstliche Radionuklide**

- Künstliche Radionuklide wie  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{60}\text{Co}$  und  $^{122}\text{Sb}$ , konnten sporadisch oder gar nicht nachgewiesen werden. Dies sind Korrosions- bzw. Aktivierungsprodukte aus den Kühlkreisläufen der Schweizerischen AKWs.
- Radiocäsium stammt vorwiegend von Fallout (Tschernobyl und Bombenfallout). Es gelangt durch die Abschwemmungen von Ackerböden in den Rhein.

**Mittlere Aktivitäten von Radionukliden von AKWs und Fallout 2019**

Aktivität (Bq/kg)/Nuklid	$^{122}\text{Sb}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{60}\text{Co}$	$^{54}\text{Mn}$
Mittlere Aktivität	<1	$8.9 \pm 1.5$	<1	$0.6 \pm 0.2$
Anzahl Messungen		13		7
Immissionsgrenzwert	271	36	42	360



Radiocäsium im Rheinschwebstoff

**Natürliche Radionuklide**

- Das natürliche Nuklid <sup>40</sup>K ist aufgrund des hohen Tonmineralienanteils des Rheinschwebstoffes dominant vertreten. In ähnlich hoher Aktivität liegt auch <sup>7</sup>Be (Beryllium-7) vor. Dieses Nuklid stammt aus der Atmosphäre und hat eine relativ kurze Halbwertszeit. Die gemessenen Aktivitäten belegen, dass die untersuchten Schwebstoffe rezenten Ursprunges sind. Die Aktivitäten der Radionuklide des Radium, Thorium, Uran und Polonium waren erwartungsgemäss relativ konstant. Diese Nuklide sind jedoch von einer Beurteilung gemäss StSV ausgenommen, da sie natürlichen Ursprunges sind.

Mittlere Aktivitäten natürlicher Radionuklide im Rheinschwebstoff bei Weil am Rhein 2019									
Aktivität (Bq/kg)/Nuklid	<sup>40</sup> K	<sup>7</sup> Be	<sup>228</sup> Th	<sup>226</sup> Ra	<sup>228</sup> Ra	<sup>210</sup> Pb	<sup>210</sup> Po	<sup>235</sup> U	<sup>227</sup> Ac
Mittlere Aktivität	375	482	35	31	30	230	73	<9	3
Anzahl Positivbefunde	13	13	13	13	13	3	13	0	1

**Schlussfolgerungen**

Das Monitoringprogramm wird 2020 gemäss Vorgaben des BAG fortgesetzt.